

堆積岩に関する原位置試験 フェ
報告書
(昭和60年度)



三菱金属株式会社

PNC TJ5211 86-001(2)

堆積岩に関する原位置試験 フェーズII
報告書
(昭和60年度)

1986年3月

三菱金属株式会社



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。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団
技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical Evaluation and Patent Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

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

1986年3月

堆積岩に関する原位置試験 フェーズⅡ※

打越肇※※

要 旨

本試験は高レベル廃棄物地層処分技術開発の一環として実施されたものであり、第2段階の処分予定地の選定に係わる既存空洞を用いた試験・研究の第1年度にあたる。

本年度は第二段階において実施すべき既存空洞を用いた原位置試験を実施すべく、新たな試験空洞の開削と開削に伴う岩盤挙動の調査および空洞開削面の調査、TRU模擬核種を用いた室内核種収着試験、模擬廃棄物固化体の埋設および環境調査を実施した。各調査・試験の実施内容および成果の概要は次の通りである。

堆積岩に関する原位置試験フェーズⅡにおいて実施する原位置試験用空洞として、 $W 4.0 \times H 2.0 \times L 30$ m、 $W 2.0 \times H 2.3 \times L 40$ mおよび $W 4.0 \times (H 3.0 \times L 10 + H 4.0 \times L 20)$ mの大きさの3空洞を得た。各空洞とも開削後鋼製支保施工を行った。

空洞の開削に伴う岩盤挙動は、試錐孔を用いた透水試験、孔内観察、孔内載荷試験およびひずみ測定により調査した。透水試験からは、空洞側壁面から約1 m以上離れた岩盤においては開削による透水性への影響は認められなかった。しかし、約1 m以内においては断層等の割れ目の存在による透水性の増大が一部で認められた。孔壁観察結果からは、開削による影響として微小割れ目および新規剝離部の発生が認められたが、開口割れ目あるいは顕著な割れ目の発生は認められなかった。孔内載荷試験からは、各試験位置ともほぼ同様の非弾性的な変形特性が得られた。ひずみ測定からは一部で掘進に伴う典型的な応力変化（圧縮状態から応力解放状態への変化）が認められたものの、測定位置での地質性状の相違が応力状態に大きな影響を与えることがわかった。

これらから、試験対象岩石が非弾性的、脆性的であるために、開削に伴う割れ目の発生は顕著でなく、したがって岩盤の水理的・力学的挙動は開削前後では大きな変化を示さないことがわかった。また、開削工法の相違よりも地質性状の相違の方が水理的・力学的挙動により大きな影響を与えることがわかった。

空洞開削面の調査からは新規開削空洞周辺岩盤の割れ目の性状・分布パターンが明らかとなり、単一割れ目トレーサ試験等の位置選定のために有益な情報が得られた。

T R U 模擬核種を用いた室内収着試験では、試験対象核種としてランタニドおよびバリウムを、収着媒体としてモンモリロナイトを用いて、収着媒体の諸特性の測定、バッチ試験法による試験対象核種の分配係数の測定と分配係数に影響を与える諸要因の考察を行い、これら核種の T R U 模擬核種としての代替性を検討した。

模擬廃棄物固化体としてガラス、各種金属片を感天立坑下 8 番坑付近の坑道の側壁に埋設した。さらに、埋設箇所周辺の環境調査として岩盤側壁面のスケッチ、湧水の採取・分析を実施した。埋設試料のうち一部は埋設後 3 ヶ月後に取り出し、ガラス片は動燃殿に送付するとともに金属片の腐食状況等を調べた。その結果、3 ヶ月間の埋設では S U S 304 および Hastelloy C - 276 には腐食は認められなかった。

※ 本報告書は、三菱金属株式会社が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

※※ 三菱金属株式会社原子力事業部開発部

MARCH 1986

In Situ Tests in Sedimentary Rock (Phase II) ※

Hajime Uchikoshi ※※

Abstract

This study has been conducted as part of the R & D on high level waste disposal. The purpose is to develop suitable techniques which make it possible to acquire data which is necessary to assess the isolation capacity of geological formations. FY 1985 is the first year of the second phase of the R & D. The excavation of test rooms used for in situ test of the second phase, examination of hydrological and mechanical rock properties induced by excavation, geological investigation of faces of excavated rooms, laboratory nuclide sorption experiment of lanthanides and barium, and burial of glass and metal materials have been done in FY 1985. The results are as follows;

Three drifts have been excavated as in situ test rooms, whose size are $W4.0 \times H2.0 \times L30$, $W2.0 \times H2.3 \times L40$, and $W4.0 \times (H3.0 \times L10 + H4.0 \times L20)$ in meters.

Core observation, borehole wall observation, water injection test, borehole jack test, and strain measurement in boreholes revealed that although part of strain measurement showed typical features induced by the development of a face, almost hydrological and mechanical rock properties did not change significantly between pre- and post-excavation. This may be derived from the fact that Hosokura tuff (altered dacitic tuff breccia) is very plastic, brittle, and composed of very fine grained secondary minerals such as clay minerals. And, the difference between the effects to rock properties by a conventional blasting method and a smooth blasting method was not distinct.

The geology and geological structure of excavated drifts have been surveyed

by detailed geological investigation of the roof, wall and floor of the drifts. And, a fracture used in Tracer Migration Test in a Single Fracture which plans to be studied in the next few years was determined.

Distribution coefficients of lanthanides and barium were determined, using Na-montmorillonite as sorptive solid, and the influences of factors such as initial pH·Eh, temperature, cation exchange capacity, coexistence of other cations, etc. to those Kd values were studied.

Glass and metal materials were emplaced in small holes drilled slightly inclined to a wall in a drift. The holes have been filled with groundwaters. And, materials of SUS 304 and hastelloy C-276 were found to be uncorroded after 3 month emplacement. All the test samples will be moreover examined for a long time to grasp the relationship between natural environment and processes such as leaching and corrosion.

-
- ※ Work Performed by Mitsubishi Metal Corporation under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.
 - ※※ Mitsubishi Metal Corporation, Nuclear Energy Division, Development Department.

目 次

まえがき	1
第1章 試験要領	3
1.1 試験名	3
1.2 試験目的	3
1.3 実施場所	3
1.4 試験期間	3
1.5 試験概要	4
第2章 試験場の開削	8
2.1 目的	8
2.2 試験用空洞の規模・形状	8
2.3 開削位置の選定	12
2.4 開削方法	12
2.5 開削結果	14
第3章 空洞開削時の岩盤挙動の調査	20
3.1 目的	20
3.2 岩盤条件と計測位置の選定	21
3.3 岩盤挙動調査用試錐孔の掘削およびコア調査	21
3.4 孔壁調査	24
3.5 水理的挙動調査	27
3.6 力学的挙動調査	45
3.7 まとめ	58
第4章 空洞開削面の調査	60
4.1 目的	60
4.2 調査結果	60
第5章 TRU模擬核種を用いた室内核種収着試験	80
5.1 目的	80
5.2 TRU模擬核種候補元素の選定	81
5.2 ランタニド元素とアクチニド元素の化学的挙動の比較方法	85

5.4	試験方法	87
5.5	試験結果	98
5.6	考察	107
第6章	模擬廃棄物固化体の埋設および環境調査	127
6.1	目的	127
6.2	埋設箇所の選定	127
6.3	埋設箇所の環境調査結果	129
6.4	試験体の埋設	132
6.5	金属試験体の分析結果	145
6.6	今後の試験方法の検討	151
6.7	まとめ	156
あとがき		158

LIST OF FIGURES

2 - 1	Schematic Layout of Test Rooms for In Situ Tests in Sedimentary Rock (Phase II).	10
2 - 2	Location and Specification of Drifts Excavated in Fiscal Year 1985.	11
2 - 3	Result of Geological Investigation of the Roof of the Drift near the Existent Testroom.	13
2 - 4	Layout of Holes Drilled for Conventional Blasting Round.	15
2 - 5	Layout of Holes Drilled for Smooth Blasting Round.	16
2 - 6	Method of Filling Explosives in a Hole for Smooth Blasting.	17
2 - 7	Results of Face Advancing and Excavation of a Drift for Measurements of Rock Properties.	18
3 - 1	Location of Measurement of Mechanical and Hydrological Properties in Boreholes.	22
3 - 2	Layout of Boreholes for Measurement of Mechanical and Hydrological Properties of Hosokura Tuff.	23
3 - 3	Result of Core Observation Obtained from Holes Used for Hydrological and Mechanical Tests.	25
3 - 4	Rock Quality Designation (RQD) of Drill Cores.	26
3 - 5	Analytical Sketches of Hole No. 4.	28
3 - 6	Analytical Sketches of Hole No. 8.	29
3 - 7 (1)~(4)	Comparison of Analytical Sketches of Hole No. 4.	30~33
3 - 8 (1)~(4)	Comparison of Analytical Sketches of Hole No. 8.	33~37
3 - 9	Schematic Diagram of Permeability Test.	39
3 - 10	Position of Injection Intervals in Each Permeability Test and the Comparison with the Result of Core Observation.	40
3 - 11(1), (2)	Injection Volume Versus Time Obtained from Permeability Test.	41, 42
3 - 12	Schematic View of Borehole Jack.	46
3 - 13	Conceptual Drawing of Borehole Jack Test.	46

3—14	Position of Measurement Intervals in Borehole Jack Test.	47
3—15	Schematic Drawing of Embedded Strain Sensor.	48
3—16	Position of Strain Sensor Embedded.	49
3—17(1), (2)	Results of Borehole Jack Test in Hole No. 4 for Pre- and Post- Excavation of Drift C.	51, 52
3—18(1), (2)	Results of Borehole Jack Test in Hole No. 8 for Pre- and Post- Excavation of Drift C.	53, 54
3—19	Strain Changes Induced by Face Advancing.	57
4—1 (1)~(3)	Geological Sketch of the Wall and Roof of Drift A.	61~63
4—2 (1)~(3)	Geological Sketch of the Walls and Roof of Drift B.	64~66
4—3 (1), (2)	Geological Sketch of the Walls and Roof of Drift C.	67~70
4—4	Geology and Main Fractures Observed in Drift A.	71
4—5	Geology and Main Fractures Observed in Drift B.	72
4—6	Geology and Main Fractures Observed in Drift C.	73
4—7	Fracture Distribution Pattern around Drifts A, B and C.	75
4—8	Geological Sketch of the Floor of Drift C.	76, 77
4—9	Main Fracture Distribution on and below the Floor of Drift C.	79
5—1	Particle Size Distribution.	90
5—2	Experimental Procedure for the Sorption Measurement (Single Element Run).	96
5—3	Experimental Procedure for the Sorption Measurement of Ba and Mixed Elements.	97
5—4	pH Dependence on Distribution Coefficient (Single Element Run).	106
5—5	pH Dependence on Distribution Coefficient (Mixed Elements Run).	106
5—6	Distribution Coefficients (K _d) versus pH for (a)U(VI), (b)Np(V), (c)Pu(VI), and (d)Am(III).	118
5—7	Logarithmic Diagram Depicting the Concentration of Uranium (III) Hydroxide Species as a Function of pH.	122
5—8	Logarithmic Diagram Depicting the Concentration of Plutonium (III)	

	Hydroxide Species as a Function of pH.	123
5 - 9	Distribution Coefficients vs. pH for ^{235}Np on Selected Minerals.	125
6—1	Location of Test Place in Hosokura Mine.	128
6—2	Geological Sketch of Wall (northeast side) at Test Place.	130
6—3	Layout of Boreholes.	133
6—4	Meathod of Preparing Double U Bend Sample.	137
6 - 5	Schematic Diagram of Test Samples Setting in Test Hole.	140
6—6	Conceptual Layout of Boreholes.	154
6—7	Experimental Setup of Corrosion Test in Test Hole.	155

LIST OF TABLES

2 - 1	Specification of Smooth Blasting.	14
3 - 1	Result of Permeability Test.	43
3 - 2	Deformation Modulus Obtained from Borehole Jack Test.	50
5 - 1	Electronic Configuration of Lanthanides and Actinides.	82
5 - 2	Selected Element Concentration of Stocked Solution.	87
5 - 3	Chemical Composition of Montmorillonite.	88
5 - 4	Percentage of Cation Exchange Capacity.	89
5 - 5	Change of pH Value with Standing Time and Centrifugation.	91
5 - 6	Radionuclides Selected in the Sorption Experiment.	92
5 - 7	Conditions of the Main Sorption Experiment.	94
5 - 8	Background Element Contents in Montmorillonite.	99
5 - 9	Blank Test.	99
5 - 10	Initial and Final Values of pH & Eh in the Sorption Experiment (Single Element Run).	100
5 - 11	Initial and Final Values of pH & Eh in the Sorption Experiment (Mixed Elements Runs and Blank Test).	101
5 - 12	Data to Calculate Kd in the Single Element Run.	103
5 - 13	Data to Calculate Kd in the Mixed Elements Run.	104
5 - 14	Distribution Coefficients.	105
5 - 15	Material Balance of Elements Used.	110
5 - 16	Dissolved Chemical Species and Estimated Concentration.	115
5 - 17	Average Sorption Ratios.	125
6 - 1	Chemistry of Groundwater.	131
6 - 2	List of Boreholes.	134
4 - 3	List of Test Samples.	135
6 - 4(1)	List of Metallic Samples (Coupons).	138
6 - 4(2)	List of Metallic Samples (Double U Bond).	138

6—5 (1)	Chemical Composition of Type 304 Stainless Steel.	139
6—5 (2)	Chemical Composition of Commercially Pure Titanium.	139
6—5 (3)	Chemical Composition of Hastelloy C-276.	139
6—5 (4)	Chemical Composition of Mild Steel.	139
6—5 (5)	Chemical Composition of Pure Copper.	139
6—6	PH, Eh, and Temperature of Water in Test Holes.	142
6—7 (1), (2)	Water Volume Supplied to Test Holes.	143, 144
6—8	Corrosion Test Results of Coupon Samples after 3 Month Immersion Corrosion Test.	150

L I S T O F P H O T O G R A P H S

6 - 1 (1)	SUS 304 Test Sample after 3 Month Immersion Corrosion Test.	146
6 —1 (2)	CP Titanium Test Sample after 3 Month Immersion Corrosion Test. ...	146
6 —1 (3)	Hastelloy C-276 Test Sample after 3 Month Immersion Corrosion Test.	147
8 —1 (4)	Mild Steel Test Sample after 3 Month Immersion Corrosion Test.	147
6 —1 (5)	Pure Copper Test Sample after 3 Month Immersion Corrosion Test. ...	148
6 —2 (1)	Double U bend SCC Test Sample of SUS 304 after 3 Month Immersion Corrosion Test.	148
6 —2 (2)	Double U bend SCC Test Sample of CP Titanium after 3 Month Immersion Corrosion Test.	149
6 —2 (3)	Double U bend SCC Test Sample of Hastelloy C-276 after 3 Month Immersion Corrosion Test.	149

まえがき

我が国が高レベル廃棄物の処理処分の研究開発を本格的に実施したのは、昭和51年10月に原子力委員会が示した「放射性廃棄物対策について」において、その対策方針が明らかにされてからである。その後、昭和56年12月19日に原子力委員会の下部組織である放射性廃棄物対策専門部会は、それまでの高レベル廃棄物の研究開発計画やスケジュールの点検、見直しを行った結果として、「高レベル放射性廃棄物処理処分にに関する研究開発の推進について」をまとめた。この中で、高レベル放射性廃棄物の処分は当面地層処分に重点を置くこととし、5段階方式での研究開発計画を示した。

第1段階の最終年度である昭和59年8月7日に同専門部会は第1段階の研究開発成果を総括して「放射性廃棄物処理処分方策について」と題する中間報告をまとめた。同報告の中で高レベル放射性廃棄物処分方策は従来方針通り地層処分によることとし、さらに、従来の5段階の研究開発手順を見直し、既に終了した第1段階も含めて、4段階の開発手順を採用することとした。

翌昭和60年10月8日に同専門部会は、上記中間報告で今後の検討課題とされた、放射性廃棄物処理処分の実施主体及びその責任のあり方等についての検討結果を報告した際に、第3・4段階名を修正した。現時点でのこれら4段階名は以下の通りである。

- ① 有効な地層の選定
- ② 処分予定地の選定
- ③ 処分予定地における処分技術の実証
- ④ 処分場の建設・操業

昭和60年度は第2段階の「処分予定地の選定」の第1年度にあたる年である。

4段階の地層処分技術開発スケジュールにおける第2段階の研究開発において、動燃は第1段階からの継続課題として、第2段階における調査・研究に資する評価データの蓄積を図るため第1段階における「天然バリアに関する研究」および「人工バリアに関する研究」を発展的に継続する役割を担うこととされている。これらの研究課題は、

- ① 天然バリアに関する研究

既存空洞等を利用して、水理モデルの精度向上を図り、地震動の地下深部におけるデータの収集・解析手法の検討を行う他、岩石の熱・応力特性、透水性、核種吸着特性等

地層の包蔵性及び健全性に関する調査研究を継続する。

② 人工バリアに関する研究

処分場への地下水の侵入及び侵入後の核種移行を防止するオーバーバック材、緩衝材、埋め戻し材、グラウト材等の材質の選定及び開発を行うとともに、既存空洞を利用しての施工試験を行い、信頼性・安定性の高い施工技術の開発を行う。更に人工バリアの熱的、力学的特性を調査し、天然バリアとの両立性試験等によって人工バリアの有効性及び健全性を評価する。

とする内容のものであり、両研究とも既存空洞を利用した試験を行うことが示されている。

本「堆積岩に関する原位置試験 フェーズⅡ」はまさにこの既存空洞を利用した試験に相当するものであり、上記研究課題解明のために積極的な調査・研究を押し進めて、「処分予定地の選定」に資する有効なデータ・評価方法の取得に努める必要がある。

第1章 試験要領

1.1 試験名

堆積岩に関する原位置試験 フェーズⅡ

1.2 試験目的

本試験は高レベル廃棄物の地層処分技術開発の一環として昭和56年度より堆積岩を対象として実施してきた「地層の包蔵性の調査研究」成果を基とした、第2段階の「処分予定地の選定」に係わる技術開発スケジュールのうちの、第1段階からの継続課題である「天然バリアに関する研究」に関するもので、

- ① 地層で代表される地下環境の調査とその調査方法の検討・開発
- ② 地層環境を示す水理・熱・化学・力学の現象の評価方法の検討・開発とその把握
- ③ 人工バリアを地層環境中に定置した状態における諸現象の測定方法・評価方法の検討・開発
- ④ 地層処分場の設計・施工に必要なデータの取得方法の検討・開発
- ⑤ シミュレーションモデルの検証

を目的とするものである。

本年度は本試験の初年度として海外における原位置試験等の現状を踏まえ、新たな試験空洞の開削とそれに伴う試験およびTRU模擬核種を用いた室内収着試験を行う。また、ガラス固化体および固化体容器の長期健全性を評価するためにそれらを埋設する。

1.3 実施場所

宮城県栗原郡鶯沢町字南郷荒町48番地 細倉鋳業(株)細倉鋳業所 坑内下10番坑大竹沢向立入(通洞坑口より北東方向に平面直距約1,250m、地表面下約340m)

1.4 試験期間

昭和60年8月12日～昭和61年3月31日

1.5 試験要領

1.5.1 試験場の開削

試験場は本年度および次年度にて開削する。本年度に開削する空洞は既存の原位置試験場の手前に設けるもので、A、B、Cの三つの空洞より構成され、それぞれ以下の規模を有するものである。

A空洞：幅2.0 m×高さ2.45 m×長さ30 m

B空洞：幅2.3 m×高さ2.45 m×長さ40 m

C空洞：幅4.3 m×（高さ3.15 m×長さ10 m＋高さ4.15 m×長さ20 m）

このうちA空洞は開削時の岩盤挙動の調査を実施するために必要な試錐孔を開削する空洞として、B空洞は次年度以降実施する予定の地下水浸透試験、単一割れ目トレーサ試験用空洞として、C空洞は模擬パッケージ埋設試験用空洞として設けるものである。

これら空洞は最終的に天盤および側壁からの落石、崩壊等を防止し、安全に試験ができるように、H鋼製枠組および鋼矢板等を使用した鋼製支保構造とし、最終的に得られる空洞規模は以下の通りとなる。ただし、A空洞については既存の坑道をも含めた支保構造とする。

A空洞：幅4.0 m×高さ2.3 m×長さ30 m

B空洞：幅2.0 m×高さ2.3 m×長さ40 m

C空洞：幅4.0 m×（高さ3.0 m×長さ10 m＋高さ4.0 m×長さ20 m）

空洞の開削順序は基本的にA、B、Cの順とし、C空洞の一部を除き、普通発破工法にて掘削する。A空洞開削後、A空洞に直交する方向にほぼ水平に透水試験（および孔内載荷試験）用2孔（長さ15.5 m、径76 mm）およびひずみ等力学的挙動測定用6孔（長さ15 m、一部14.3 m、径76 mm）を掘削する。全孔ともオールコアドリリングとし、コア調査を行う。

B空洞掘削後のC空洞の掘削はまず、幅2.3 m、高さ2.45 mの矩形断面で15 m間を普通発破工法で掘削し、続く15 m間を制御発破工法で掘削する。その後、追切開削して所定の空洞を得る。

1.5.2 空洞開削時の岩盤挙動の調査

本調査はC空洞の開削の前後を通じて行い、合わせて開削工法の相違による岩盤挙動の相違についても把握する。

岩盤挙動調査用試験孔掘削後、C空洞開削前に透水試験用2孔に対してはまず孔内載荷試験を行い、載荷応力と変位から変形係数を求める。次に同じ2孔の奥部3m区間を対象にダブルパッカを用いた1mごとの透水試験を行い、掘削の影響を受けていない岩盤の透水係数を求める。さらに、同孔の奥部5m区間を対象として観測角度約40°にて孔壁上面のテレビ観察を行い、割れ目分布状況等の岩盤の性状を把握する。C空洞の制御発破工法による掘削終了後、再度同様の試験を実施する。

ひずみ等力学的挙動測定孔中にはC空洞開削前にひずみ計を埋設し、初期値の読み取りを行い、C空洞開削中および開削後1週間ないし10日間測定を継続し、読み取り値が収束するのを確認する。測定は原則として1日に4回とし、発破前後にそれぞれ2回行う。

透水試験、力学的挙動測定等により、空洞の開削に伴う岩盤の水理的・力学的挙動の変化を把握するとともに、開削工法の相違によるそれら挙動の比較を行う。また、水理、力学の複合現象について考察する。

1.5.3 空洞開削面の調査

原位置試験において試験対象とする岩盤の割れ目を調査し、その性状・分布状況を把握しておくことは試験孔等の試験装置の配置を決定したり、試験結果を解析するために必要である。

そのため、A・B・C各空洞の側壁および天盤のスケッチを行い、開削空洞周辺の割れ目の分布状況を把握するとともに、次年度以降実施される予定の単一割れ目トレーサ試験で試験対象とする割れ目を選定する資料を得る。

また、C空洞において次年度以降実施される予定の模擬パッケージ埋設試験用試験孔埋設箇所周辺の床岩盤の洗い出しを行い、割れ目調査を実施して同試験対象岩盤中の割れ目賦存状況を推定する資料を得る。

1.5.4 TRU模擬核種を用いた核種収着試験

高レベル放射性廃棄物等にはTRU核種が含まれるため、従来のFP核種を対象とした原位置試験のほかにTRU核種をも対象とした原位置試験が必要である。原位置におけるTRU核種の使用は実際には困難であるので、本年度から始まる第二フェーズの試験においては、核種のトレーサとして従来使用してきたFP核種のほかにTRU核種の模擬核種を使用することが望まれる。

本試験においては模擬核種候補元素としてランタニド（ランタン、セリウム、ネオジウム、ユーロピウム）およびバリウムの安定同位元素を使用し、原位置試験場の岩石中に多く含有され、また他の岩石中あるいは割れ目中に一般的に含まれているモンモリロナイトを対象としてバッチ法により分配係数を求める。すなわち、モンモリロナイト1gと上記安定元素を含むトレーサ溶液300mlを混合し、フラスコ中で2時間振とう後22時間静置する。20分間の遠心分離（10,000rpm）後、0.45μmミリポアフィルタで固液分離を行う。ろ液は共沈または蒸発濃縮し、モンモリロナイトは乾燥し、それぞれに含まれるトレーサ量を放射化分析法で定量して分配係数を求める。得られた結果をモンモリロナイトの陽イオン交換容量、液相のpH・Eh、共存イオン、溶存化学種の影響等との関係で考察し、模擬核種候補元素の収着特性を把握する。さらに、これら元素の原位置におけるTRU模擬核種としての使用可能性について考察する。

1.5.5 模擬廃棄物固化体の埋設および環境調査

模擬廃棄物固化体を原位置に埋設し、地層環境中におけるその性状を把握するためには適度の地下水供給環境下にあることが望まれる。したがって、まず適量の地下水の認められる箇所を細倉鉾山坑内にて選定し、同箇所の地質および地下水の状況を調査する。調査項目は地質・割れ目等の観察、湧水状況の観察、湧水量の測定および湧水のpH・Ehの測定、水質分析（Ca、Mg、Na、K、Fe²⁺、Fe³⁺、Cu、Al、Cl、SO₄、SiO₂、Br、I、Co、Sr、Cs、T-CO₂、Electric Conductivity μS/cm）である。

上記調査終了後、側壁に向かって-5°~-10°程度の傾きで径50mm、深度50cmの孔をさく岩機を用いて12孔掘削する。各孔にガラス固化体、ミニキャニスタ入ガラス固化体、ガラス固化体+圧縮ベントナイト、ミニキャニスタ入ガラス固化体+圧縮ベントナイト、金属材料（ステンレス鋼、純チタン、ハステロイC-276、軟鋼、無酸素銅）

を埋設する。このうち、金属材料以外の材料は動燃殿が用意する試料を用いる。

埋設孔1孔ごとに試験体各一種類を埋設する。埋設期間を約3ヶ月、1年、2年、3年、4年の5つの異なる期間に分けた。したがって、各孔とも計5個（あるいはセット）の埋設個数となる。試験体の取り出しを容易にするため、各試験体には糸を結び、孔口の外に糸の端を出しておくこととする。各孔とも岩盤より孔内に地下水が流出する状態に置かれることが望ましいが、地下水の流出が少ないか、認められない場合には、埋設箇所周辺の坑道内に流出する地下水を埋設孔内にチューブ等を用いて導き入れる方法を採用する。

埋設期間2ヶ月の試験体については、埋設期間終了後各孔よりそれぞれ試験体1個を回収する。他の試験体は所要の期間を経過するまで引き続き埋設する。回収した試験体のうち金属材料については腐食形態の観察、腐食生成物の同定、腐食減量の測定等を行う。金属材料以外の試験体については動燃殿に試料を送付する。

さらに、本埋設試験に係わる試験方法として、充填材等を埋設する場合の埋設方法および回収方法、埋設体の加熱方法および観測方法、水サンプリングの方法等について検討する。

第2章 試験場の開削

2.1 目的

「堆積岩に関する原位置試験 フェーズⅡ」は第1章1.2節に示す項目を試験目的とするものであり、第1段階において実施した原位置試験成果が活かされ、かつ規模の点において小規模→中規模へと拡大された試験である必要がある。昭和60年度より昭和64年度までの当面の5年間に予定している試験内容は以下の通りである。

- ① 空洞開削時の岩盤挙動の調査
- ② 単一割れ目トレーサ試験
- ③ 地下水浸透試験
- ④ 模擬パッケージ埋設試験
- ⑤ 加熱透水トレーサ試験
- ⑥ 原位置せん断試験
- ⑦ バッファ埋設試験

試験用空洞はこれらの調査・試験を実施するために開削するものである。試験場は本年度および次年度の2年間にわたり開削する。

2.2 試験用空洞の規模・形状

前節で述べた試験項目のうち、バッファ埋設試験は既存試験場の中心孔および内周囲孔を用いて実施する予定の試験である。したがって、開削する空洞は①～⑥の試験が充分実施されるものである必要がある。

このうち、「空洞開削時の岩盤挙動の調査」は空洞の開削に伴って実施されるべき試験であり、本年度予定されているものである。他の試験項目は次年度以降数年継続して実施すべき試験である。したがって、試験空洞の規模は基本的にこれら②～⑥の試験を実施しうるものとした。また、試験空洞の形状は①～⑥の試験と試験実施上の作業環境および安全を考慮して決定した。

基本的に、試験用新規開削空洞は既存試験場に近い場所に設けることとした。それは、

既存試験場付近で試験を継続することができれば、水、電気、圧気等のユーティリティを大きな追加の工事がなく利用することができること、また、既存試験場の岩石と同じ岩石を試験対象とするために、既往の試験で既知となっている岩石の諸特性値を用いることができることによる。既存試験場において利用可能な坑道は既存試験場に至る下10番坑大竹沢向立入のみである。本坑道は北東に伸びる約W 2.5 m × H 2.3 mの矩形断面の坑道である。試験用空洞はこの坑道と平行する空洞とし、さらにそれらへの連絡用空洞を組み合わせFig. 2—1に示す空洞を開削することとした。C空洞とD空洞はそれぞれ、模擬パッケージ埋設試験および加熱透水トレーサ試験・原位置せん断試験用の空洞である。両空洞と既存坑道との間は開削による影響が生じないように、空洞断面の3倍以上の距離間隔を置くものとし、それぞれ15 mの距離間隔とした。B空洞はC・D空洞へのアクセス坑道の役割と地下水浸透試験・単一割れ目トレーサ試験用の試験空洞とした。A空洞は次章で述べる空洞開削に伴う岩盤挙動の調査用の試錐を実施するための空間として、また後の試験用予備空洞として設けるものである。E空洞は試験用予備空洞および通気・避難用空洞として設けるものである。

本年度開削する空洞をFig. 2—2に示す。本年度はA・B・Cの三つの空洞を開削するものであり、それぞれ以下の規模を有する。

A空洞：幅2.0 m × 高さ2.45 m × 長さ30 m

B空洞：幅2.3 m × 高さ2.45 m × 長さ40 m

C空洞：幅4.3 m × (高さ3.15 m × 長さ10 m + 高さ4.15 m × 長さ20 m)

これらの空洞は最終的に天盤および側壁からの落石、崩壊等を防止し、安全に試験ができるように、H鋼製枠組および鋼矢板等を使用した鋼製支保構造とし、最終的に得られる空洞規模は以下の通りとなる。ただし、A空洞については既存の坑道をも含めた支保構造とする。

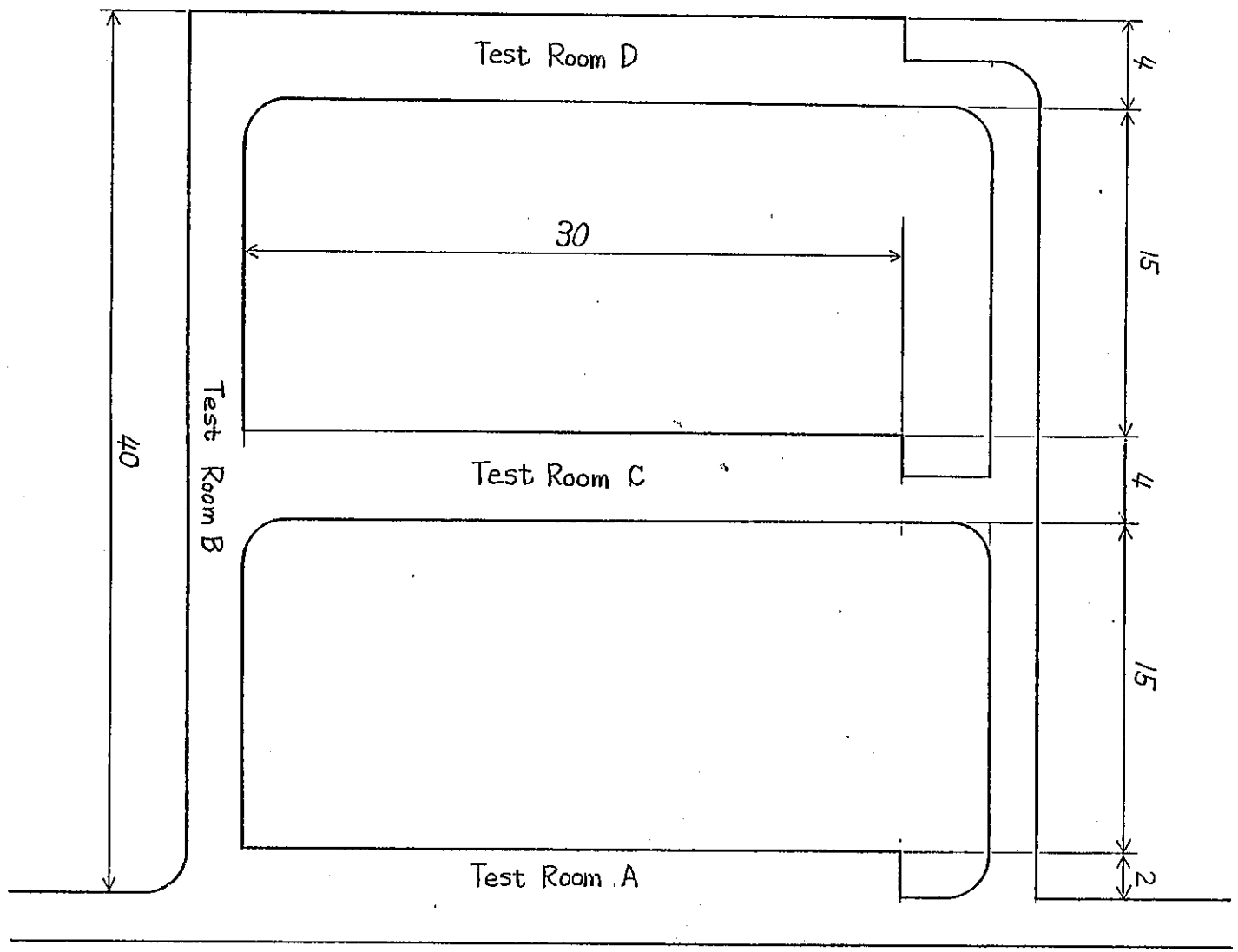
A空洞：幅4.0 m × 高さ2.3 m × 長さ30 m

B空洞：幅2.0 m × 高さ2.3 m × 長さ40 m

C空洞：幅4.0 m × (高さ3.0 m × 長さ10 m + 高さ4.0 m × 長さ20 m)

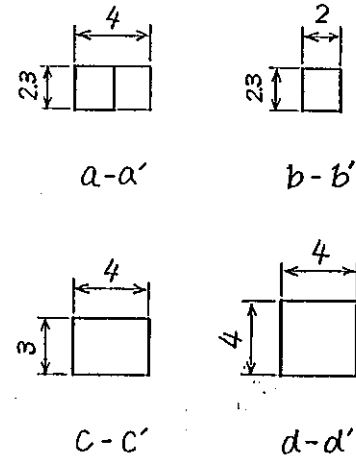
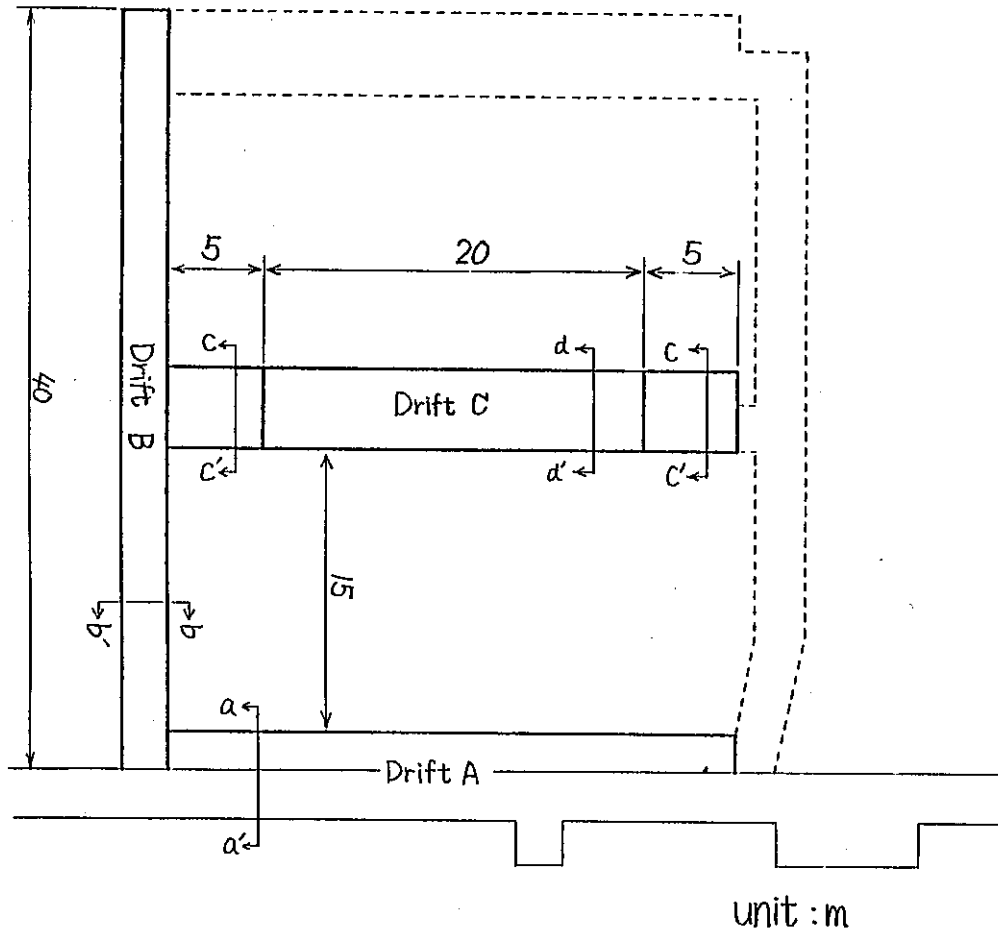
これらの仕上がり空洞容積はそれぞれの空洞にて予定している試験を実施するのに必要な空洞空間を有するものである。

C空洞の中心側20 m間は口径の大きい模擬パッケージ埋設孔を掘削するのに必要な高



unit: m.

Fig 2-1 Schematic layout of Test Rooms for In Situ Tests in Sedimentary Rock (Phase II).






-  Access Drift and Existent Test Room
-  Drifts Excavated in Fiscal Year 1985
-  Scheduled Drifts

Fig.2-2 Location and Specification of Drifts Excavated in Fiscal Year 1985.

さを確保するために高さ4.0 mとした。

2.3 開削位置の選定

既存試験場周辺の下10番坑大竹沢向立入の天盤の地質調査結果をFig. 2—3に示す。同図に示されるように、調査範囲は石英安山岩質凝灰角礫岩および石英安山岩熔岩からなる。「堆積岩に関する原位置試験 フェーズⅡ」は、堆積岩の一種である凝灰角礫岩中に試験場が設置される。さらに、単一割れ目トレーサ試験を実施するためには試験用B空洞に断層等の割れ目（連続製のある比較的規模の大きい割れ目）が出現するような地質構造の場である必要がある。立入と平行な割れ目の存在も否定できないが、その確率は低く、立入と斜交する割れ目を対象とする方が確実である。

Fig. 2—3に示した地質調査結果によれば、既存試験場手前北部地域は凝灰角礫岩よりなり、北方向の走向を有する断層の出現が推定される。したがって、Fig. 2—2に示す位置に「堆積岩に関する原位置試験 フェーズⅡ」用の試験空洞を設けることとした。

2.4 開削方法

空洞の開削は発破工法で行うこととした。また、開削はA、B、C空洞の順とした。

A空洞はFig. 2—2に示されるように、既存試験場手前の坑道の左側壁を追い切り開削して設けるものである。坑道側壁に直交する方向にさく岩機により穿孔し、ANFO爆薬を用いて起砕した。ずりはローダを用いて鉋車に載せ、処理場へ移送した。

B空洞はFig. 2—2で示されるA空洞左端部より、坑道に直交する北西方向に普通発破工法で開削を行った。同じく、さく岩機を用いて穿孔し、ANFO爆薬を用いて起砕し、ずりは処理場へ移送した。

C空洞の開削は空洞の開削に伴う岩盤挙動の調査を行ったため、以下に示すような開削方法を採用した。すなわち、Fig. 2—2に示されるように、A空洞と15 mの間隔で平行に幅2.3 m、高さ2.45 mの矩形断面で最初の15 m間を普通発破工法で掘削し、続く15 m間を制御発破工法で掘削した。その後普通発破工法で追い切り開削して、所定の規模の開削空洞を得た。普通発破工法と制御発破工法の両法で掘削したのは、空洞開削時の岩

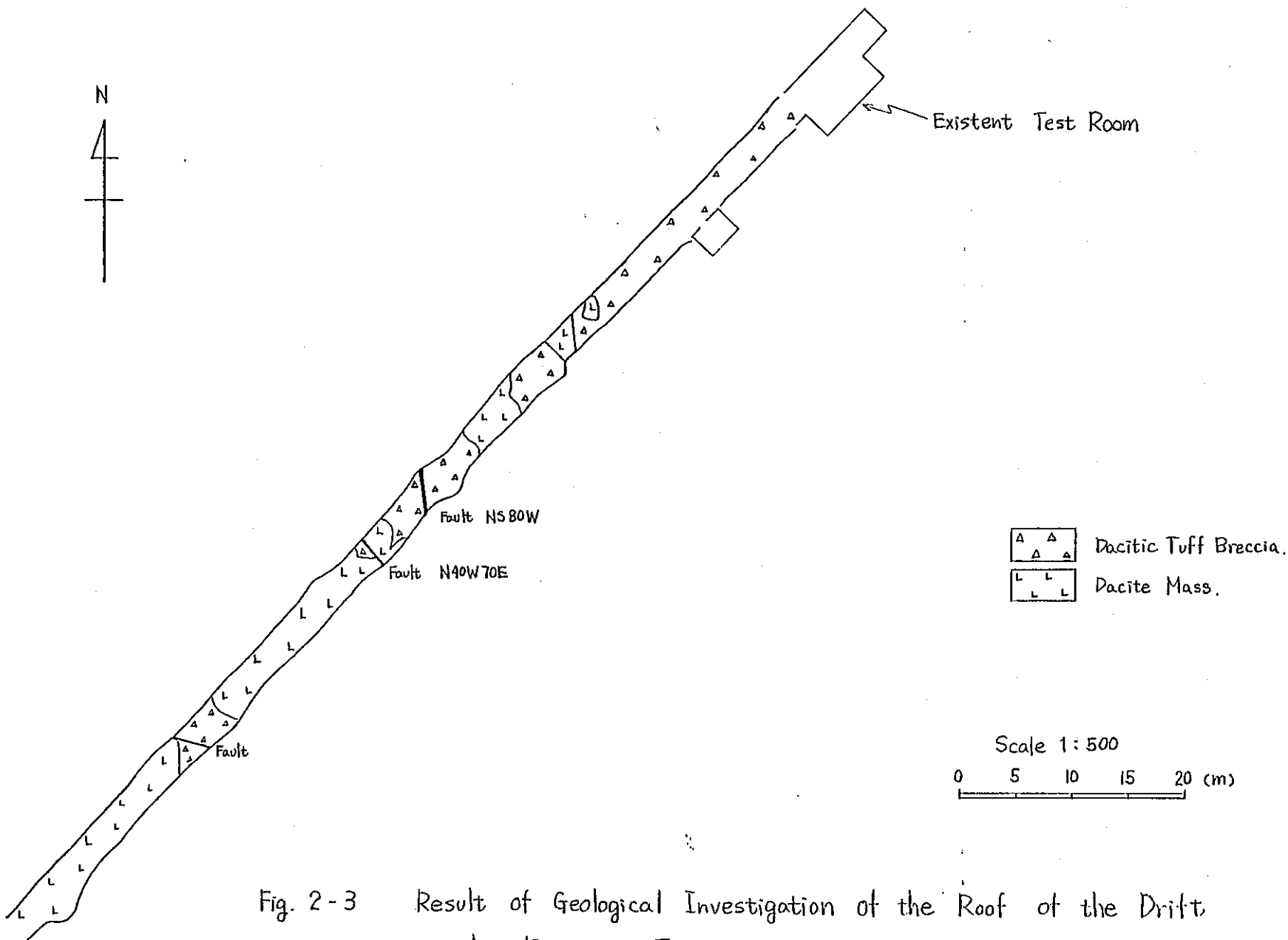


Fig. 2-3 Result of Geological Investigation of the Roof of the Drift near the Existing Test Room.

盤挙動の調査を行うに際して、開削工法の違いをも検討対象としたためである。

制御発破の仕様をTable 2—1に示す。制御発破工法には種々の方法があるが、制御発破工法が普通発破工法と異なる基本的な相違点は開削壁面の凹凸を少なくし、また周辺岩盤をなるべく傷めないようにすることにある。そのためには、穿孔数、穿孔の配置、使用火薬量等が変更されることになる。Fig. 2—4および2—5にそれぞれ、C空洞の普通発破区間、制御発破区間で採用した穿孔配置、穿孔本数、装薬量等を示した。

Table 2—1 Specification of Smooth Blasting.

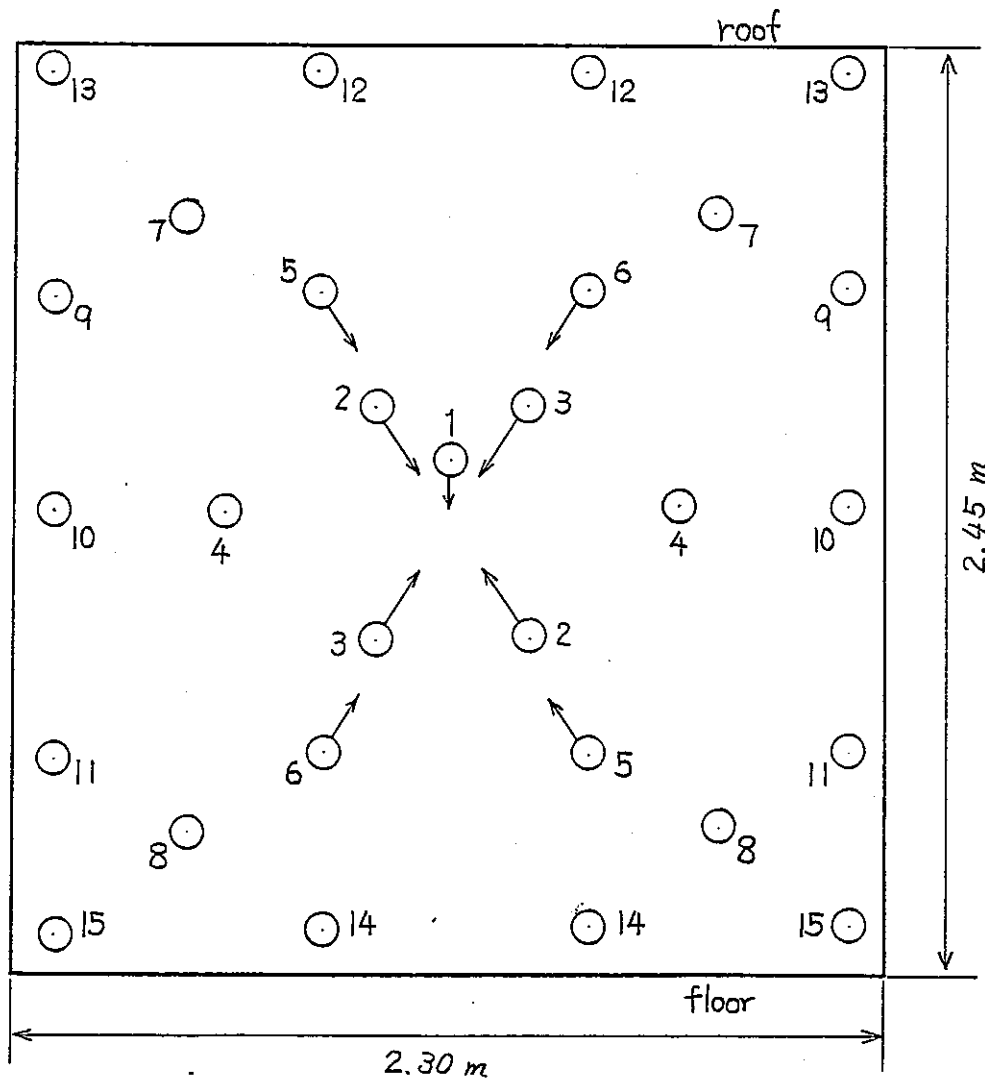
Items	Specification
Diameter of Drilling	3 8 mm
Maximum Diameter of Hole	4 0 mm
Drilling Length	1,800 mm / Hole
Distance between Hole Centers	(D) 4 0 0 mm
Burden	(W) 6 0 0 mm (D / W = 0.67)
Explosives	Alandmite (Nippon AN-FO Manufacturing) φ 2 5 mm × L 2 0 0 mm、1 0 0 g / piece Specific Gravity 1.0 Detonation Velocity 4,200 ~ 4,500 m / s
Explosive Volume per Hole	0.3 kg
Detonator	D S Electric Detonator

制御発破区間においては断面中央および踏前を起砕（段数1～12段）した後、両側壁、天盤の順（段数13～15段）に制御発破を実施した。この時の周辺孔（13～15孔）についてはFig. 2—6に示す装薬方法を採用した。

2.5 開削結果

ここでは岩盤挙動の調査を行うために実施した、C空洞での幅2.3 m、高さ2.45 mの矩形断面の坑道の普通発破区間、制御発破区間の開削結果を述べる。両区間での掘進実績および1.5 mの高さでの掘削形状実績をFig. 2—7に示す。

発破孔の標準穿孔長は1.8 mであったが、1発破当たりの平均掘進長の実績は普通発破区間で1.62 m、制御発破区間では1.53 mであり、両者に顕著な差は見られない。岩盤挙動の計測を毎日一定時刻にしたため、両発破方法とも発破実施時刻が一定時刻に限られ



Scale 1:20

Section Area 5.64 m²

Number of Holes 29

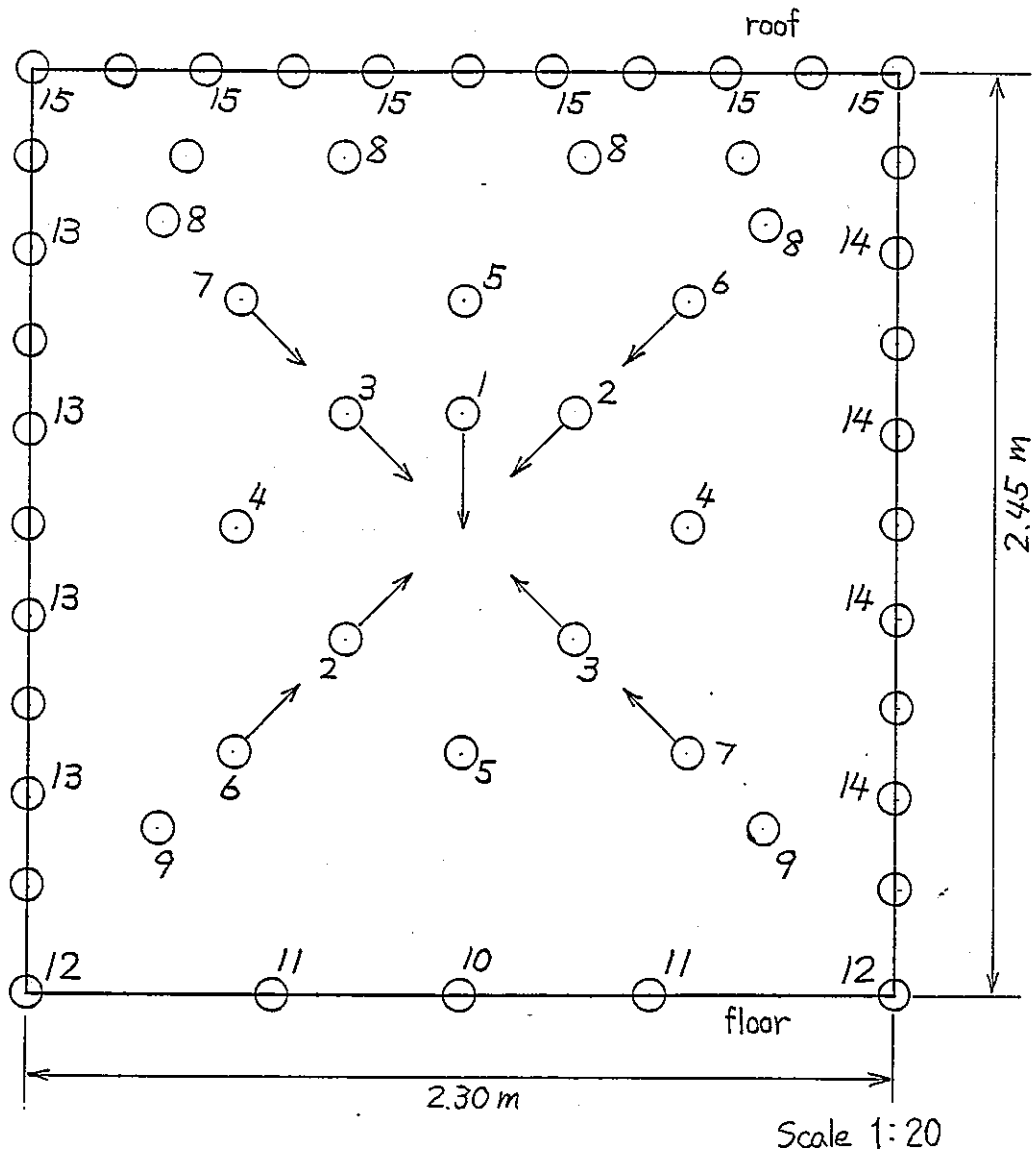
Drilling Length 1.8 m/Hole

Explosive ANFO (Nippon AN-FO Manufacturing)

Explosive Volume	(2, 3, 14, 15)	8 × 0.8(kg) = 6.4(kg)
	(4, 5, 6)	6 × 0.7 = 4.2
	(1, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13)	15 × 0.6 = 9.0

Total 19.6 (kg)

Fig 2-4 Layout of Holes Drilled for Conventional Blasting Round.



Section Area	5.64 m ²	
Number of Holes	57	
Drilling Length	1.8 m / Hole	
Explosive	ANFO or Alandmite (Nippon AN-FO Manufacturing)	
Explosive Volume	(2, 3, 10)	5 × 0.8 (kg) = 4.0 (kg)
	(4, 5, 6, 7, 11, 12)	12 × 0.7 = 8.4
	(1, 8, 9)	7 × 0.5 = 3.5
	(13, 14, 15)	14 × 0.3 = 4.2
	Total	20.1 (kg)

Fig. 2-5 Layout of Holes Drilled for Smooth Blasting Round.

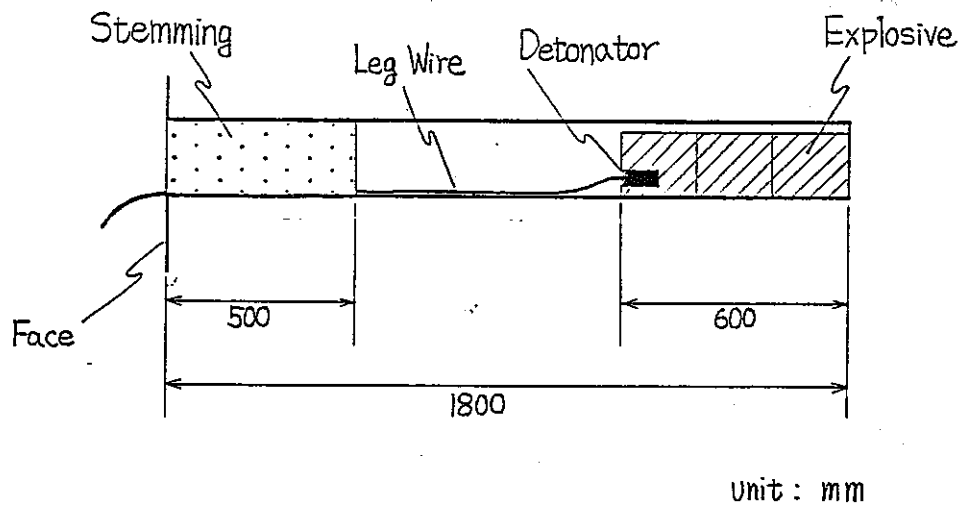


Fig 2-6 Method of Filling Explosives in a Hole for Smooth Blasting.

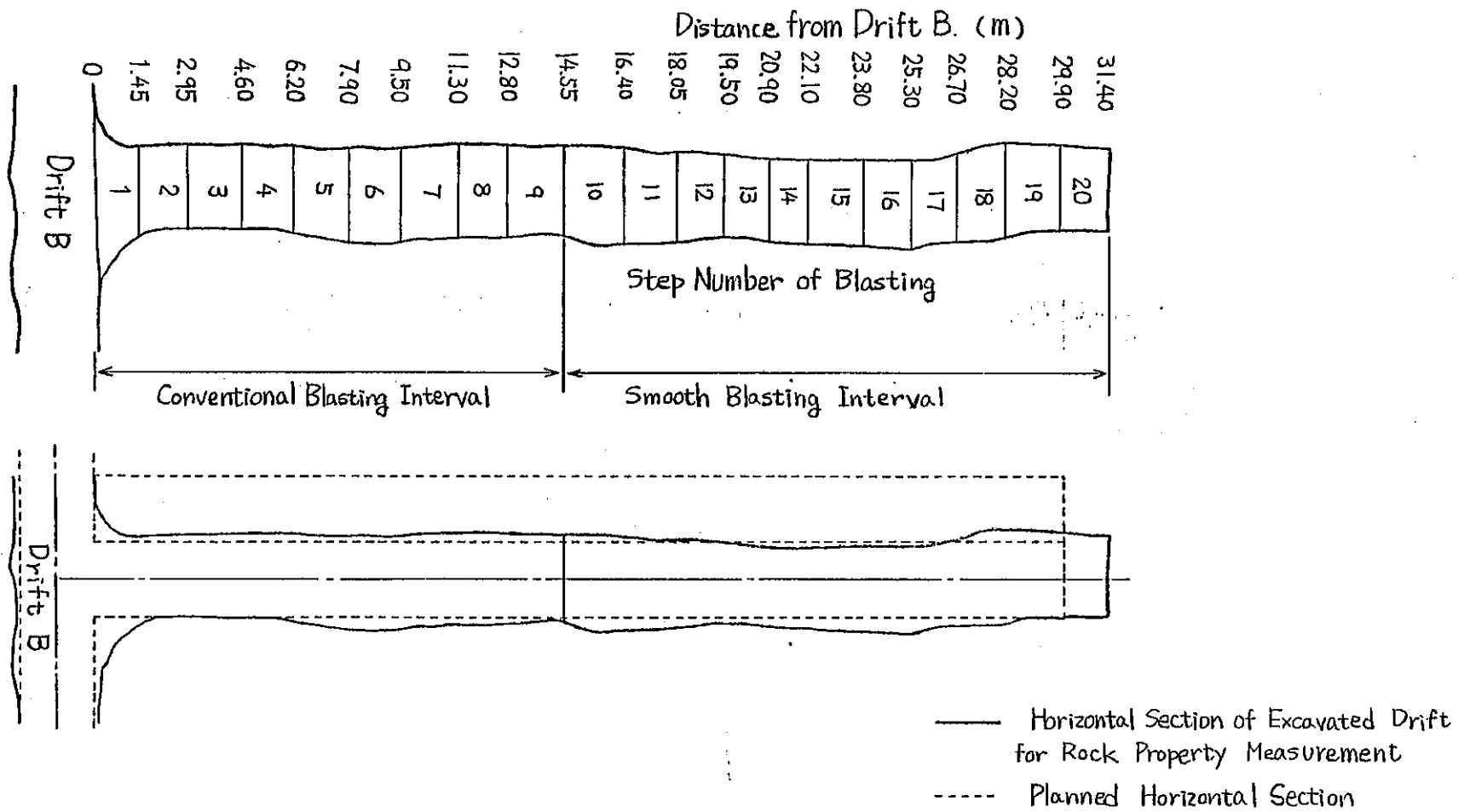


Fig. 2-7 Results of Face Advancing and Excavation of a Drift for Measurements of Rock Properties.

た。したがって、普通発破、制御発破の掘進能率に関しては、両者に明確な差異を求めることは難しいが、制御発破は普通発破と比べ、数多く穿孔したため、その分だけ時間がかかることになり、やや能率が落ちると言える。

Fig. 2—7 に示した掘削形状からわかるように、制御発破の平面掘削形状は普通発破のそれとほぼ同じであったが、掘削後の空洞壁面は制御発破を実施した区間の方が平滑であった。

第3章 空洞開削時の岩盤挙動の調査

3.1 目的

高レベル放射性廃棄物を人間環境から隔離する施設としての地層処分場は地下数百 m から千 m の深さに設けられるものとされている。その処分場は立坑および横坑を開削することにより造られるものである。それら立坑、横坑の開削は主に金属鉱山あるいは石炭鉱山で経験深く行われている。しかし、それら鉱山の目的は鉱石あるいは石炭を採掘することであり、坑道の開削自体が目的ではない。したがって、十分な安全を確保することに主眼が置かれ、坑道の開削方法自体に十分な注意を払うことは相対的に低いものとなっている。

しかし、高レベル放射性廃棄物の処分場には、超長期に渡って、埋設した廃棄物からの放射性核種の放出を抑止し、または放出された核種の移行を抑止する性能が求められている。これらの抑止機能は種々のコンポーネントに期待されているが、そのうちの一つに坑道周辺岩盤内における地下水移行の抑止が挙げられる。すなわち、岩盤内に元々存在している割れ目はともかくとして、坑道開削により生じる周辺岩盤内の亀裂は地下水の移行経路を増大させるものであり、処分の目的からしてそれらはなるべく少なく、あるいは発生しないようにする必要がある。また、これらの亀裂は坑道周辺岩盤の力学的保持性能を劣化させるものであり、坑道内での人間の作業に危険をもたらさうる要因となるものである。

本調査はこの坑道の開削に伴う周辺岩盤の力学的、水理的变化(劣化)を特定の測定方法により測定し、岩盤の力学的、水理的挙動に関する考察を行うことを目的とするものである。具体的には、空洞を開削することによって誘起される岩盤内の種々の変化を計測し、空洞の安定性と密接な関係にある空洞周辺の劣化域の大きさと劣化程度を調査するとともに、周辺岩盤の透水性の変化を調査するものであり、岩盤の劣化や透水性の低下がどのような機構で発生するのかを明らかにするための一助とするものである。また、発破工法としては普通発破工法と制御発破工法の両者を用いることとし、両者による岩盤の劣化の程度に差があるのか、差があるとすればどの程度のものであるのかを明らかにすることも目的とした。

空洞開削に伴う劣化域の発生等の岩盤の力学的挙動の把握のために行った調査方法は空洞開削前後の孔内載荷試験と掘進時の岩盤内のひずみ測定である。また、水理的挙動の調

査方法は試錐孔を利用したダブルパッカ透水試験法である。

3.2 岩盤条件と計測位置の選定

既存試験場あるいはその近傍で過去実施された調査・試験により得られている試験対象岩盤の力学的・水理的データによると、当該地域の岩盤はRQD約95%、一軸圧縮強度59MPa、静弾性係数21GPa、ポアソン比0.17、透水係数 10^{-12} m/sであり、連続性の良い中硬岩に属し、難透水性であることがわかる。

また、初期応力測定結果からは最大主応力7.5MPaが得られており、かぶり圧とほぼ同程度のそれほど大きくない値となっている。したがって、中硬岩中で空洞開削の影響を検出するためには、できるだけ開削する空洞の近傍で計測を行う必要がある。また、透水試験も空洞の近傍が大きく変化するという研究例があり、この面からも空洞の近傍での測定が望まれる。したがって、Fig. 3—1に示す箇所で計測・試験を実施することにした。また、それぞれの調査用試錐孔は普通発破と制御発破の影響の差異を捉えられるよう、両発破区間で等しく、Fig. 3—2に示す位置に配置した。ただし、測定領域の岩盤が連続性に富んでいても、推定不能な局所的割れ目等の存在は当然予想されることであり、ボーリングコアの観察結果を参考にして、計測位置を最終決定した。

3.3 岩盤挙動調査用試錐孔の掘削およびコア調査

岩盤挙動調査用試錐孔のレイアウトをFig. 3—2に示した。このうちで、④・⑧孔は透水試験、孔壁観察、孔内載荷試験に、②・⑥孔は孔軸方向のひずみ測定に、③孔は孔軸方向を含む三次元のひずみ測定に、①・⑤・⑦孔は鉛直方向の地圧測定に用いる孔である。

各孔とも径76mmで、①～③・⑥・⑦孔は長さ15m、④・⑧孔は長さ15.5m、⑦孔は長さ14.3mである。①・③・⑤・⑦孔は傾斜0°、②・④・⑥・⑧孔は傾斜-1～2°とした。

A空洞掘削後これら各孔の穿孔を実施した。⑦孔を除く各孔はC空洞の開削により、傾斜のチェックが可能であった。それによると、①～⑥・⑧孔の実測傾斜値としてそれぞれ、+0.08°、-2.3°、+0.21°、-3.9°、-0.13°、-2.0°、-2.3°が得ら

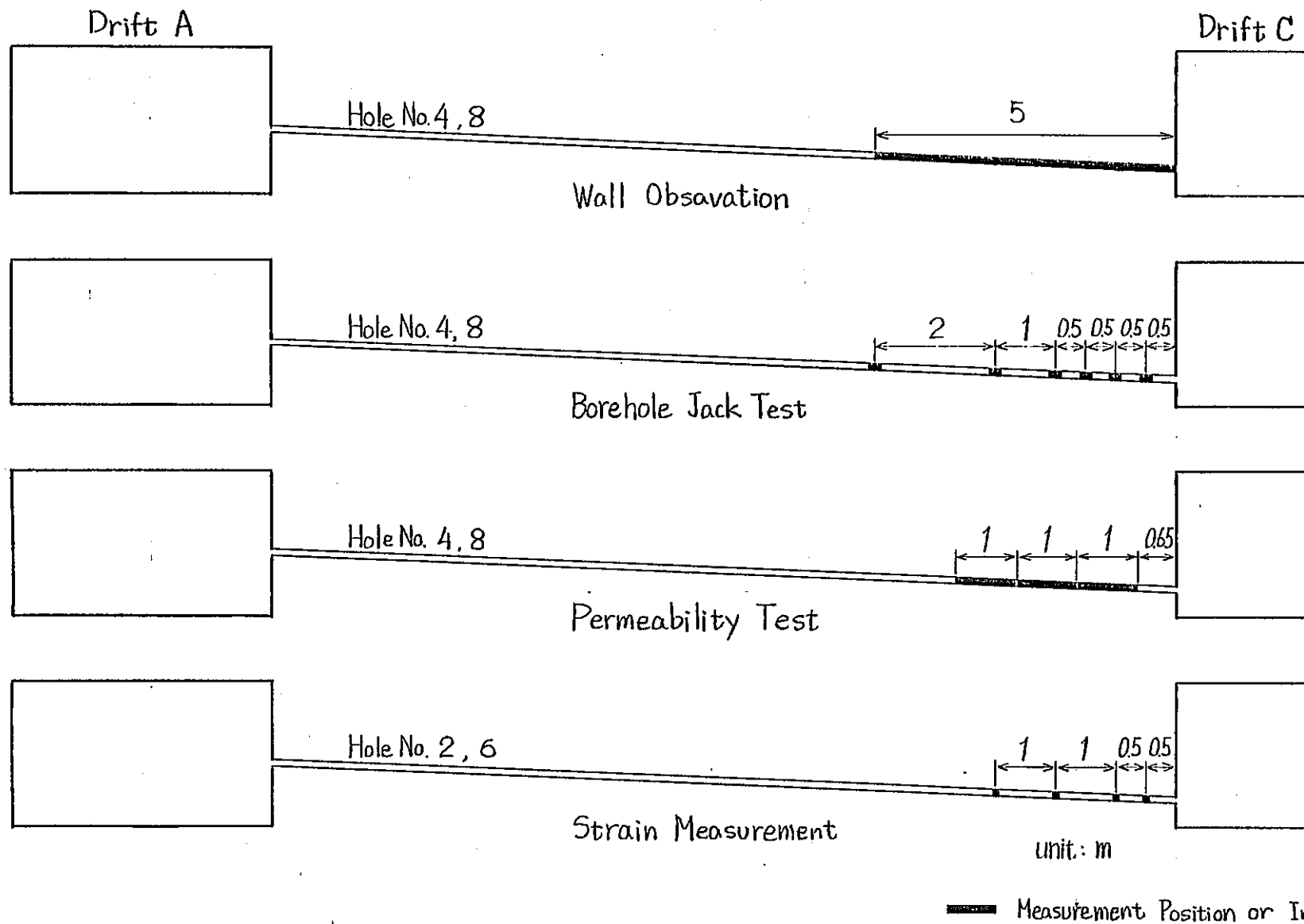


Fig. 3-1 Location of Measurement of Mechanical and Hydrological Properties in Boreholes.

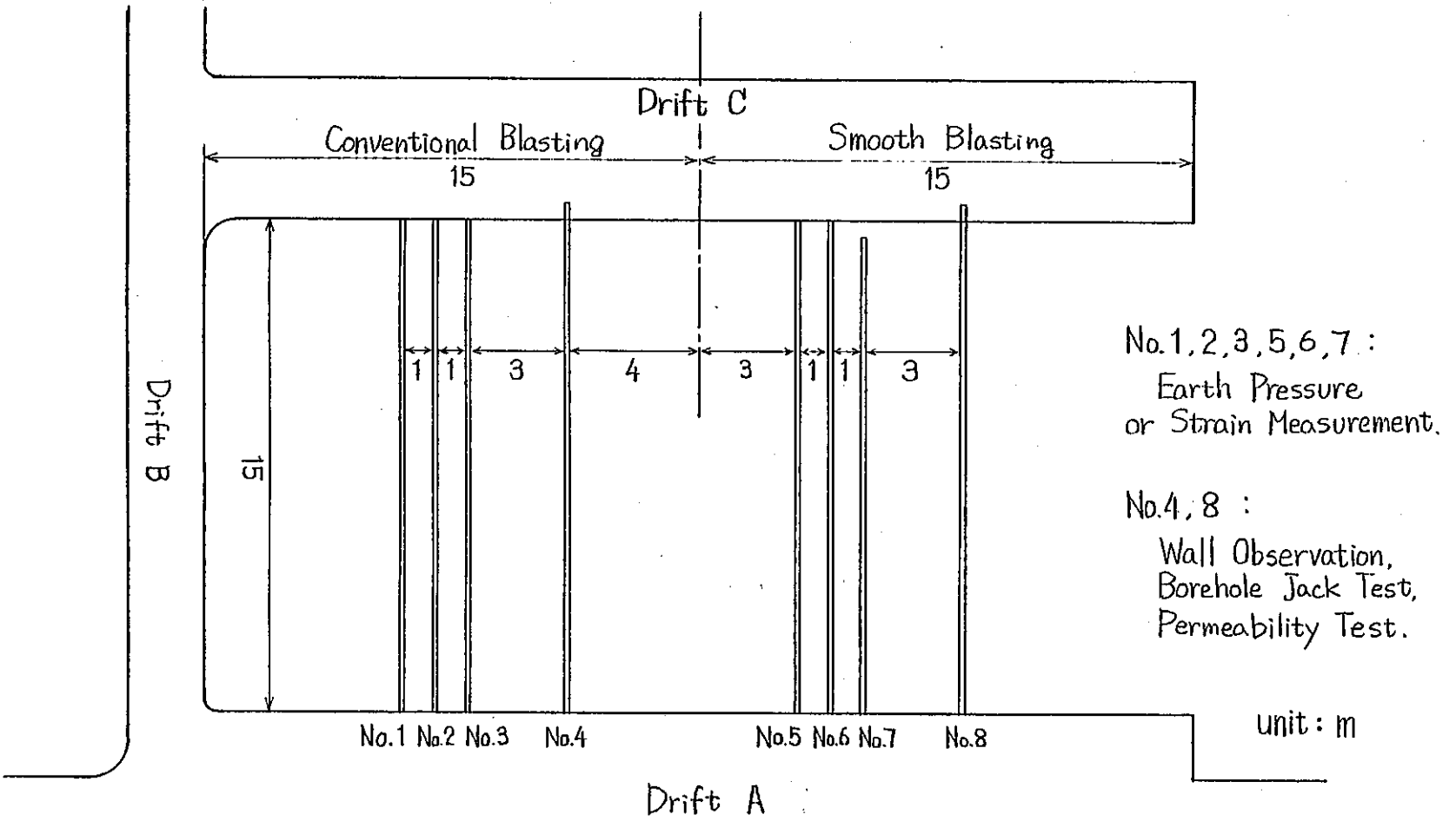


Fig 3-2 Layout of Boreholes for Measurement of Mechanical and Hydrological Properties of Hosokura Tuff.

れた。④孔は予定傾斜に対して約 2° 程大きい値であった。

Fig. 3—3にコア調査結果を示した。同図には主に割れ目についての記載を行った。割れ目は従来の調査と同様、充填物を伴うか否か、充填物は粘土か方解石（石英）かあるいは両者を共に伴うものかで分類した。また、破碎されていて調査の不可能の箇所は破碎部として示した。穿孔に伴って生じたと思われる人工的割れ目は記載から除外した。同図からわかるように、各孔とも割れ目は10～15m間に多い。特に、粘土を伴う割れ目あるいは破碎部が同区間に多く認められ、C空洞壁面から0～5m間が断層等の不連続面あるいはせん断帯等の弱帯の分布するところであると推定される。

同図で示されるDの箇所は石英安山岩熔岩の岩相の箇所である。同岩は主に破碎状、一部自破碎状を呈している。②孔および⑦孔の3m付近で認められるものは凝灰角礫岩中の石英安山岩の巨礫と思われる。②～④孔の11mから15m付近の石英安山岩の分布が断層等の弱帯の分布とほぼ一致しているのが認められる。岩相の相違する部分が後の地質構造運動で相対的に弱帯となり、断層等を生じたものとも解釈される。

Fig. 3—4に全孔のRQDを示した。⑧孔を除いて、10～15m付近、すなわちC空洞近傍では割れ目等の存在のためにRQD値が低いことがわかる。

3.4 孔壁調査

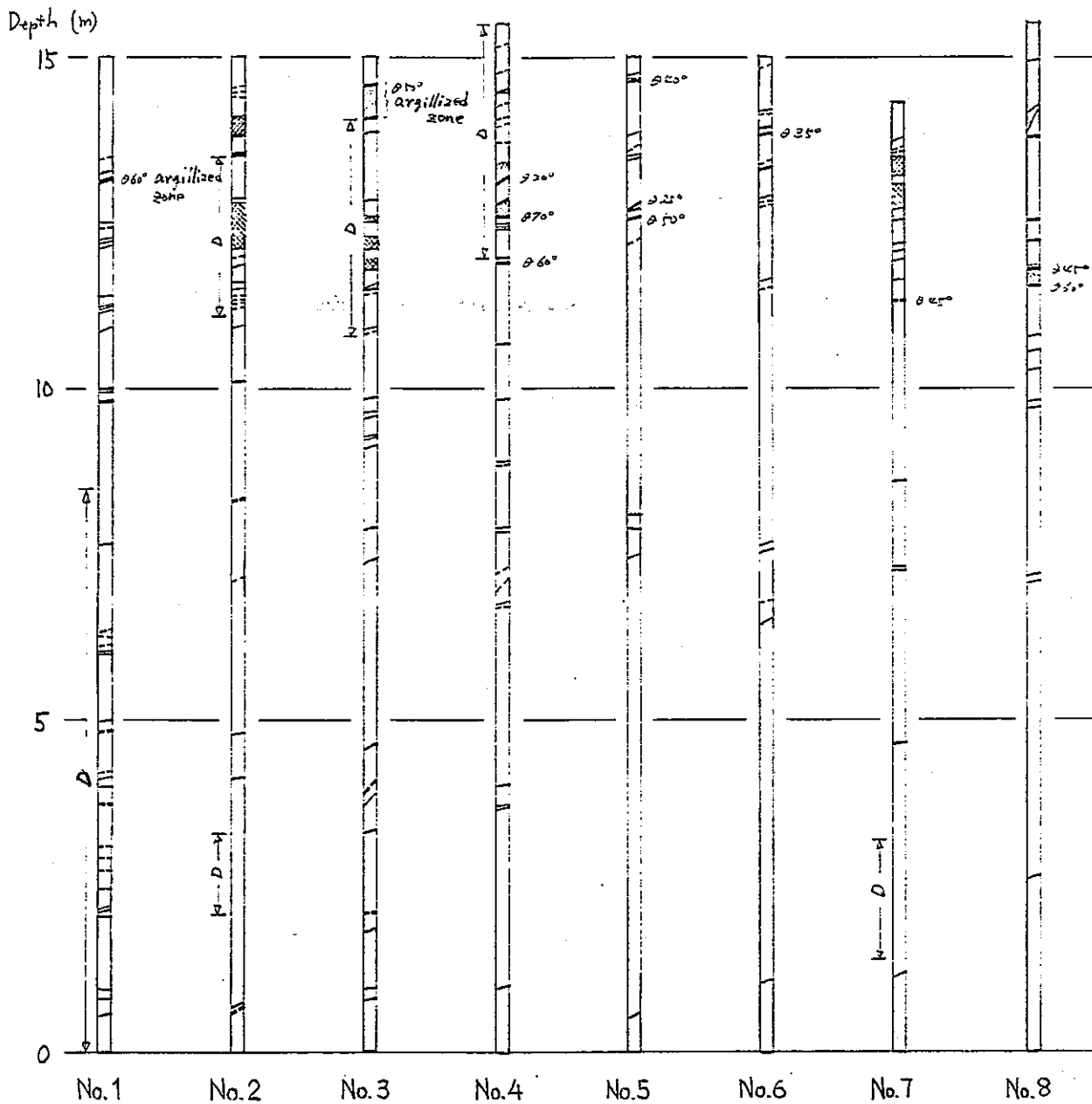
3.4.1 目的

Fig. 3—1・2に示す④・⑧の2孔を用いて、C空洞開削前後において孔壁面に認められる割れ目がボアホールテレビを通してどのように観察されるか、あるいは開削後に新たな割れ目がどのように観察されるかを調べ、空洞の開削に伴う岩盤挙動の調査の一助とすることを目的とした。④孔は普通発破を、⑧孔は制御発破を対象とした孔である。また、両孔とも深度10～15m間を観察対象深度とした。

3.4.2 方法

用いた機器は昭和56年度堆積岩に関する原位置試験報告書において示した機器と基本的に同じである。

観察方法はボアホールテレビによる孔壁側面観察で、対象孔がほぼ水平であるので、観



Legend

D A Part of Dacite, partly brecciated; the rest, Dacitic Tuff Breccia

— fracture filled with clay

— fracture filled with clay and Calcite (and/or Quartz)

— fracture filled with Calcite (and/or Quartz)

— fracture without infillings

■ crushed part

- note. 1. Pyrite crystals are often observed within above fractures.
2. Artificial fractures which were occurred when drilling are not shown.
3. Dips show the maximum inclination against the orientation of holes.

Fig 3-3 Result of Core Observation Obtained from Holes Used for Hydrological and Mechanical Tests.

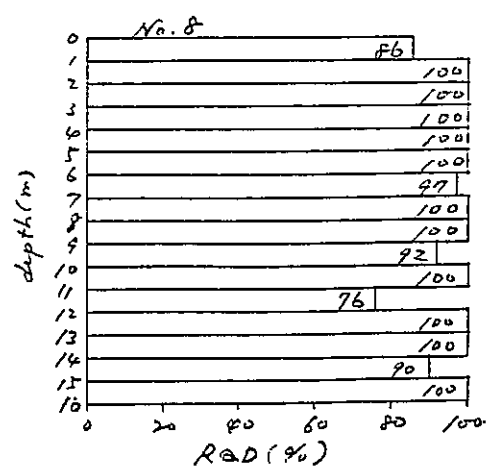
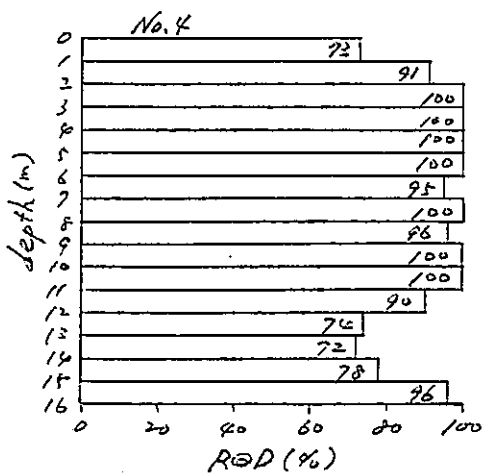
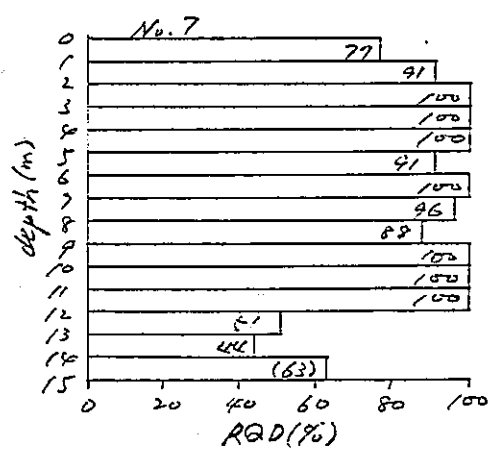
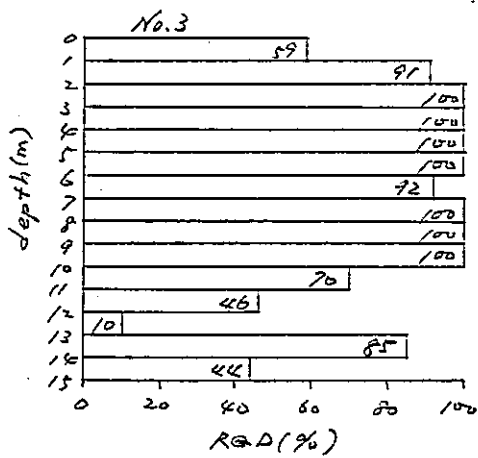
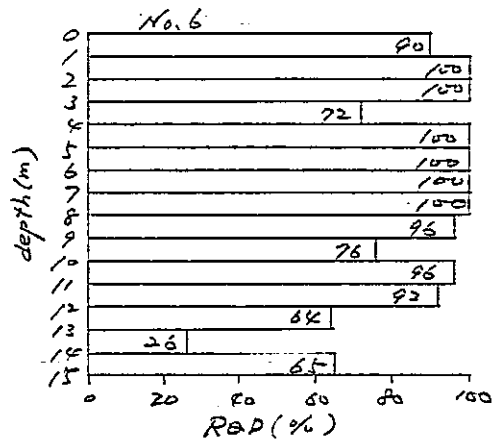
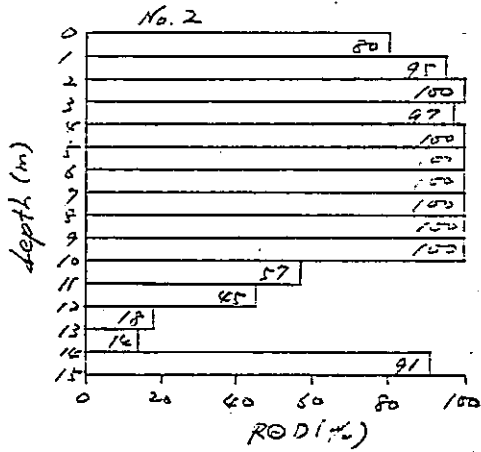
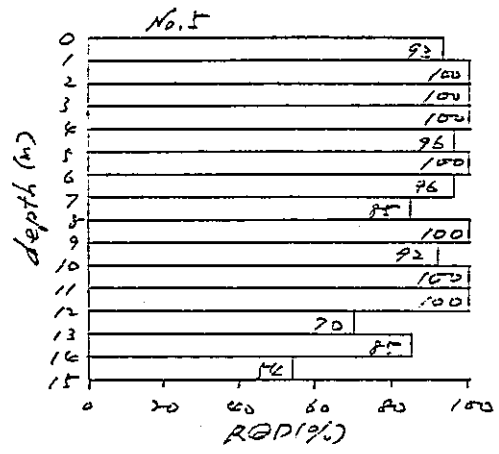
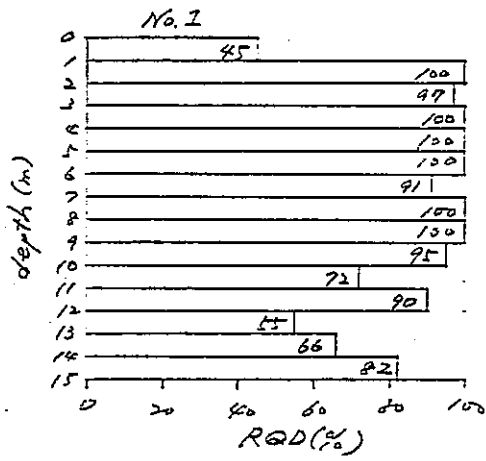


Fig. 3-4 Rock Quality Designation (RQD) of Drill Cores.

察角度を約40°とした孔壁天端観察を行った。

対象とした部分をカメラゾンデを通してビデオテープに収録し、全対象箇所を観察終了後ビデオテープを写真に変換し、それをもとに孔壁の詳細なスケッチを行った。以下に述べる観察結果はこのスケッチをもとにしたものである。

3.4.3 結果および考察








Fig. 3—5・6にそれぞれ④・⑧孔の観察対象全区間の孔壁観察スケッチを示した。両図とも開削前後の観察データを併せて示した。孔壁観察結果はボアホールテレビを用いて分類可能な範囲で示しており、割れ目については充填物を伴うものと伴わないもの、礫の境界、開削により生じた割れ目で分類した。また、壁面状態として剝離の部分とせん断部分を示した。開削後に生じた剝離部は別個に示した。一方向の壁面データのため、割れ目の走向、傾斜は不明である。孔壁観察結果をコア調査結果と比較すると、④孔では深度1.2 mから奥の部分の割れ目や弱帯が良く一致する。⑧孔でも割れ目の位置や本観察でのせん断部とした箇所とコア調査での破砕部とした箇所が良く一致する。

Fig. 3—7・8に④・⑧孔の深度1.4～1.5 m間で、掘削前後で変化が認められた箇所のスケッチを拡大して示した。これらは全て、開削後に新たに肉眼により変化が認められた箇所である。これら以外にもFig. 3—5・6で示した剝離部およびせん断部と判断した箇所ですらに剝離等が生じている箇所もあると思われるが、それらは本観察では識別が不可能であり、それらについては示していない。1.4 mより浅い区間では変化は認められなかった。

これらの図から、開削前後で一部で微小割れ目と剝離が生じたのが認められる。開口部は認められていない。これらの生成要因として、開削に伴う応力解放と開削時の発破に伴う衝撃および経時的な岩質の劣化を挙げることができる。微小割れ目は前二者の要因で、剝離は後二者の要因で主に生じたと推定される。これらの変化の程度は小さく、脆性的な本凝灰角礫岩の特性が良く示された結果であると判断される。

3.5 水理的挙動調査

3.5.1 調査方法

- Legend**
-  Boundary of Breccia
 -  Fracture without Infillings
 -  Fracture with Infillings
 -  Artificial Fracture Occurred due to Excavation
 -  Exfoliation Zone
 -  Exfoliation Zone Occurred after Excavation
 -  Shear Zone

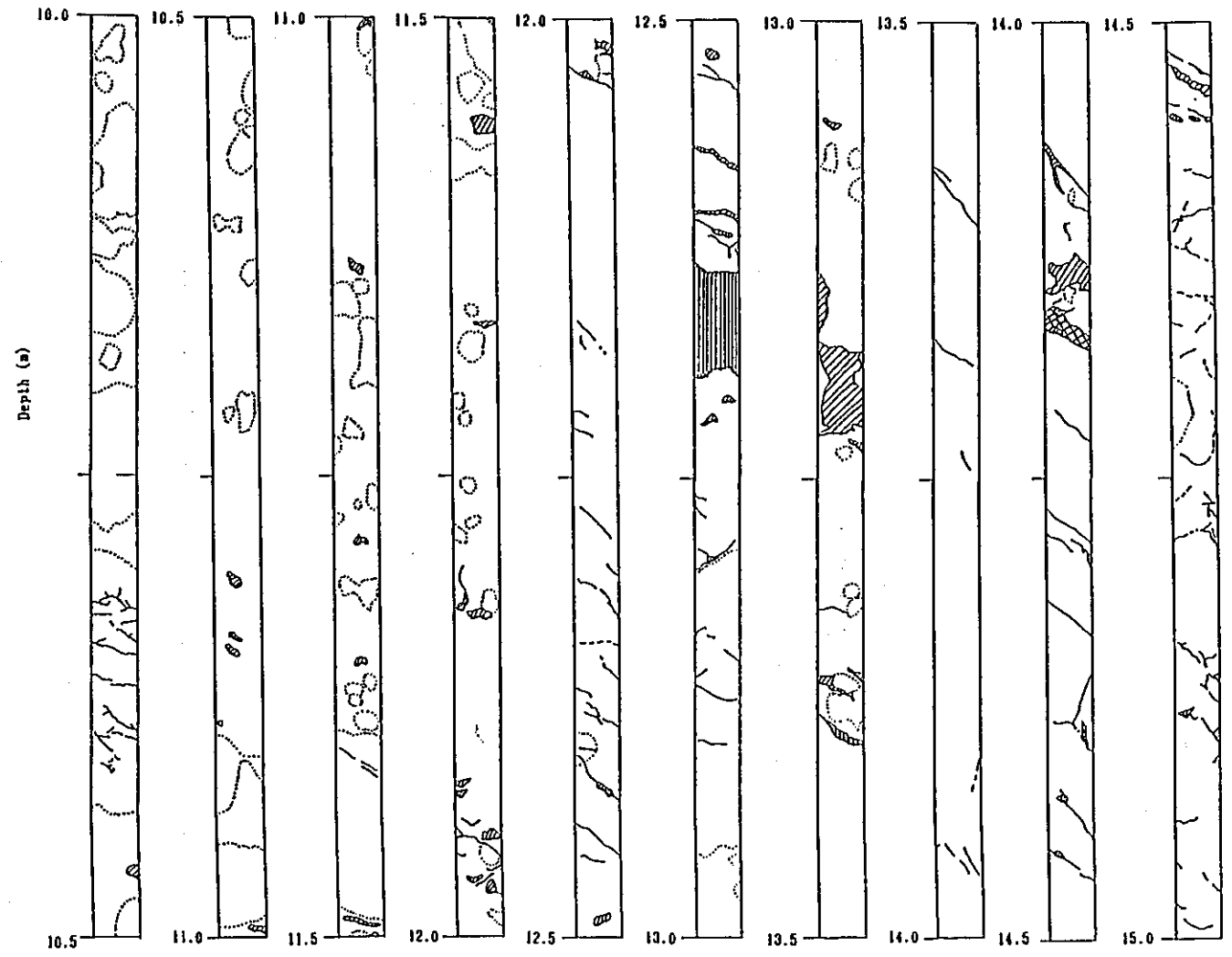


Fig 3-5 Analytical Sketches of Hole No. 4.

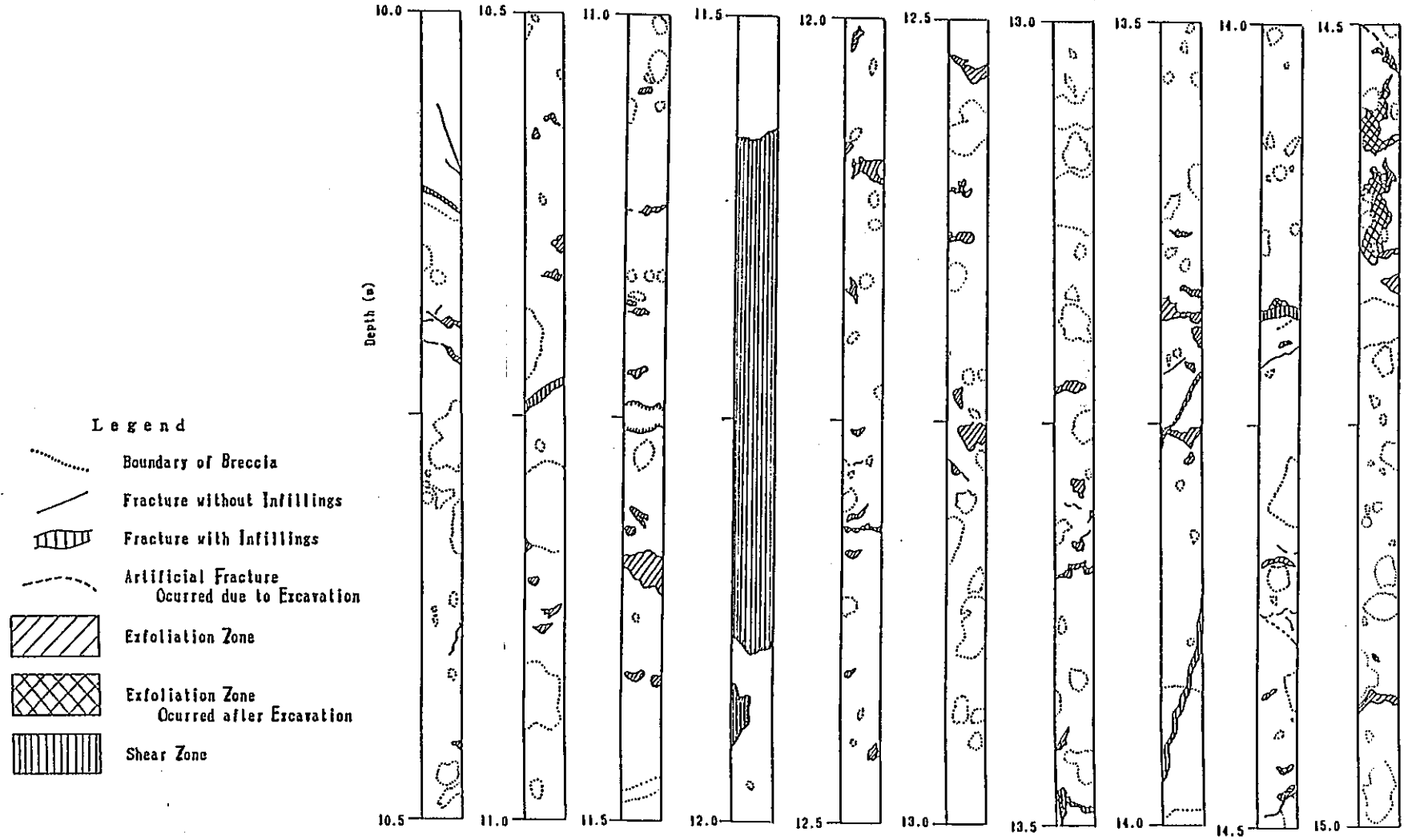
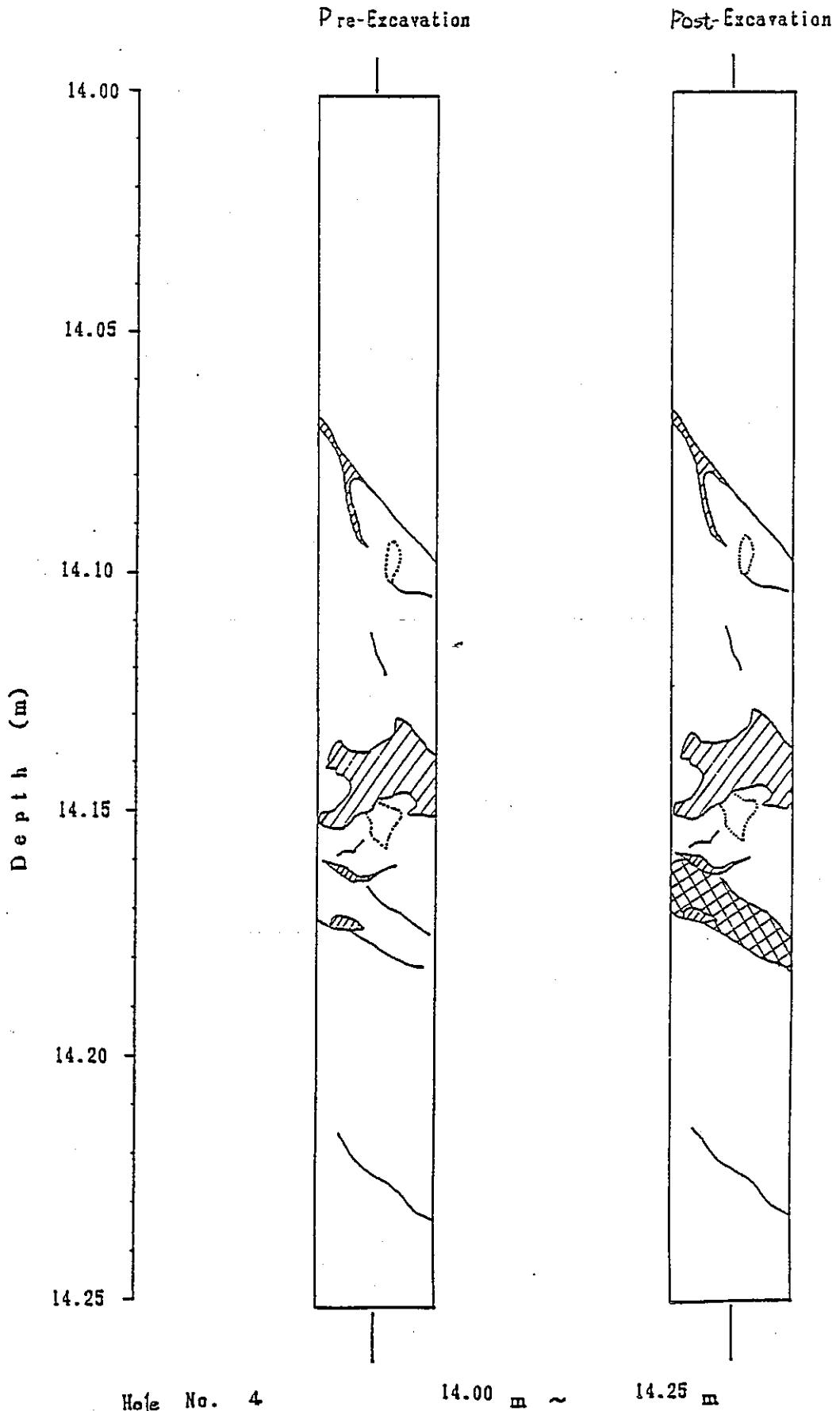
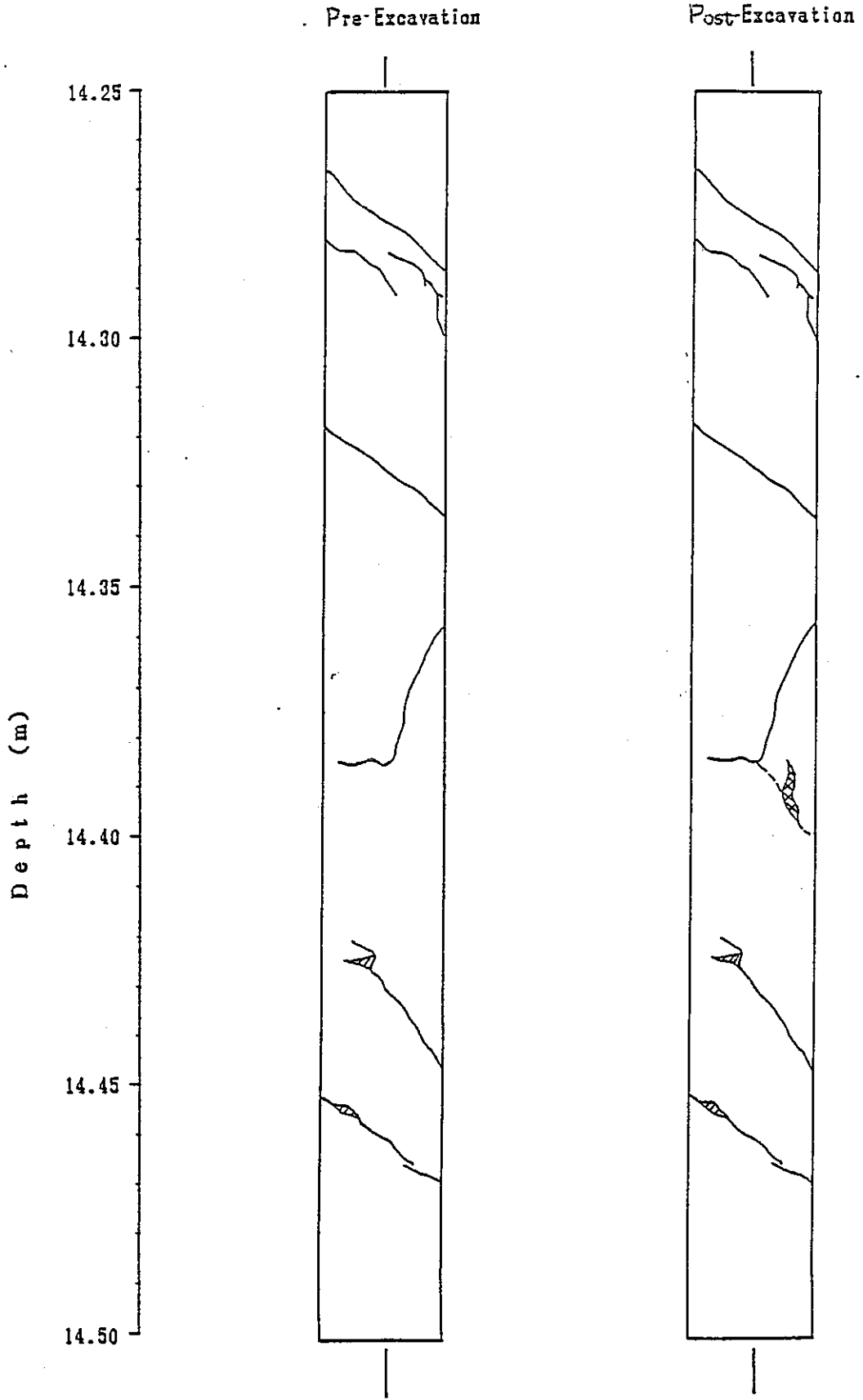


Fig 3-6 Analytical Sketches of Hole No. 8.



note : Legend is the same as that in Fig 3-5

Fig 3-7 (1) Comparison of Analytical Sketches of Hole No.4



Hole No. 4

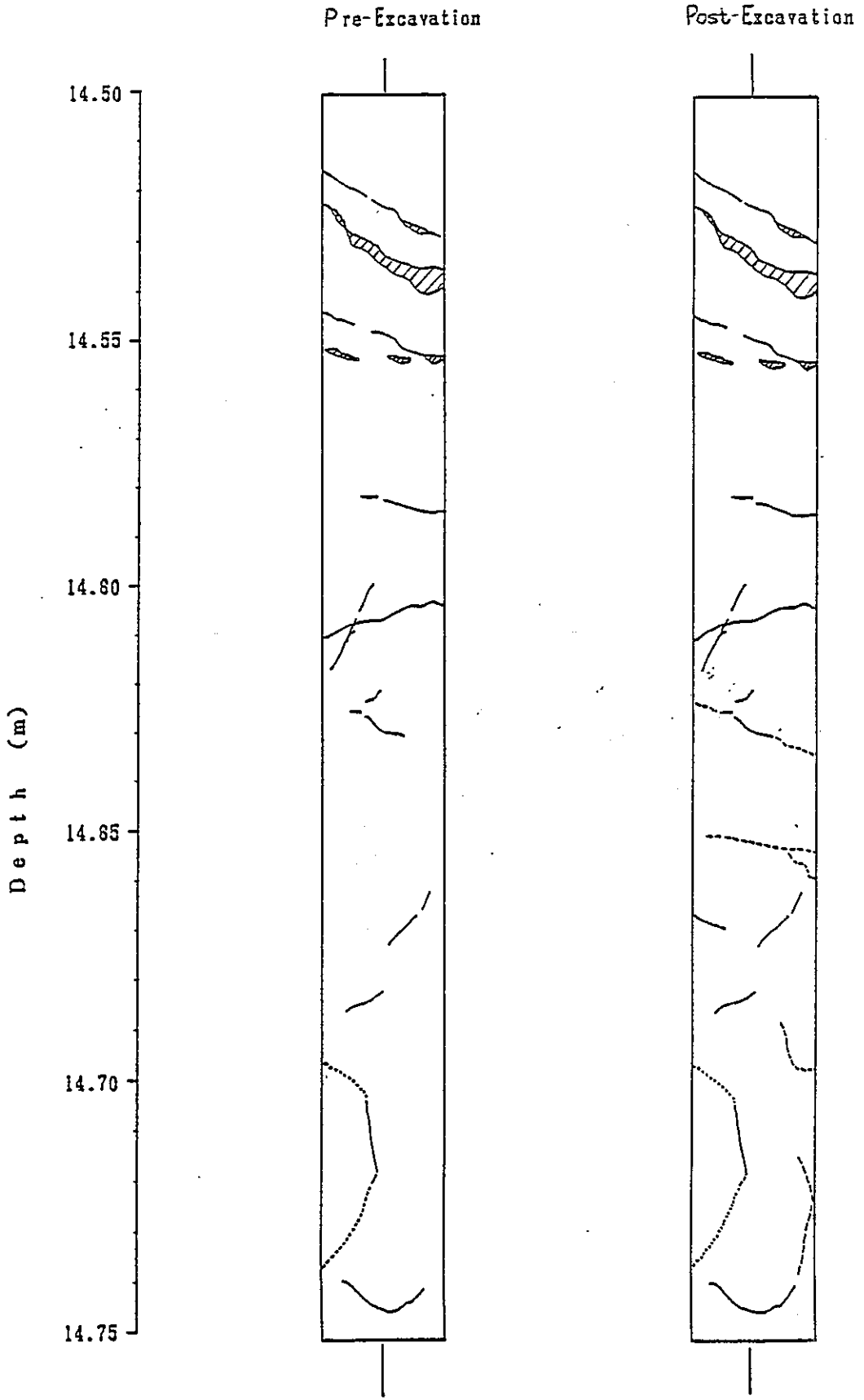
14.25 m ~

14.50 m

note : Legend is the same as that in Fig 3-5

Fig 3-7 (2)

(Cont'd)



Hole No. 4

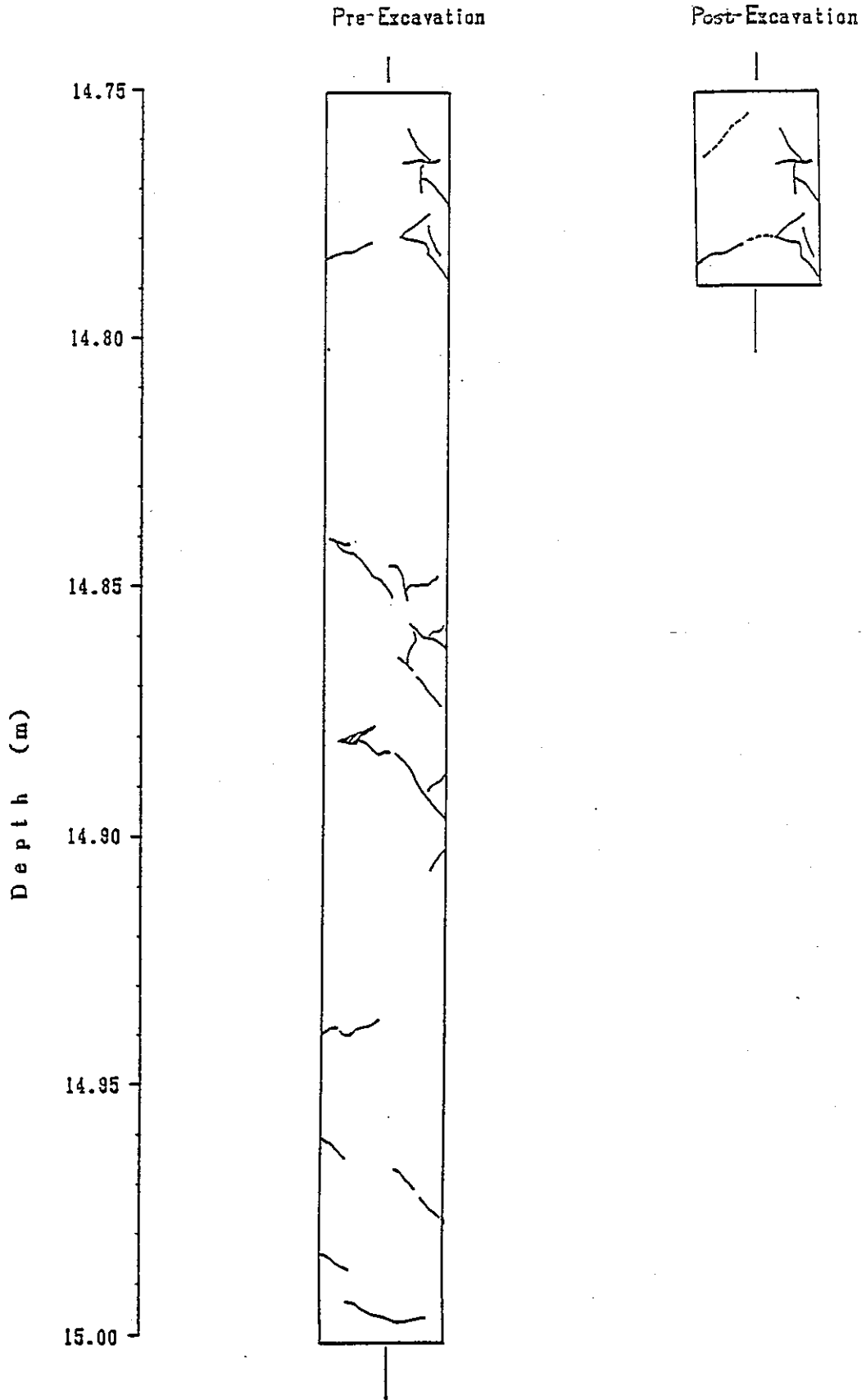
14.50 m ~

14.75 m

note : Legend is the same as that in Fig 3-5

Fig 3-7 (3)

(Cont'd)



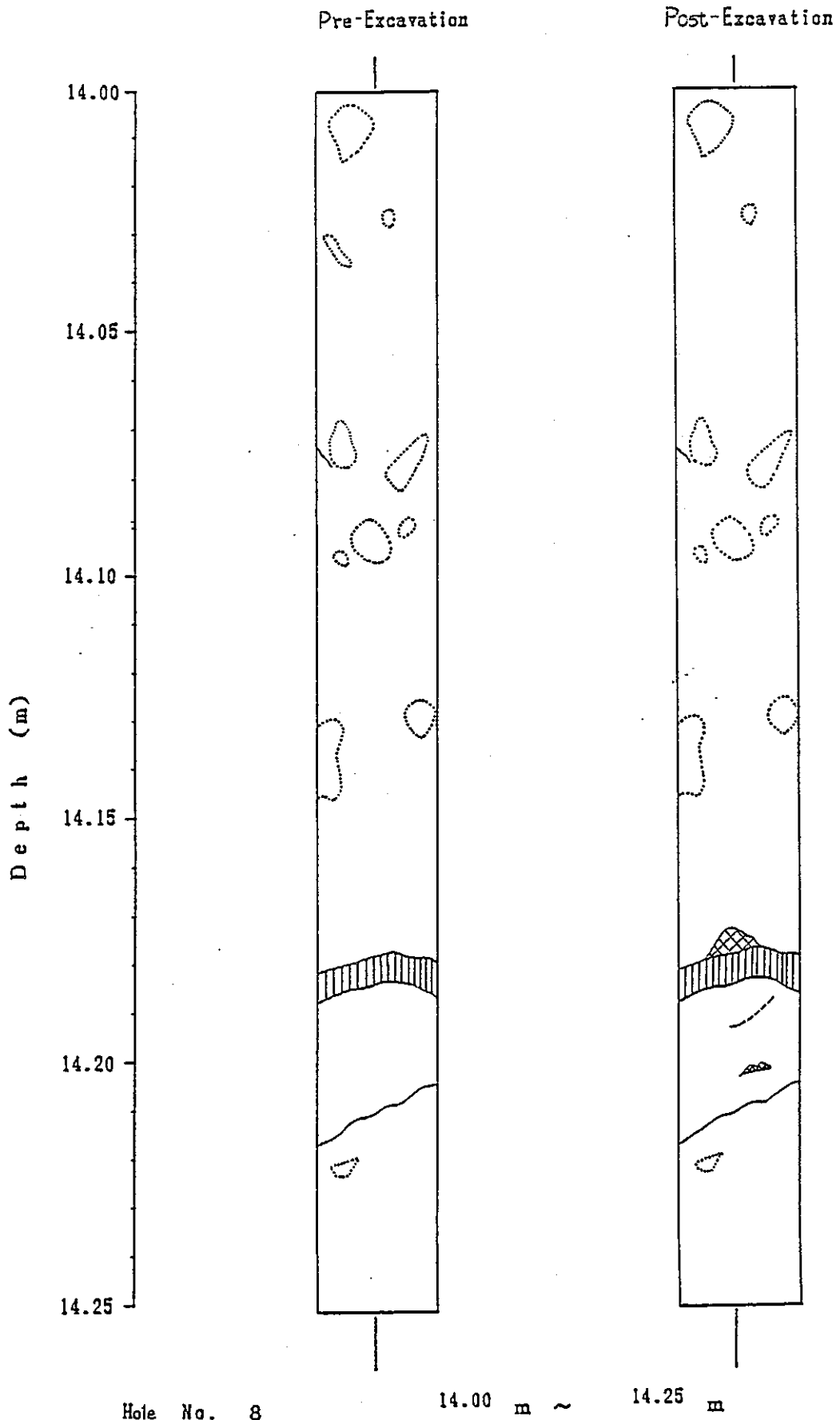
Hole No. 4

14.75 m ~ 15.00 m

note: Legend is the same as that in Fig 3-5

Fig 3-7 (4)

(Cont'd)

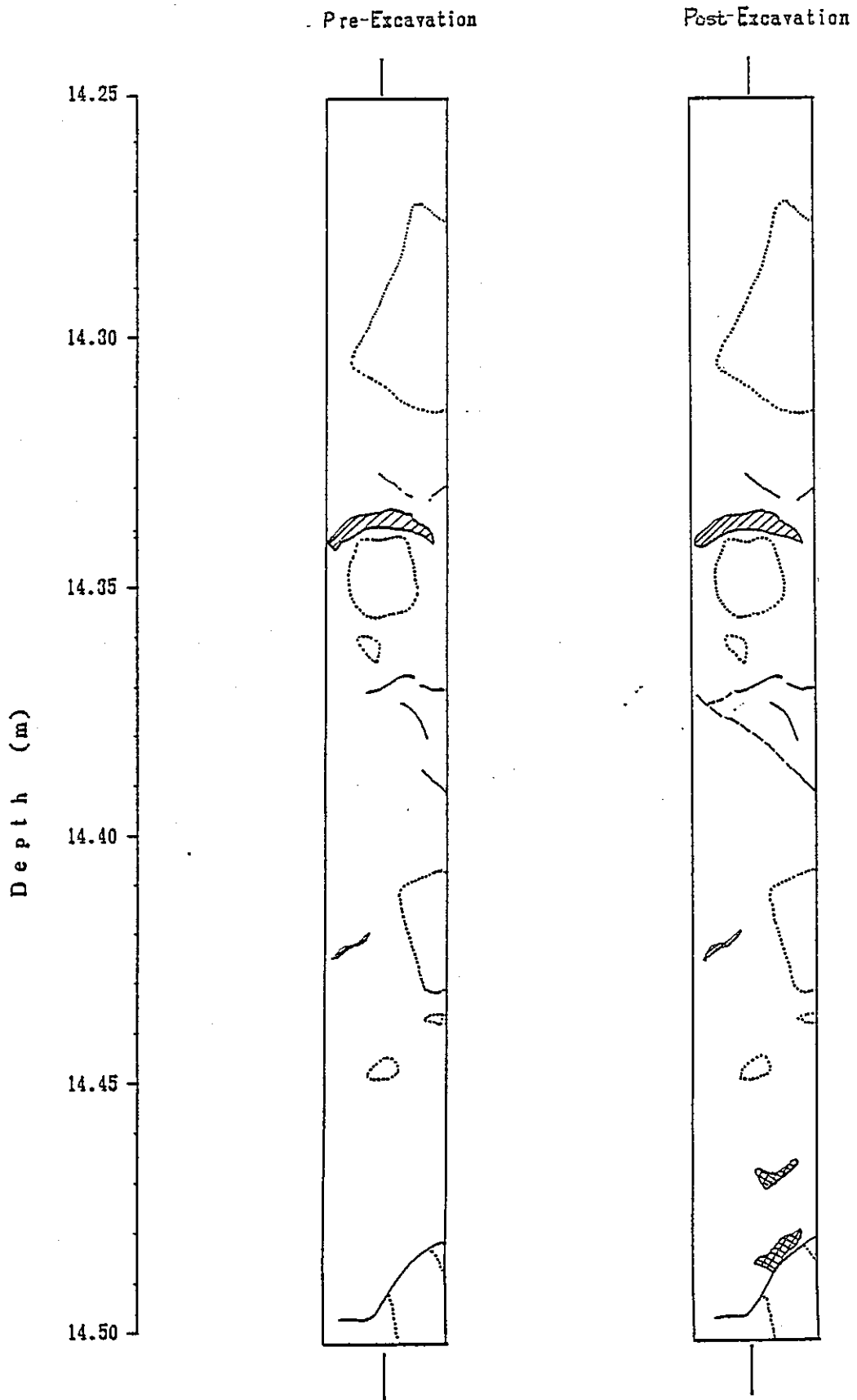


Hole No. 8

14.00 m ~ 14.25 m

note : Legend is the same as that in Fig 3-5

Fig 3-8 (1) Comparison of Analytical Sketches of Hole No.8



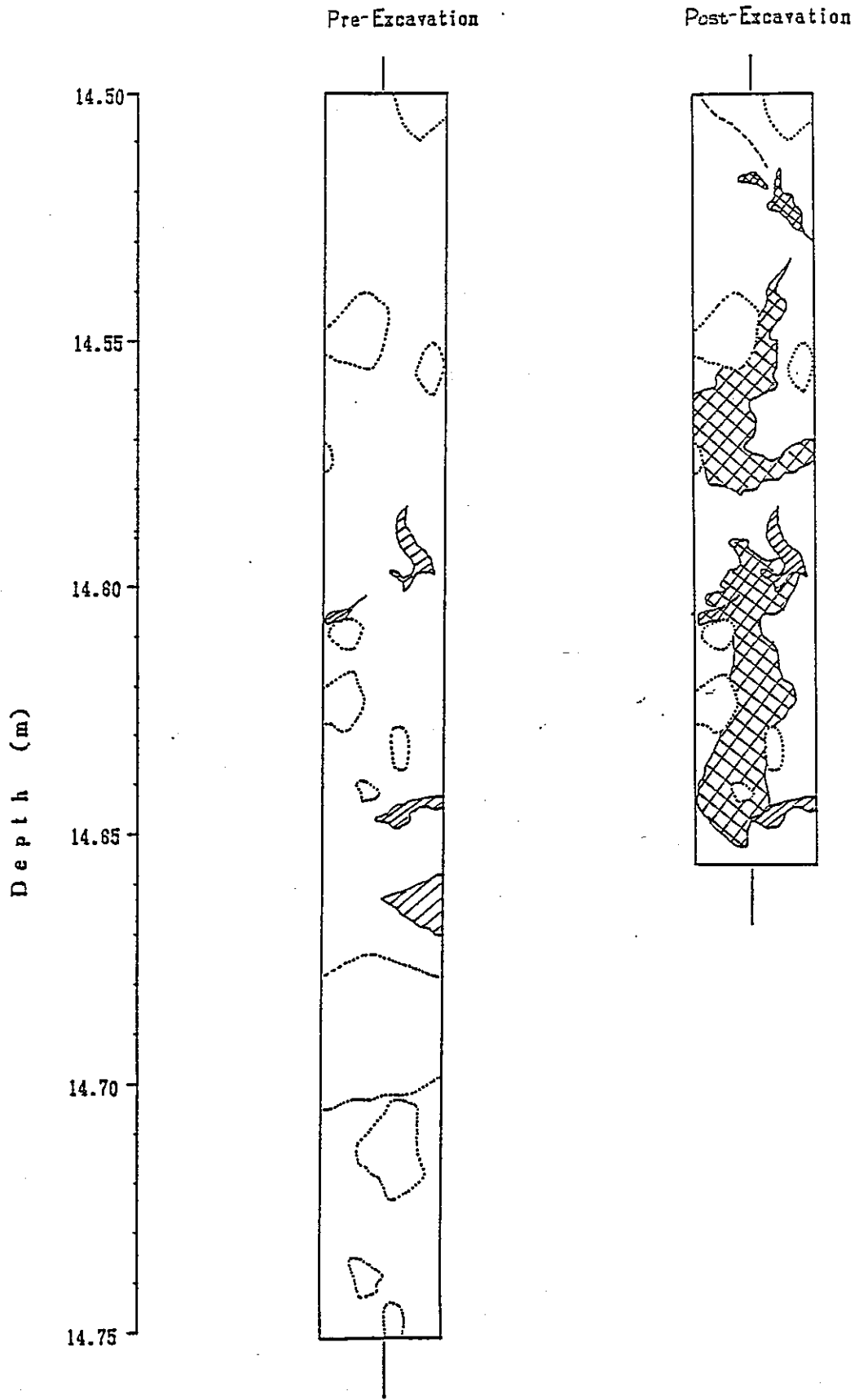
Hole No. 8

14.25 m ~ 14.50 m

note : Legend is the same as that in Fig 3-5

Fig 3-8 (2)

(Cont'd)



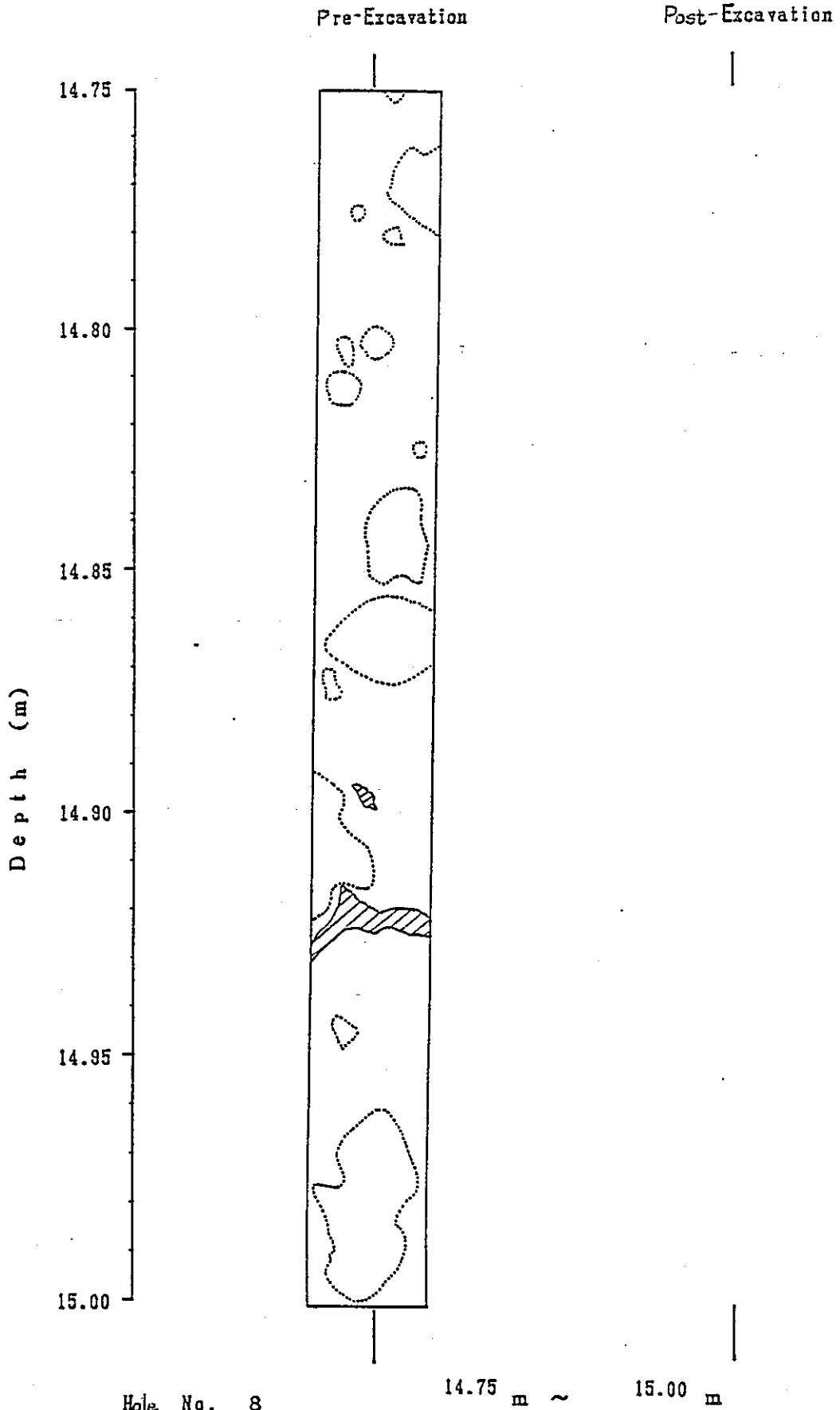
Hole No. 8

14.50 m ~ 14.75 m

note: Legend is the same as that in Fig 3-5

Fig 3-2 (3)

(Cont'd)



note: Legend is the same as in Fig 3-5

Fig 3-8 (4)

(Cont'd)

水理的挙動の調査は④・⑧孔を対象としたダブルパッカ透水試験法で実施した。調査区間はFig. 3—1に示してある通り、両孔ともC空洞壁面から0.65～3.65 m間の1 mごとの3区間である。C空洞壁面からの0.65 mを残したのは、空洞開削後も同じ区間でダブルパッカ透水試験を実施するために最小限必要なパッカ設置区間が必要であったためである。したがって、孔壁面近傍を試験対象とすることは不可能であった。

本調査に用いた試験装置の系統図をFig. 3—9に示す。ダブルパッカ、流量測定装置として用いた微小流量計等の装置は既存試験場で従来使用してきたものと同じである。

透水試験は以下の方法で実施した。孔内の所定位置にダブルパッカを挿入し、パッカ圧を2.0～3.9 MPa (20～40 kgf/cm²) に保持した。次に、注入用ホースを介して加圧ポンプにより注水を行う。注入圧は孔口部分に取り付けた圧力計表示値を読み取り圧力値とし、加圧ポンプの圧力調整弁により注入圧を0.98 MPa (10 kgf/cm²) に設定した。既存試験場での1孔注入試験において、注入量が一定となるのに約1日を要したため、本試験における1区間の注入継続時間を注入開始後20～30時間とし、注入圧一定で注入量が定常状態に達したことを確認して注入を終了することとした。

試験区間の透水係数は定常注入時の注入圧および注入量を次式に代入して求めた。

$$k = \frac{Q}{2\pi L P} \ln \frac{L}{r} \quad \dots\dots\dots (3.1)$$

ここに、
 k : 透水係数 (m / s)
 Q : 注入量 (m³ / s)
 L : 試験区間長 (1 m)
 r : 試験孔の半径 (0.038 m)
 P : 注入圧 (m、例えば10 kgf/cm² = 100 m)

3.5.2 結果および考察

Fig. 3—10にコア調査結果と実施試験区間との関係を示す。パッカを正常に作用させるためには孔壁の健全な部分に設置する必要があるが、試験対象区間には粘土を伴う割れ目やせん断帯等の地質的弱帯が存在しているため、最終的な試験区間は図に示す位置とした。また、開削前後で試験区間が異なる部分が認められるのはC空洞の開削壁面がややA空洞側に寄ったことによりパッカ設置区間をずらさざるを得なかったためである。

Fig. 3—11に各区間の注入量-注入時間曲線を示す。Table 3—1には各試験区間の透

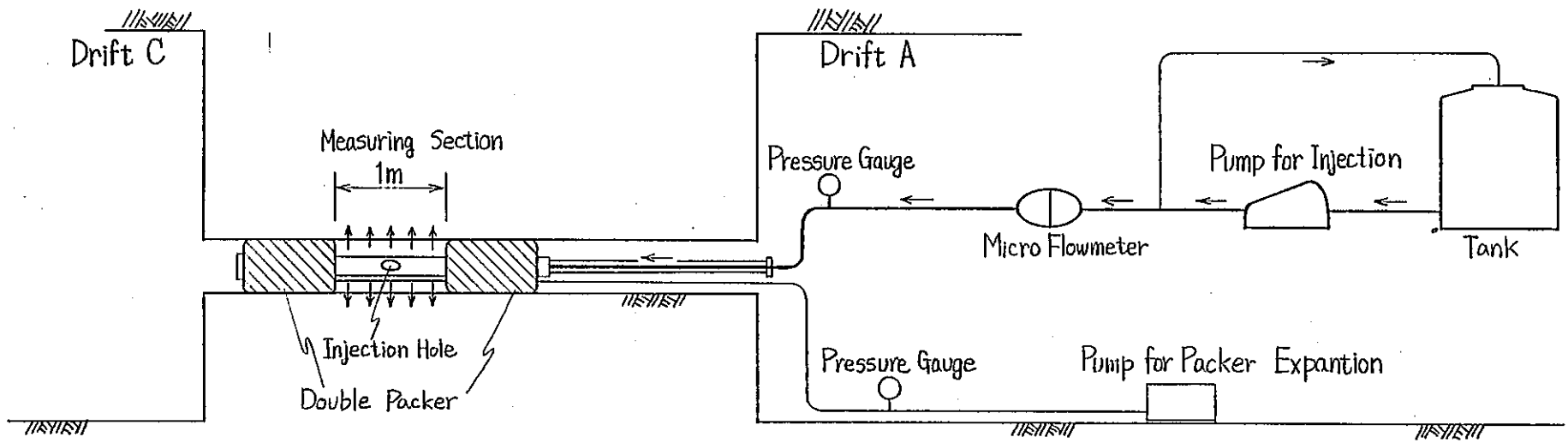


Fig 3-9 Schematic Diagram of Permeability Test.

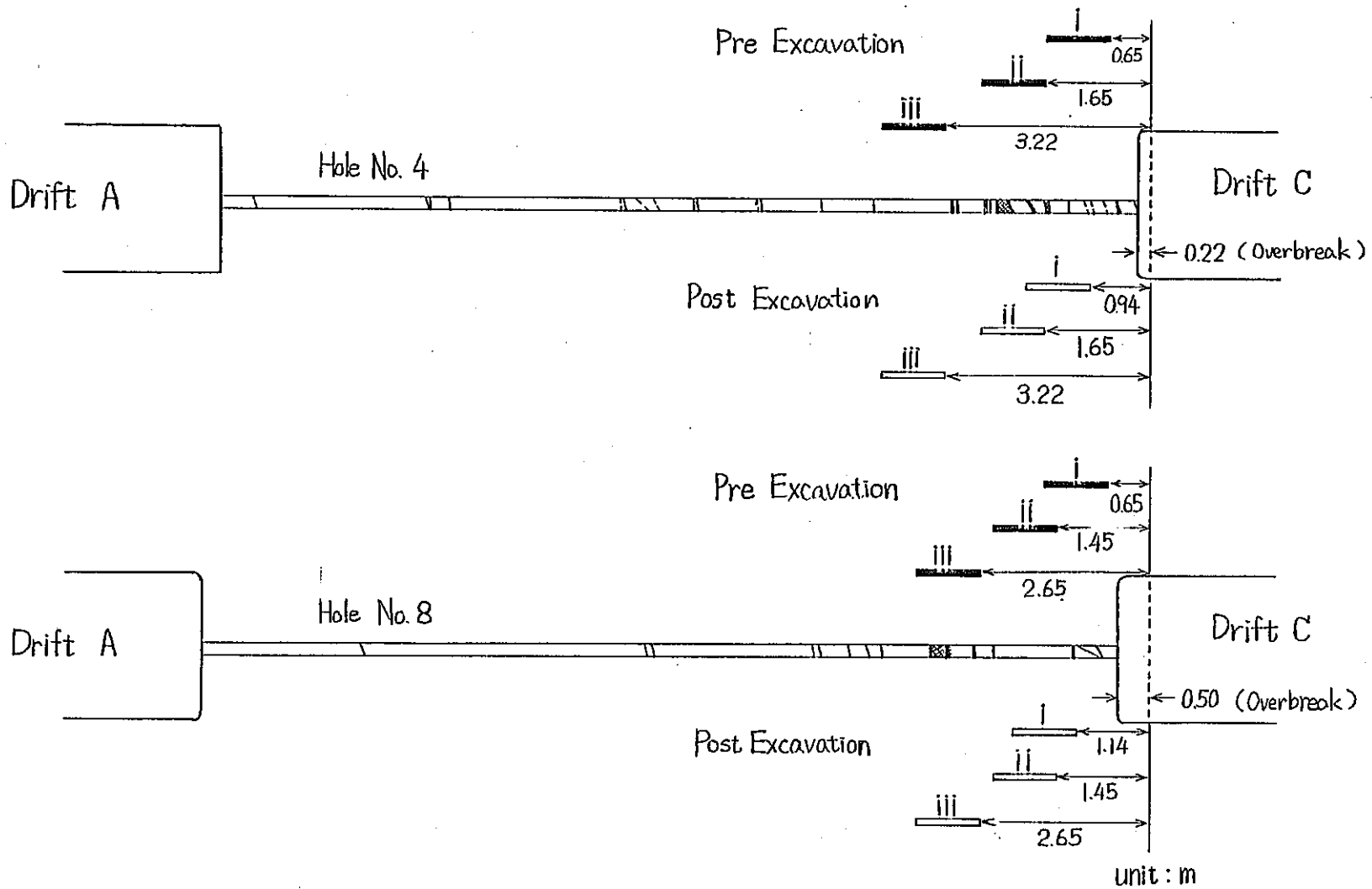


Fig. 3-10 Position of Injection Intervals in Each Permeability Test and the Comparison with the Result of Core Observation.

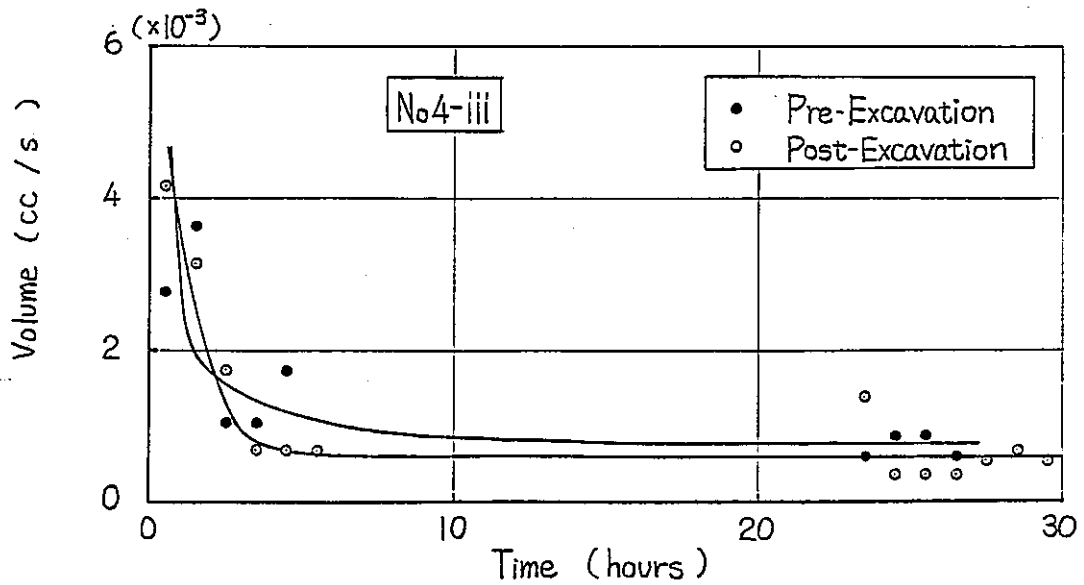
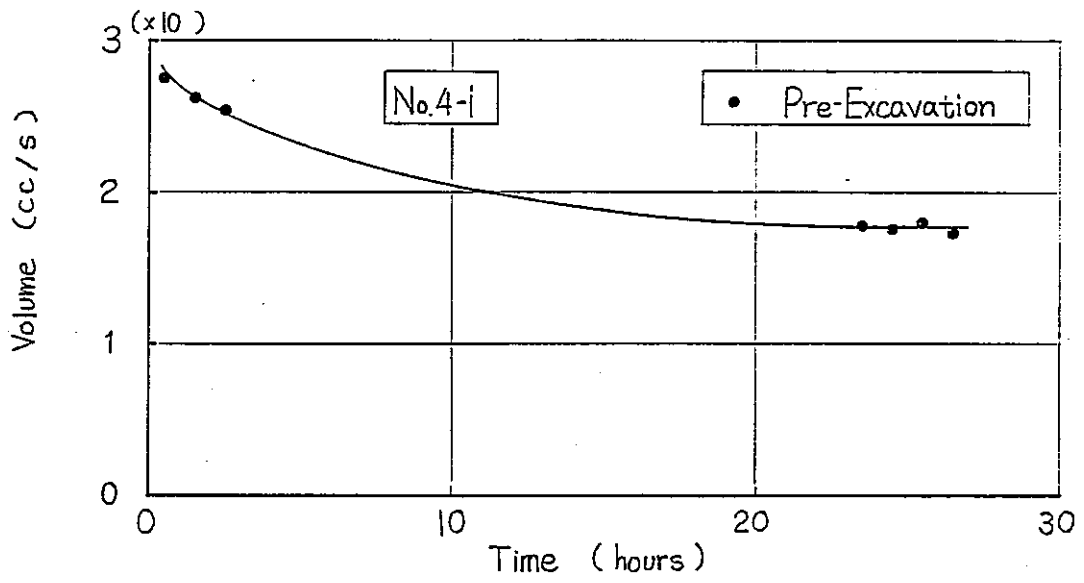


Fig 3-11 (1) Injection Volume Versus Time Obtained from Permeability Test.

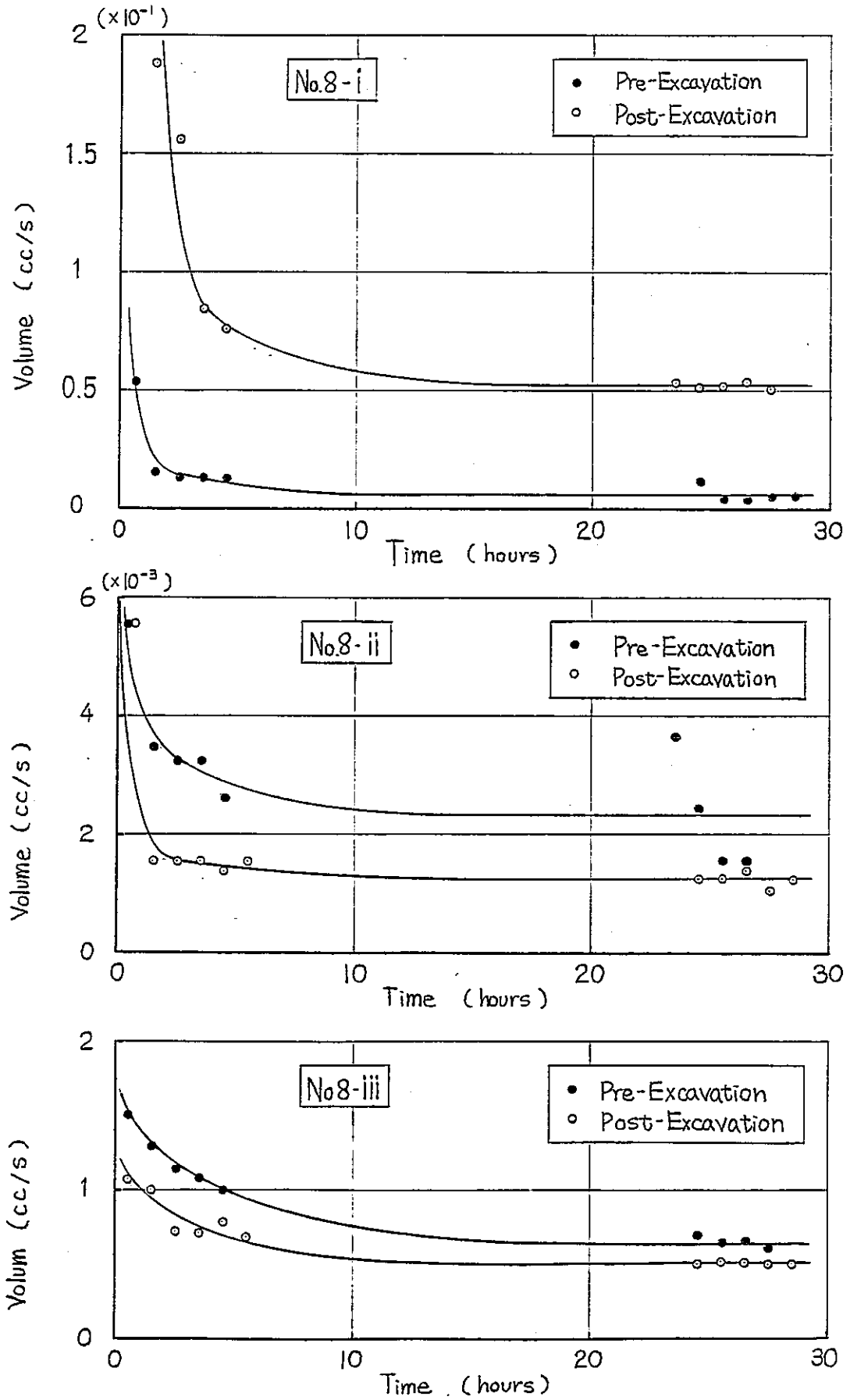


Fig 3-11(2) (Cont'd)

12
13

Table 3-1 Result of Permeability Test.

Position	Hydraulic Conductivity k (m/s)	
	Pre-Excavation	Post-Excavation
No.4 - i	9.4×10^{-8}	—
No.4 - ii	—	—
No.4 - iii	4.2×10^{-12}	3.2×10^{-12}
No.8 - i	3.3×10^{-11}	2.7×10^{-10}
No.8 - ii	1.2×10^{-11}	6.3×10^{-12}
No.8 - iii	3.3×10^{-8}	2.6×10^{-9}

水係数を示した。④孔の ii 区間は注水量が大きく、注入圧をあげることができなかつたため透水係数を求めることができなかつたものである。同じく、④孔の i 区間の開削後の透水試験では、C 空洞開削壁面がずれたことによりパッカ設置区間を変更せざるを得ず、変更した区間で実施したところ、パッカが充分きかずに破損してしまい、透水係数が求められなかつたものである。これら両区間の試験がうまく実施できなかつた理由はコア観察や孔壁調査で認められている④孔の 12.7 m 付近に存在する破砕部（あるいはせん断部）が逸水やパッカ破損の原因となつたためである。

Fig. 3—10とTable 3—1から割れ目の認められない区間（④孔の iii 区間、⑧孔の ii 区間）では既存試験場での従来の透水試験で得られた岩盤の透水性 10^{-12} m/s とほぼ同程度の非常に低い透水性が認められたことがわかる。しかし、C 空洞開削前の④孔の ii 区間が逸水で計測不可であったことや、④孔の i 区間や⑧孔の iii 区間のような割れ目を含む部分では透水係数が $10^{-8} \sim 10^{-9}$ m/s と 3～4 桁高くなっており、割れ目等の弱帯の存在が透水性の増大に大きな影響を与えていることがわかる。

空洞の開削前後で透水性を比較すると、④孔の iii 区間、⑧孔の ii および iii 区間はほとんど透水性に変化が認められないか、むしろ開削後の方が低くなっている。この結果は開削壁面から 1 m 以上離れた箇所では本岩盤の透水性は開削の影響をあまり受けないということを示唆していると言える。また、⑧孔の i 区間では開削後に透水性が 1 桁増大したが、これも壁面近傍に開削により透水性に影響のある割れ目が生じたというよりも、試験区間を変更したことにより 13.8 m 付近の粘土を伴う割れ目が開削後に試験区間に含まれたことによる透水性の増大のためである可能性が大きい。

本試験結果からは、開削壁面から 1 m 程度の近接区間では開削の影響を評価する十分なデータが得られなかつたが、2～3 m 離れた岩盤では既存の割れ目の有無に関係なく、透水性は岩盤開削の影響を受けないと言える。前者の評価を可能ならしめるためには、透水試験の実施に必要なパッカの長さを極力短くして、割れ目等の影響をなるべく受けずにパッカの設置が可能となるような技術開発がなされる必要がある。

普通発破区間を試験対象とする④孔と制御発破区間を試験対象とする⑧孔との間の発破方法の相違の透水性に与える影響については、両孔に認められる地質性状の相違の方がより強く透水試験に影響を与えたと判断されるため十分な検討を行うことはできないと判断される。

3.6 力学的挙動調査

3.6.1 調査方法

空洞開削時の岩盤の力学的挙動調査方法としては、掘削前後の岩盤の力学特性の変化を計測する方法と、掘進に伴う応力・ひずみ等の変化を逐次計測する方法の二つを挙げることができる。本調査においては、前者に属するものとして孔内載荷試験を、また後者に属するものとして岩盤内のひずみ変化の計測を実施した。

(1) 孔内載荷試験

孔内載荷試験とは孔内の任意区間で孔壁に垂直に載荷し、その時の孔壁の変形と載荷荷重から岩盤の変形特性を調べるものである。本試験で用いたボアホールジャッキと呼ばれる載荷装置をFig. 3—12に示す。この載荷装置は孔壁に力を伝達する載荷板と6基の小型油圧ジャッキおよび孔壁の変形を検出する載荷板両端のカンチレバー式変位計からなる。計測はFig. 3—13に示すように、孔内の任意点に載荷装置を挿入し、加圧用ポンプと変位読み取り用ストレインメータを接続した後、油圧ポンプにより孔壁を変形させ、その変位を読み取るものである。今回用いた載荷装置は硬岩用で、載荷板の寸法は 200×10 mmである。Fig. 3—14には④・⑧孔で実施した試験の位置をコア調査結果と対比して示した。

(2) 掘進に伴うひずみ変化の計測

空洞周辺岩盤内の応力・ひずみ変化等の地圧挙動を計測するために、種々の地圧計、ひずみ計が考案されている。今回用いたひずみ計は岩盤にゆるみが発生し、ある程度ひずみが増大しても計測可能な埋込ひずみ計であり、挿入パイプ（エンピ管）に小型ひずみセンサ（東京計器研究所製）をつりさげ、固定したものである。Fig. 3—15にこの埋込ひずみ計の埋設状況を示す。同図に示すように、埋込ひずみ計を孔内の任意の地点に挿入した後、セメントミルクを充填して埋設する。この方法によれば、一調査孔内の数箇所ひずみ計測が可能である。

空洞開削に伴い、周辺岩盤にゆるみが生じるならば、空洞壁の法線方向に最も大きなひずみ変化が生じる。そこで、ゆるみを最もよく検出できるよう、空洞壁に垂直な方向、すなわち調査孔の軸方向のひずみ成分を計測した。Fig. 3—16には④・⑧孔で実施したひずみゲージ埋設位置をコア調査結果と対比して示した。

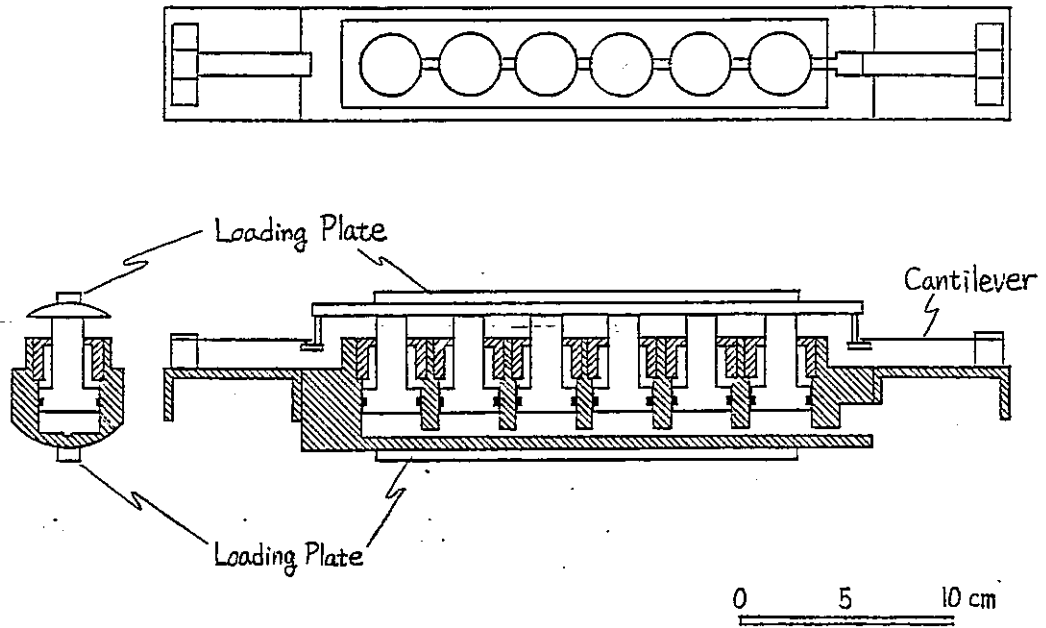


Fig 3-12 Schematic View of Borehole Jack

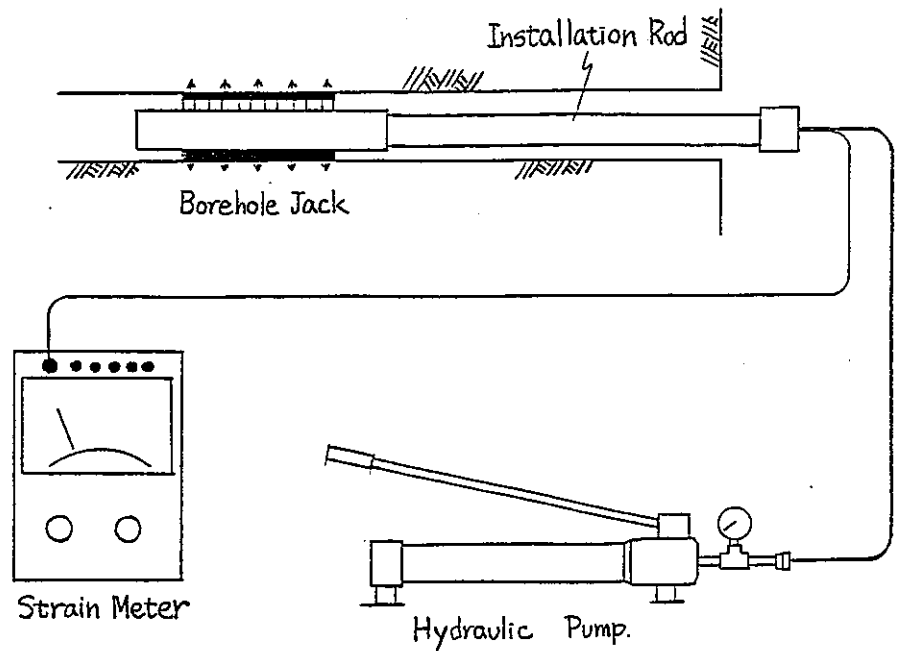


Fig 3-13 Conceptual Drawing of Borehole Jack Test

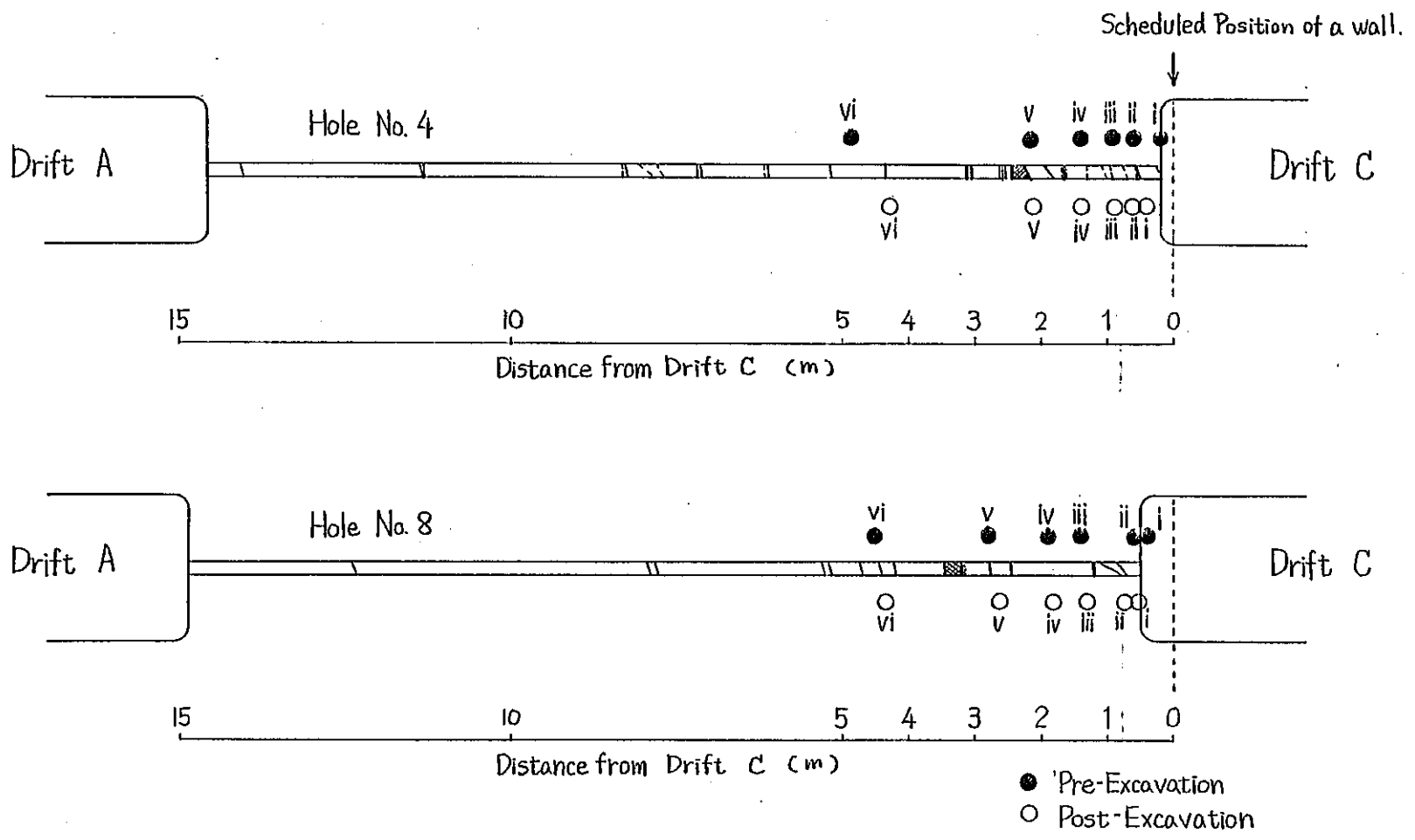


Fig 3-14 Position of Measurement Intervals in Borehole Jack Test.

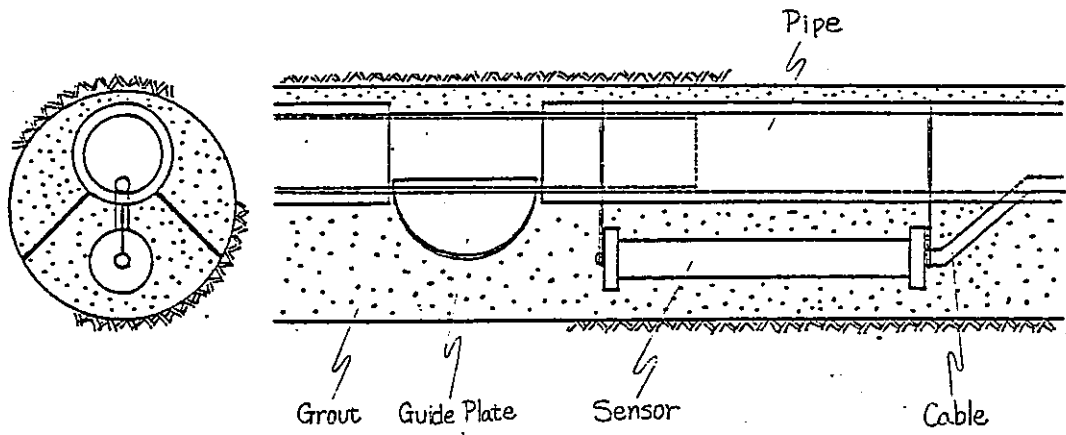


Fig. 3-15 Schematic Drawing of Embedded Strain Sensor.

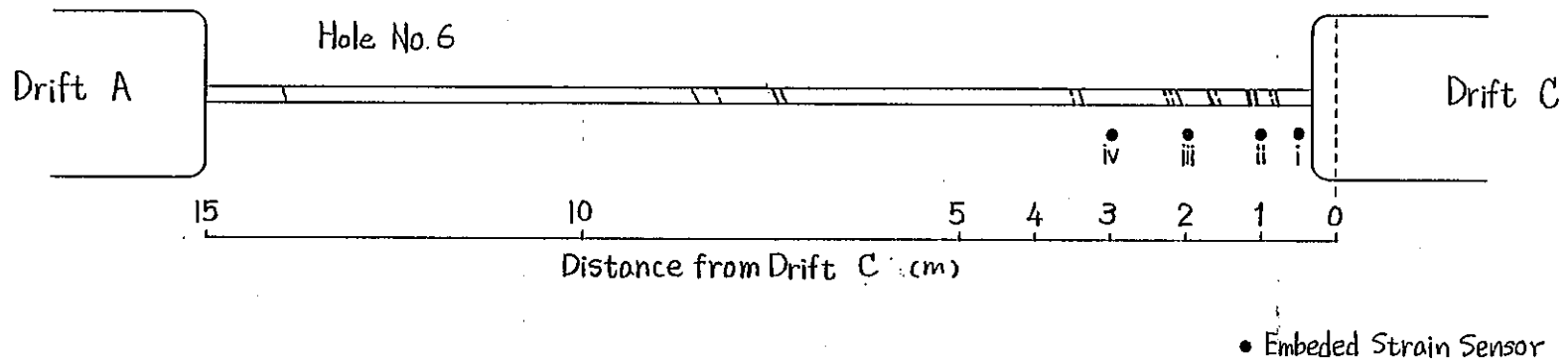
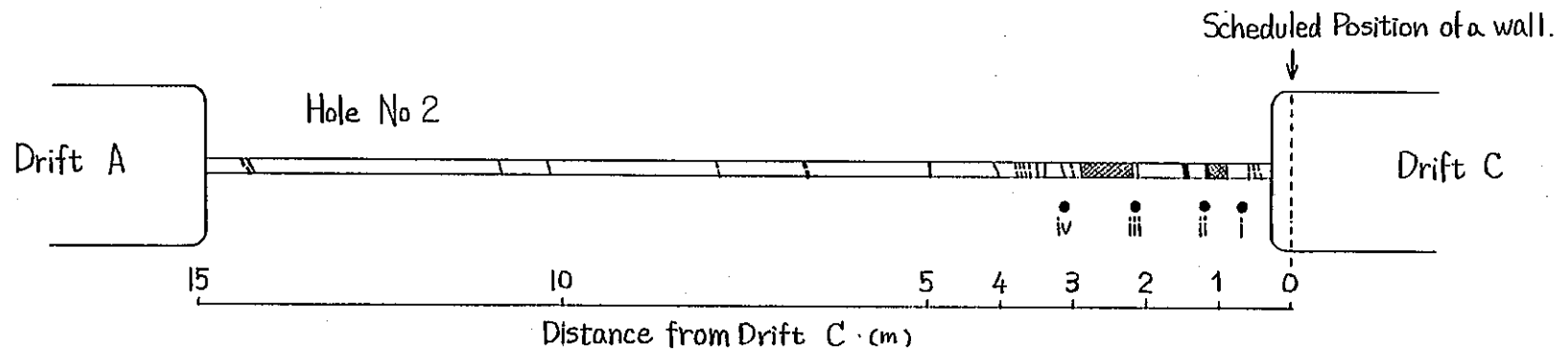


Fig3-16 Position of Strain Sensor Embedded.

3.6.2 結果および考察

(1) 孔内載荷試験結果

④孔および⑧孔での孔内載荷試験結果をそれぞれFig. 3—17および3—18に示す。さらに、両図で示される荷重-変位曲線から次式 (Goodman の式) を用いて変形係数を求めた。

$$D = \frac{d}{2} \cdot \phi(\nu, \beta) \cdot \frac{\Delta P}{\Delta r} \quad \text{..... (3.2)}$$

ここに、
 D : 変形係数 (Pa)
 d : 試験孔の直径 (76mm)
 $\phi(\nu, \beta)$: ν (ポアソン比) と β (載荷角度) により定まる定数
 ΔP : 荷重増分 (Pa)
 Δr : 変位増分 (mm)

ポアソン比に昭和56年度に得た室内試験値を参照して0.2を、載荷角度に7.6° (幅10mmの載荷板を径76mmの孔壁に当てた時に得られる½接触角) を与えると、 $d/2 \cdot \phi(\nu, \beta)$ の値として2.08が得られる。これに、 $\Delta P / \Delta r$ に各々の測定での処女載荷部にあたる直線部分の勾配 (載荷荷重9.8MPaと29.4MPaの間の勾配) を与えて得られた変形係数をTable 3—2に示す。

Table 3—2 Deformation Modulus Obtained from Borehole Jack Test.

Deformation Modulus (GPa)						
Test Position	No. 4 - i	No. 4 - ii	No. 4 - iii	No. 4 - iv	No. 4 - v	No. 4 - vi
Pre-Excavation	1.8	2.0	2.5	2.3	1.2	2.3
Post-Excavation	2.2	0.95	1.7	2.8	1.1	1.1
No. 8 - i No. 8 - ii No. 8 - iii No. 8 - iv No. 8 - v No. 8 - vi						
Pre-Excavation	1.7	2.1	1.5	1.4	1.5	1.4
Post-Excavation	1.6	1.5	0.76	1.4	2.5	6.8

まず、Fig. 3—16とFig. 3—17・18を比較すると、C空洞開削前の地山状態の岩盤で得られた結果では、割れ目部分で若干変形しやすく、残留ひずみの大きくなる傾向が見られるが、著しく変形性の異なる結果は見られず、試験箇所に係わりなくほぼ同様の変形特性

Pre-Excavation \Rightarrow Post-Excavation

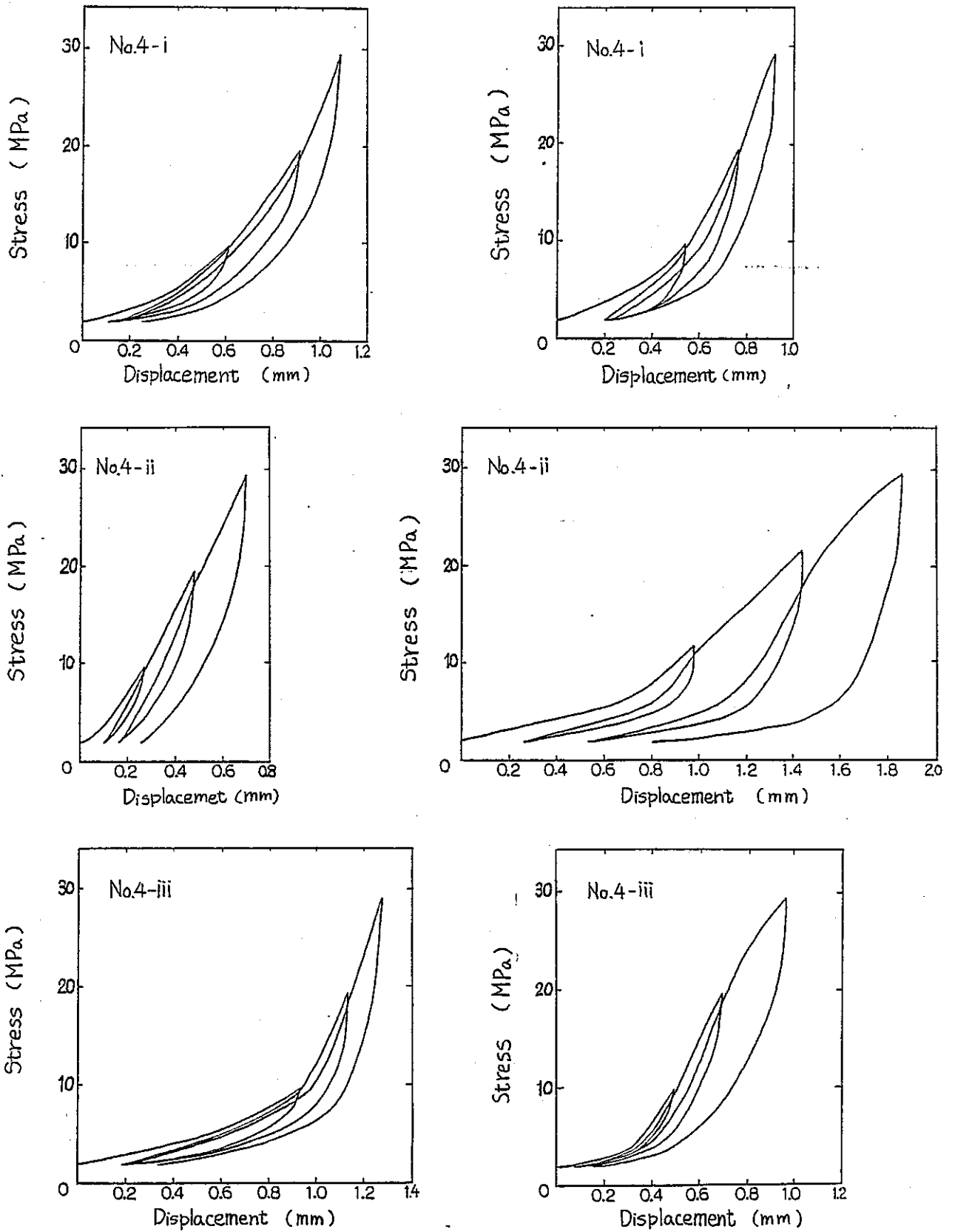


Fig 3-17 (1) Results of Borehole Jack Test in Hole No. 4 for Pre-and Post-Excavation of Drift C.

Pre-Excavation \Rightarrow Post-Excavation.

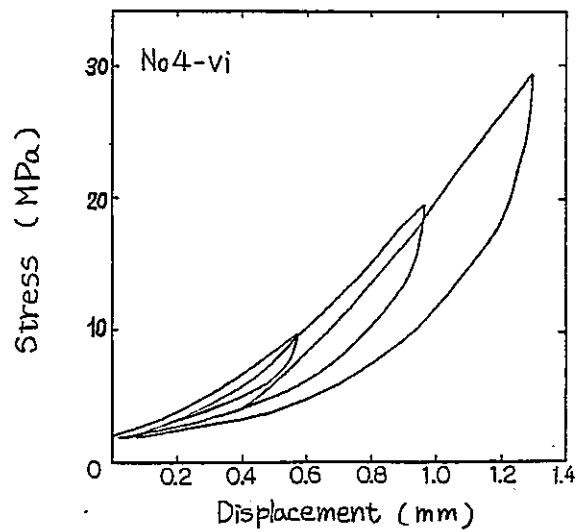
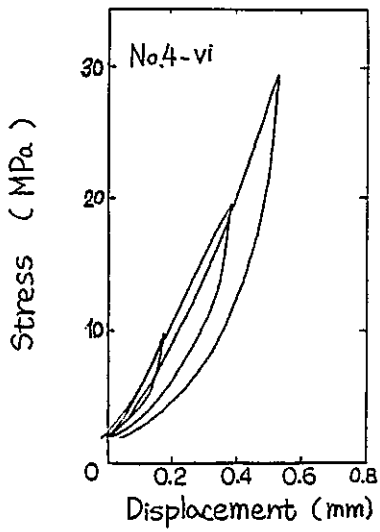
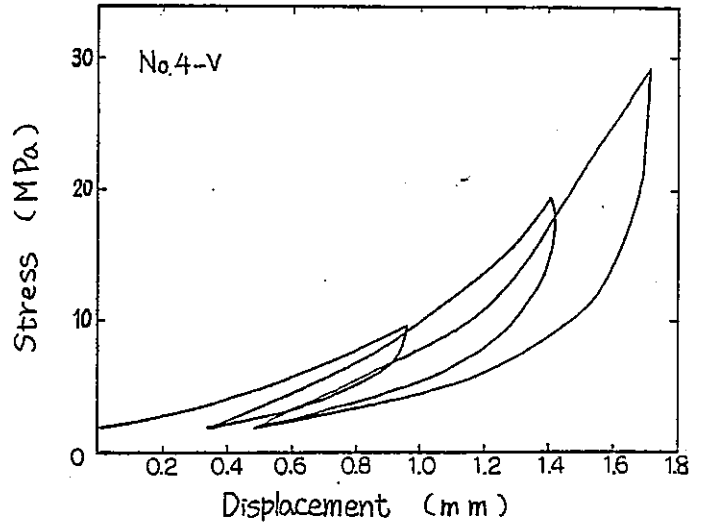
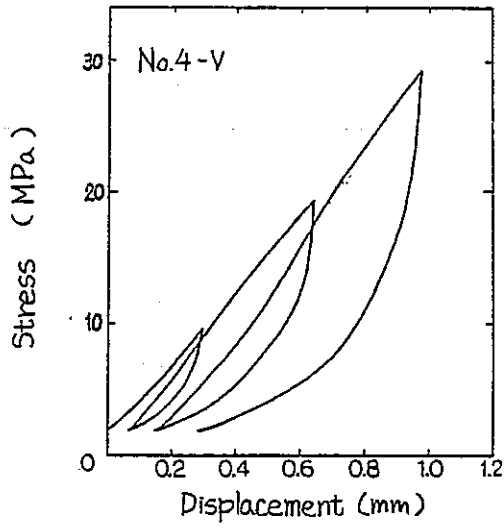
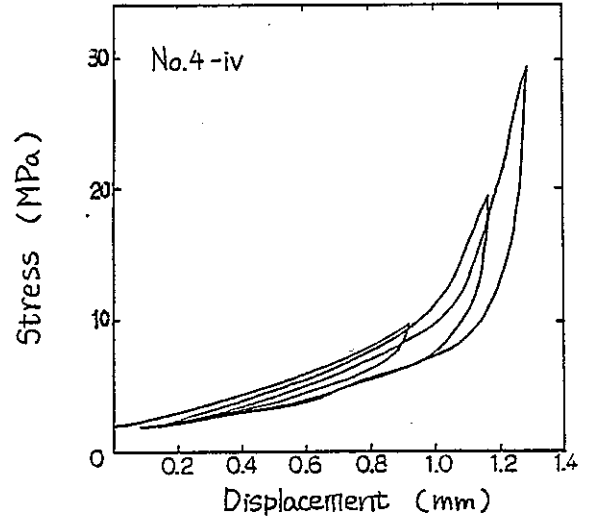
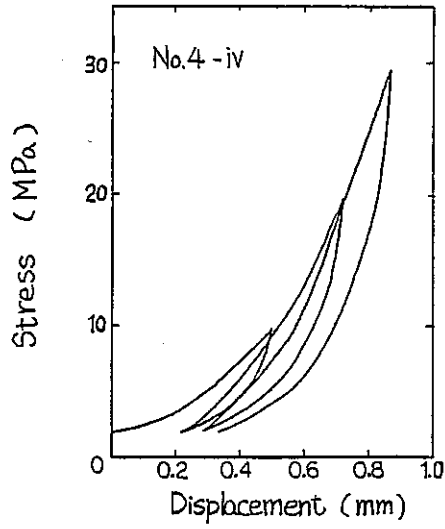


Fig 3-17(2) (Cont'd)

Pre-Excavation \Rightarrow

Post-Excavation.

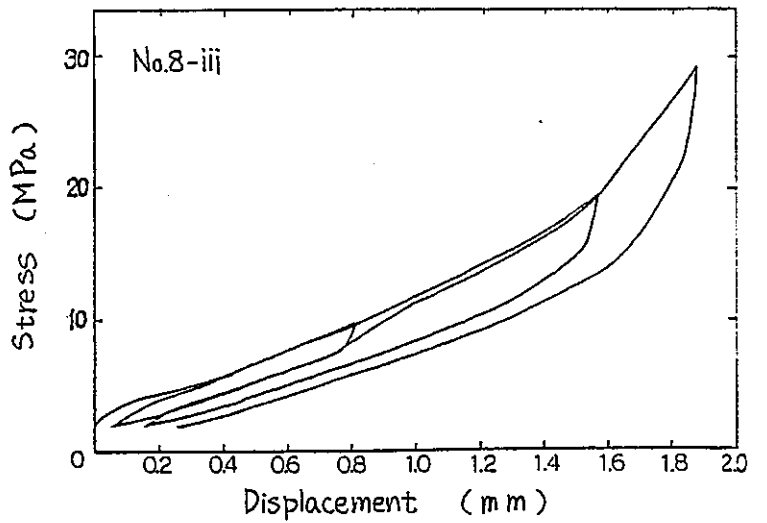
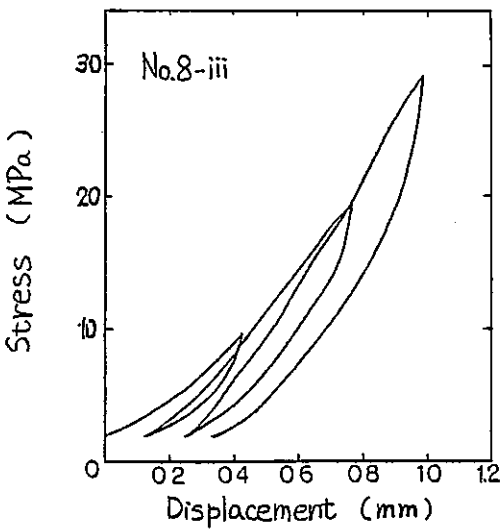
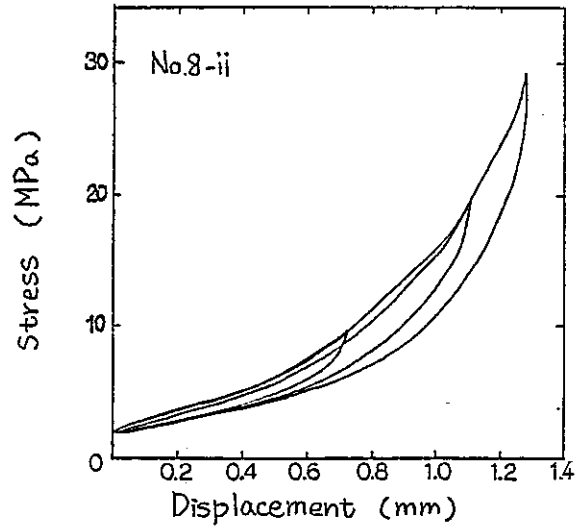
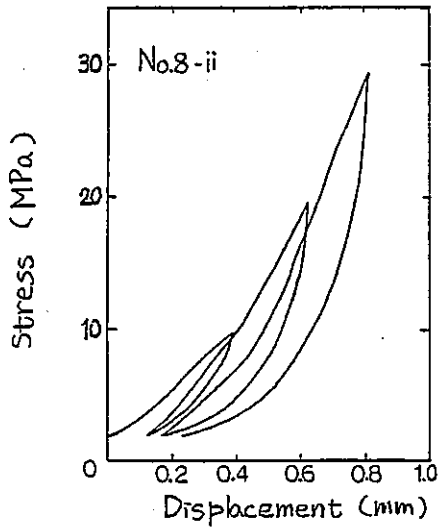
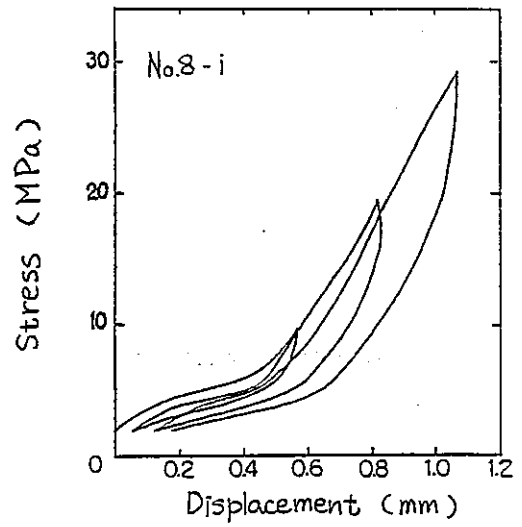
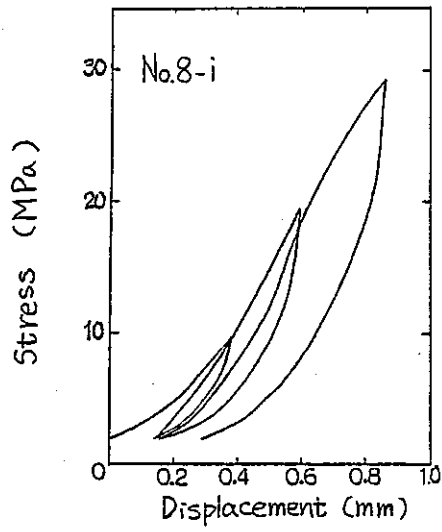


Fig 3-18 (1) Results of Borehole Jack Test in Hole No. 8 for Pre-and Post-Excavation of Drift C.

Pre-Excavation \Rightarrow Post-Excavation

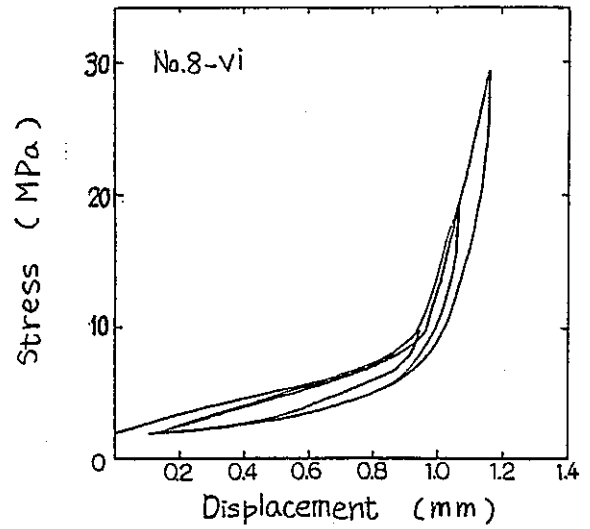
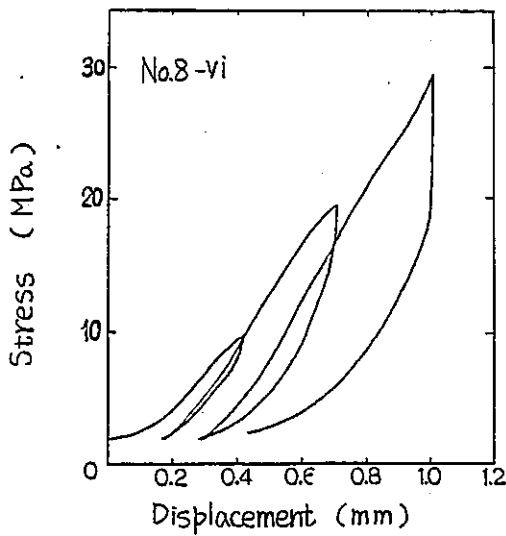
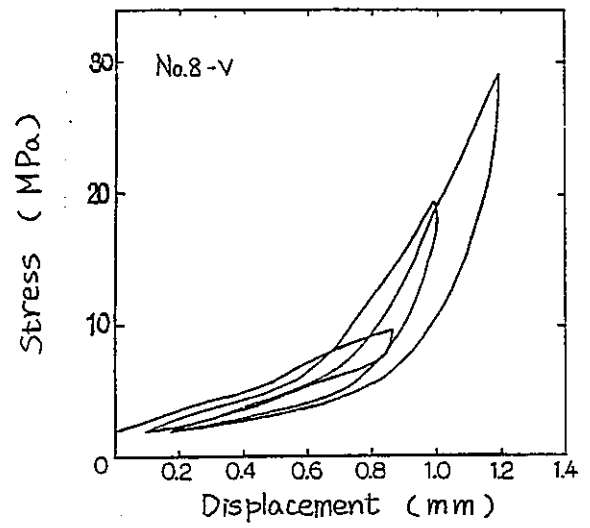
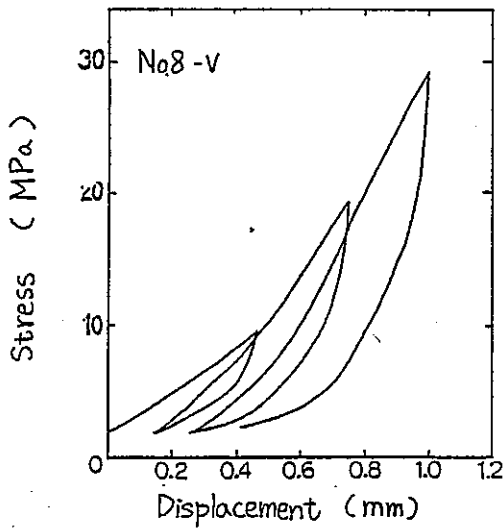
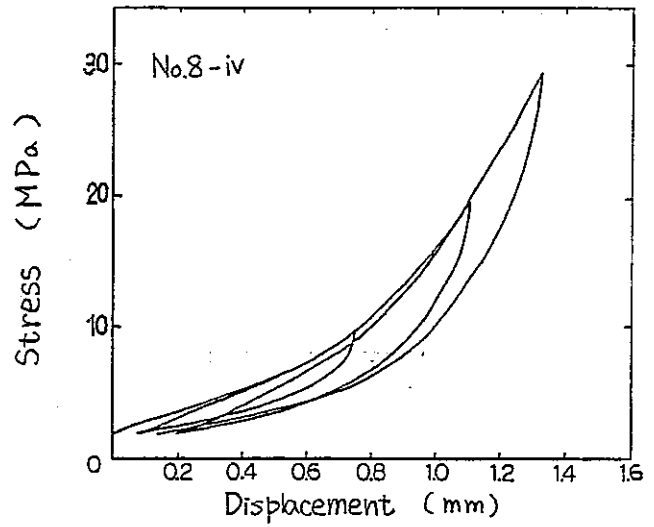
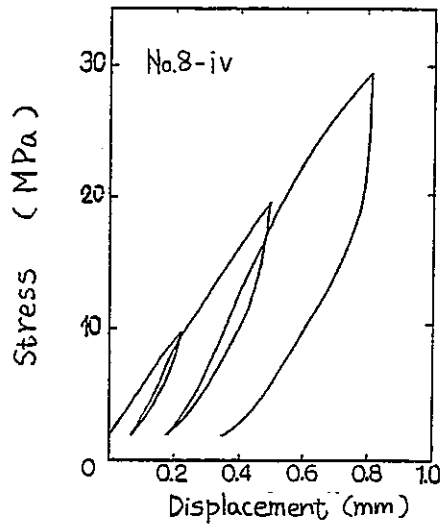


Fig 3-18 (2) (Cont'd)

を示した。すなわち、地山状態の岩盤はかなり均質な変形特性を有するものと考えられる。C空洞開削後の結果では、試験位置の相違により変形パターンにやや差が認められるものの、④-i・iiiを除いて載荷荷重10MPa以下ではいずれも変形しやすくなっており、調査孔周辺岩盤が開削により劣化した可能性が示される。しかし、C空洞と試験箇所との位置関係に注目すると、C空洞の壁面に近い④-iや③-i箇所では他の箇所に比べ、開削前後の変化が少なく、C空洞の開削が岩盤の変形特性に与えた影響は明確でない。また、Table 3-2によると、開削後に得た変形係数は必ずしも開削壁面に近い箇所程小さい値を示しているとは言えない。

また、同表に示す開削前の変形係数値は昭和56年度に室内試験で得た静弾性係数値(約10~30GPa)と比べ桁程小さい。しかし、これらの係数は通常の室内試験および孔内載荷試験で得られるこの種の岩盤の係数の分布範囲に含まれている。

岩盤は通常、割れ目部分で大きな劣化を示す。割れ目のない部分で実施した試験結果にばらつきが生じたのは、構成岩石の角礫部と基質部で劣化の進行に差があり、岩質の不均質性が劣化程度に差を生じさせたのかもしれない。角礫部は基質部よりも珪化の程度が強く、水理面で相対的に安定であるが、基質部は吸水により角礫部より劣化の程度が大きいことが考えられる。本載荷試験の掘削前の測定は透水試験の前に実施したのに対して、掘削後の測定は透水試験の後に実施し、かつ測定前に孔壁を強制的に乾燥させている。したがって、Fig. 3-17・18で示される岩盤の劣化はC空洞の掘削の影響というよりもむしろ、孔壁が吸水・乾燥を受けたことによる水理的な影響をより大きく受けたことに起因している可能性が大きい。また、空洞開削後の測定は調査孔の穿孔から時間が経過した時点で実施しており、そのことによる影響もありうると思われる。

以上の結果から、本試験対象岩盤のような非弾性的な、あるいは脆性的な岩盤を対象として、本試験方法による掘削に伴う岩盤挙動の調査を実施する場合には、調査孔の掘削時期と空洞開削時期の関係、付随する調査との関係を充分吟味し、適切な調査方法が採られるべきであろう。

(2) ひずみ変化の計測結果

Fig. 3-16で示されるひずみ計の埋設箇所のうち、データを取得できたのは②-ii、②-iii、②-ivの3箇所である。同図からわかるように、C空洞の開削壁面は当初の予定位置よりもややA空洞側にずれた。C空洞より②孔を観察すると、②-i付近のひずみ計設

置のためのセメントミルクの充填が充分でなかったことが認められた。これは、セメントミルクをA空洞の調査孔の口元より流下させた時、岩盤の高い吸水性のために途中で脱水固化し、先端部の充填が不十分であったものと考えられる。一方、⑥孔のひずみ計は全て、C空洞の開削中にひずみ変化を示さなかったことから、同じ理由により埋設に障害を生じたものと考えられる。

Fig. 3—19に②—ii、②—iii、②—ivの3箇所で得られたひずみ変化の計測結果を示す。②—iiはC空洞の開削開始時から大きな変動を示した。②—ii埋設位置は断層等の割れ目部に相当することから、掘削により断層の両盤が変位を生じた可能性が示唆される。②—ivではC空洞の開削切羽接近に伴う先行圧と呼ばれる圧縮状態が現れ、切羽通過後には応力解放に対応する伸びが認められる。②—iiiは、②—ivよりもC空洞に近く、より大きな掘進の影響を受けているものと考えられるが、ひずみ量は小さい。これは、②—ii位置の断層と②—iiiに隣接する割れ目帯の間に②—iiiのセンサが位置することにより、掘進の影響が伝達されなかったとも解釈される。

(3) 等方均質無限岩盤中に存在する空洞周辺の弾塑性応力解析

上記試験結果の考察を補完するために、等方均質無限岩盤を想定し、その岩盤中に存在を仮定する空洞周辺の弾塑性応力解析を行う。

空洞断面を半径 a の円で近似し、初期地圧を大きさが P_0 の静水圧状態と仮定した場合の空洞周辺岩盤内の応力状態を考える。

岩盤の降伏条件をクーロンの式で与えると、円形空洞の半径方向の応力成分 σ_r 、円周方向の応力成分 σ_θ はそれぞれ主応力となるから、降伏条件は次式で示される。

$$\sigma_\theta = \zeta \sigma_r + S c, \quad \zeta = \frac{1 + \sin \phi}{1 - \sin \phi}, \quad S c = \frac{2 c \cos \phi}{1 - \sin \phi}$$

ここで、 c は粘着力、 ϕ は内部摩擦角である。

円形空洞周辺の岩盤中で、 c 、 ϕ が応力状態に係わらず、一定で空洞壁面が自由面とみなせる場合、岩盤内の弾塑性境界 R は次式で示される。

$$R = \left\{ \frac{2}{\zeta + 1} \cdot \frac{P_0(\zeta - 1) + S c}{S c} \right\}^{1/(\zeta - 1)} \cdot a$$

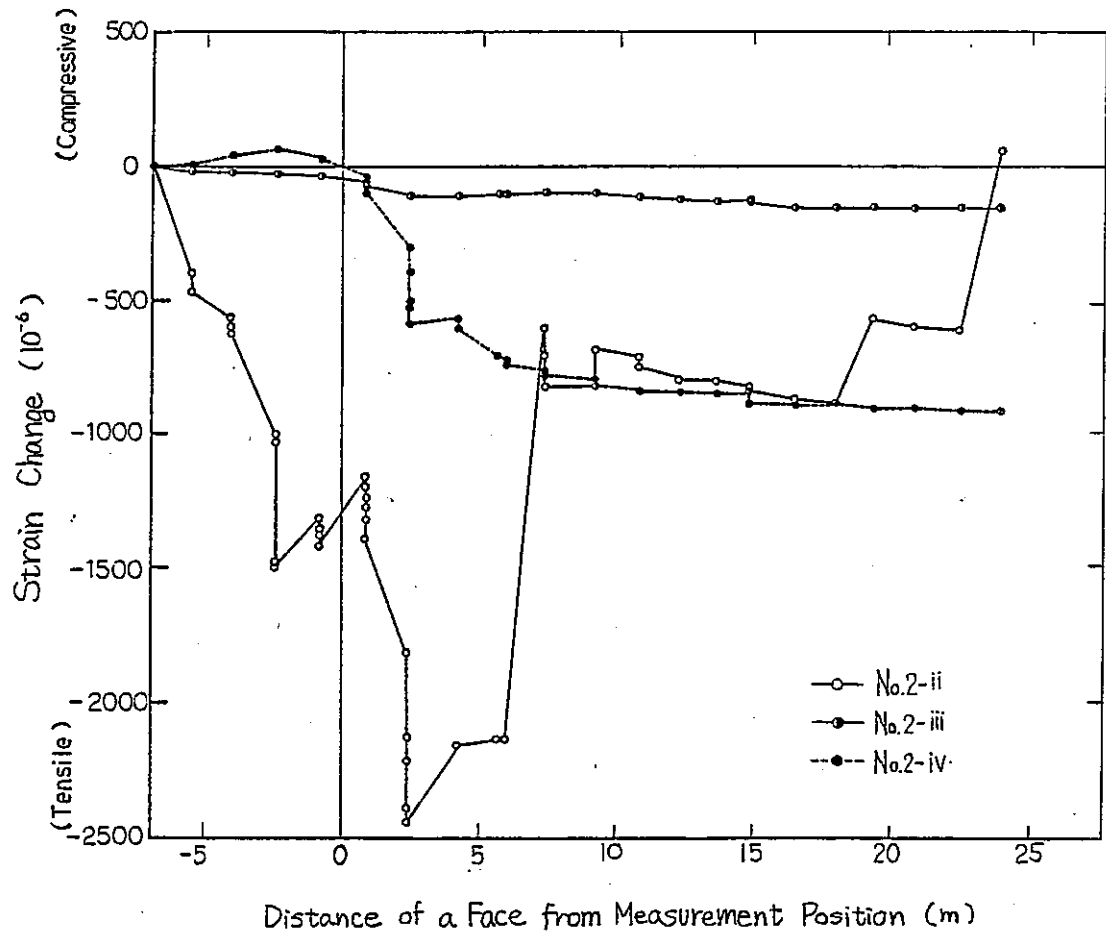


Fig 3-19 Strain Changes Induced by Face Advancing.

57
56

次に、試験場空洞周りの弾塑性境界を試算してみる。昭和56年度に既存試験場で採取した岩石試料を用いて、三軸圧縮試験を実施しているのので、その結果得られた強度定数を用いる。試験結果のうち、最も弱い強度定数として $c = 4.67 \text{ MPa}$ 、 $\phi = 28.5^\circ$ を仮定し、初期地圧の大きさをかぶり圧に等しいものと考え、

$$P_o = 340 \text{ m} \times 2.5 \text{ gf/cm}^2 = 8.3 \text{ MPa}$$

$$\zeta = 2.825$$

$$S_c = 15.7 \text{ MPa}$$

$$R = 1.016 \cdot a$$

となる。直径2.4 mの空洞周りにはわずか19 mmの塑性域が生じるに過ぎないことになり、ほとんど塑性域は無視できる。実際の岩盤では、室内試験結果に比べ、より弱い強度特性を示すことが考えられるが、大きなゆるみ域が生じるとは考えられない。

これを確認するために、モール・クーロンの降伏条件を仮定した軸対象弾塑性解析を実施した。強度特性として、 $c = 2.5 \text{ MPa}$ 、 $\phi = 25^\circ$ を仮定すると、空洞周辺には全く破壊域が発生しなかった（ $c = 1.2 \text{ MPa}$ まで低下させて初めて破壊域が発生する）。この強度定数は室内試験結果に比べ、十分に小さな値である。したがって、今回調査を実施した空洞においては、本解析条件が適合するとした場合には、均質岩盤部ではゆるみ域の発生は生じにくいといえる。

3.7 まとめ

今回の調査結果では、空洞の開削に伴い、既存割れ目の開口によると思われる透水性の増大と、ひずみ変化の特異な挙動が認められたが、これらは断層に準じるような大きな割れ目に関係した変化であり、空洞開削の影響を受けた範囲も、空洞壁からただか1 m以内と狭いものであった。大きな割れ目を含まない岩石部分では孔内載荷試験結果によると、掘削による岩盤の劣化は明確でなく、透水性やひずみ変化にも掘削の影響による岩盤の劣化を判定できるような挙動は見られなかった。また、普通発破、制御発破の差異も識別されなかった。

応力解析結果によると、試験箇所では空洞周辺にゆるみ域はほとんど発生しないことが示されたが、実測結果はこの予想に近いものであった。空洞開削の影響は空洞近傍の比較

的大きな割れ目にのみ現れ、割れ目を含まない岩石部分では地圧変化に伴う劣化よりも吸水による膨潤、強度低下の方が顕著であったようである。孔内載荷試験結果が空洞からの距離に無関係に劣化を示したことはこのことによるものと考えられる。また、透水係数が空洞開削後むしろ小さい値を示すものがあったのは、米国での研究例*とも一致する。水理的要因による劣化は空洞開削後の時間経過に伴い進行するので、長期安定性を考える場合には問題となろうが、直接的に空洞の安定性を損なうものではない。今回の調査は地表面下340mの深さで実施したものである。より深部あるいは軟弱な岩盤においては、空洞開削に伴う地圧問題がより重要になってくるものと考えられる。また、花崗岩などの弾性的岩石では本岩石よりもはるかに明瞭に空洞の開削に伴う岩盤挙動が明瞭に把握されるであろう。しかし、そのような弾性的岩石でも本試験対象岩盤のような塑性的岩石でも岩盤挙動の評価は地層処分の様々な観点から評価されなければならない。本試験はその評価の一端を担ったものに過ぎず、さらに種々の条件下での評価がなされることが必要であろう。

注*) Witherspoon(1985) , Personal Communication.

第4章 空洞開削面の調査

4.1 目的

原位置試験を実施する際に、試験対象となる岩盤の地質および地質構造を調査し、それらを把握しておくことは、岩盤の水理・熱・力学・化学的特性を評価するうえにおいて重要である。それらのデータは種々の原位置試験結果を評価する際の基礎データとなる。

また、原位置試験を実施するための試験孔の掘削に際しては、割れ目の分布状況・規模・性状等を充分検討して、その配置・深度・方向等が決定されねばならない場合もある。

そのため、A・B・C空洞の掘削後、それらの天盤・側壁を水洗して詳細なスケッチを行い、岩質・割れ目の分布状況等を把握して、次年度以降実施される予定の単一割れ目トレーサ試験で試験対象とする割れ目を選定する資料を得た。

また、C空洞においては模擬パッケージ埋設試験が実施される予定であり、同試験予定箇所周辺の床岩盤の洗いだしを実施して割れ目調査を実施し、同試験対象岩盤中の割れ目賦存状況を推定する資料を得た。

4.2 調査結果

4.2.1 天盤・側壁の調査結果

1/20あるいは1/50のスケールで調査を実施した。Fig. 4-1・2・3にそれぞれA・B・C空洞の天盤・側壁の調査結果を示した。

これによると、A空洞にはB空洞との会合部付近の数m間に小規模の割れ目が密集しているものの、顕著な割れ目は認められない。また、B・C空洞には顕著な割れ目が認められ、B空洞には石英安山岩の岩体が比較的広く分布している。また、分布している割れ目の充填物としては、石英・方解石・粘土が主体であり、かつ黄鉄鉱が比較的広く認められ、一部に少量の閃亜鉛鉱・方鉛鉱が認められる。粘土は濃緑色（緑泥石による）～黒色が多く、一部に白色の粘土が認められた。粘土を伴う断層面には鏡肌が明瞭に認められるものがある。

Fig. 4-4・5・6にそれぞれA・B・C空洞の上記調査結果をコンパイルし、主要な

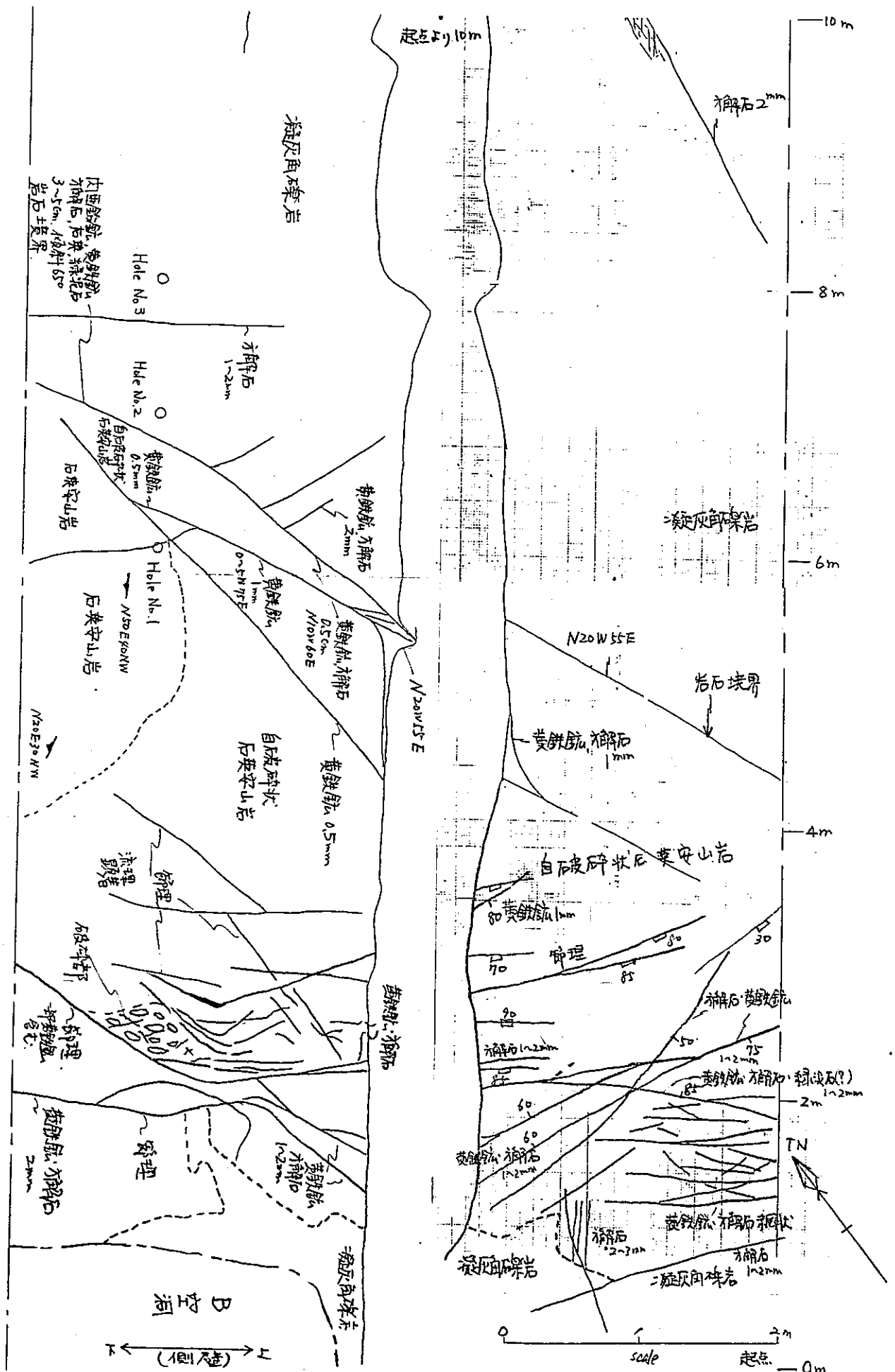


Fig. 4-1(1) Geological Sketch of Wall and Root of Drift A.

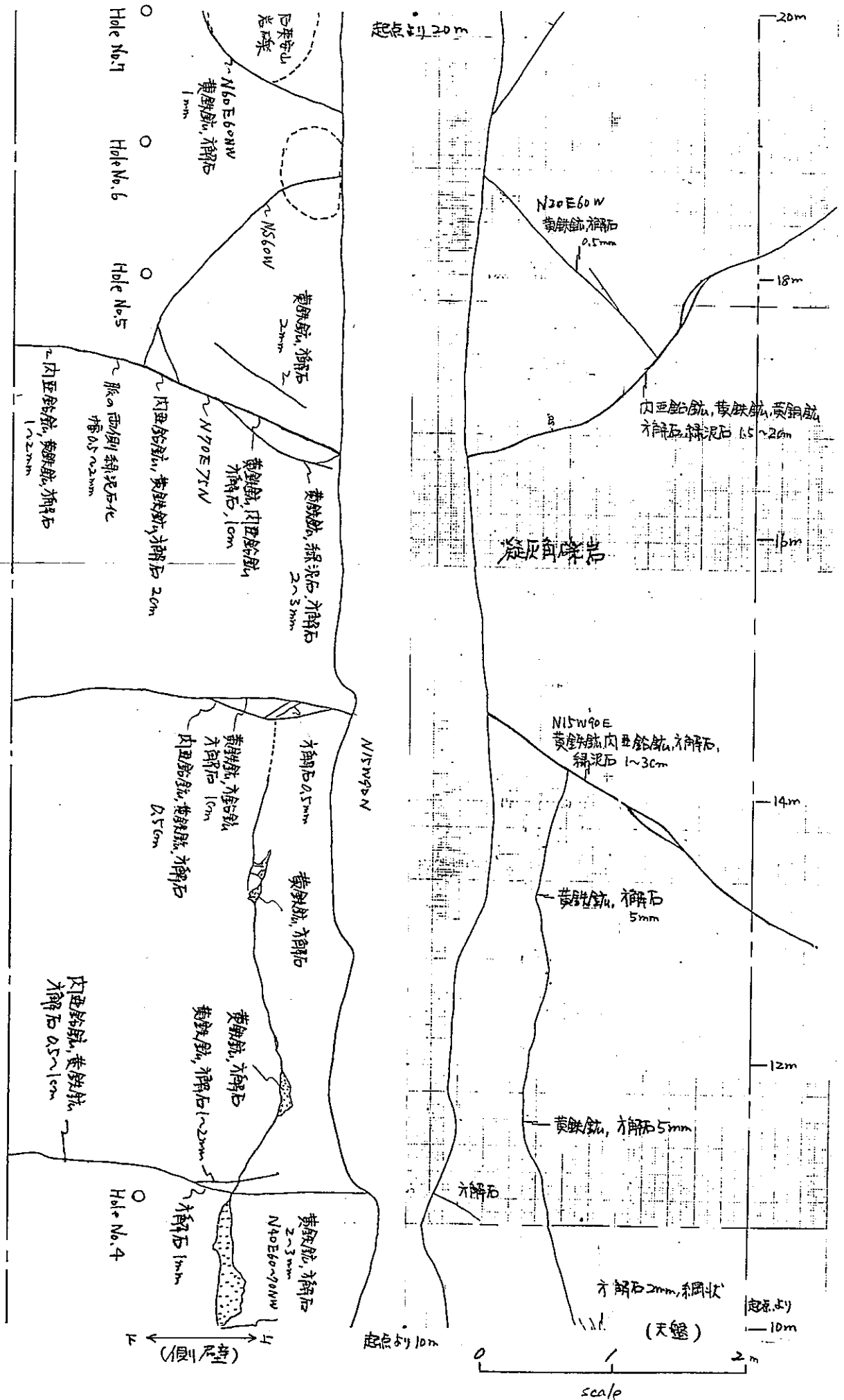


Fig. 4-1(2) (Cont'd)

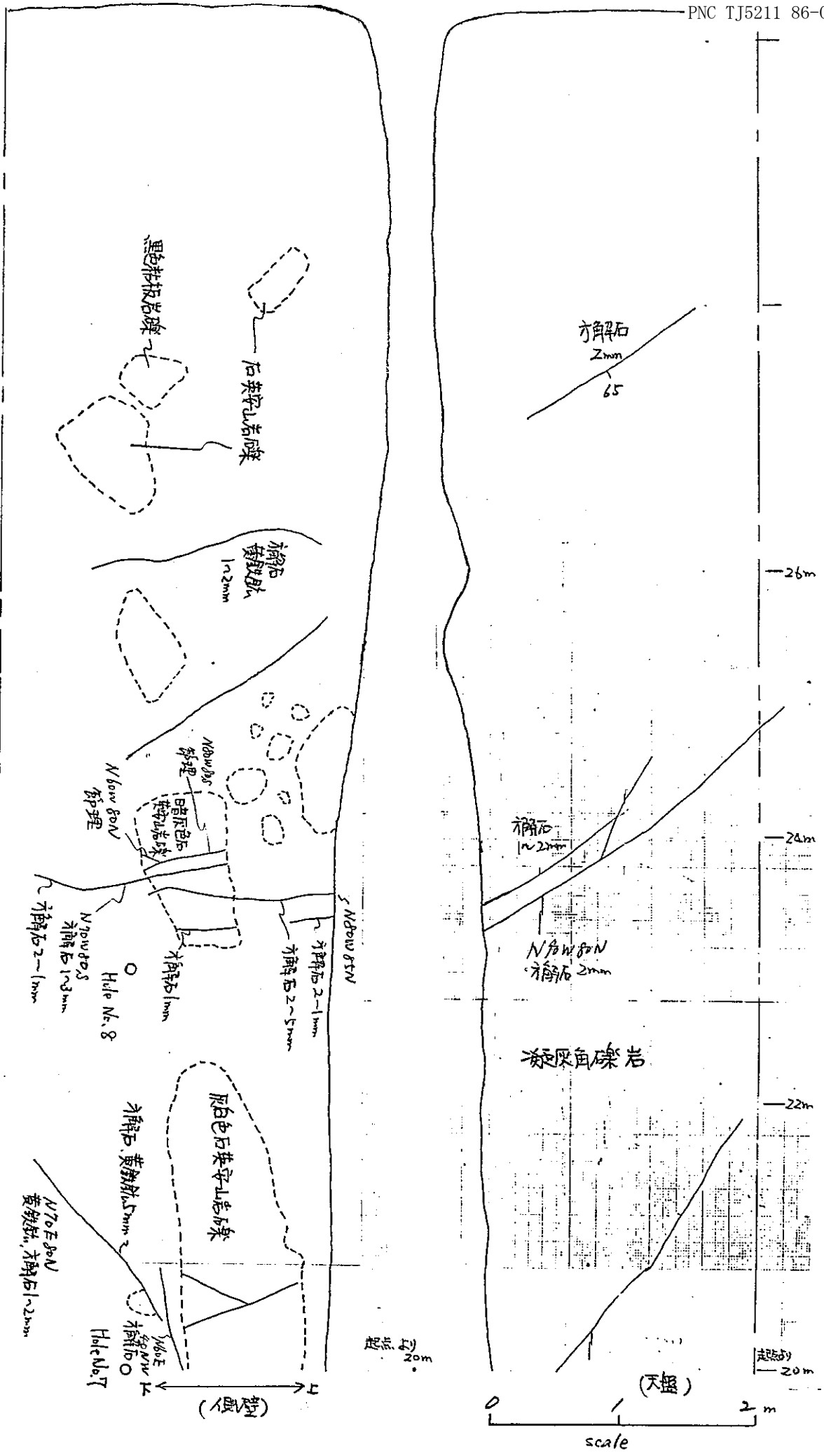


Fig. 4-1 (3) (Cont'd)

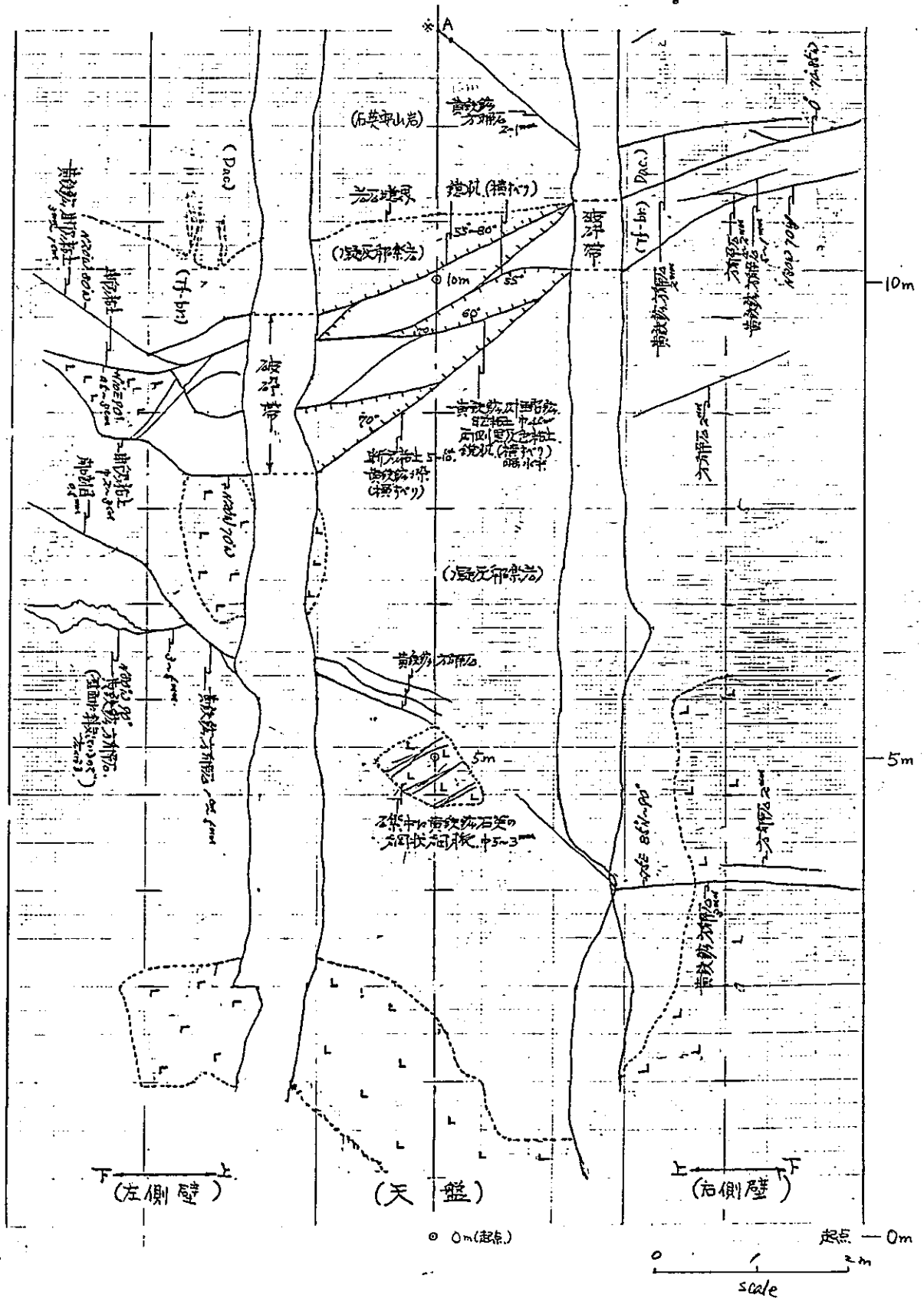


Fig. 4-2 (1) Geological Sketch of Walls and Root of Drift B.

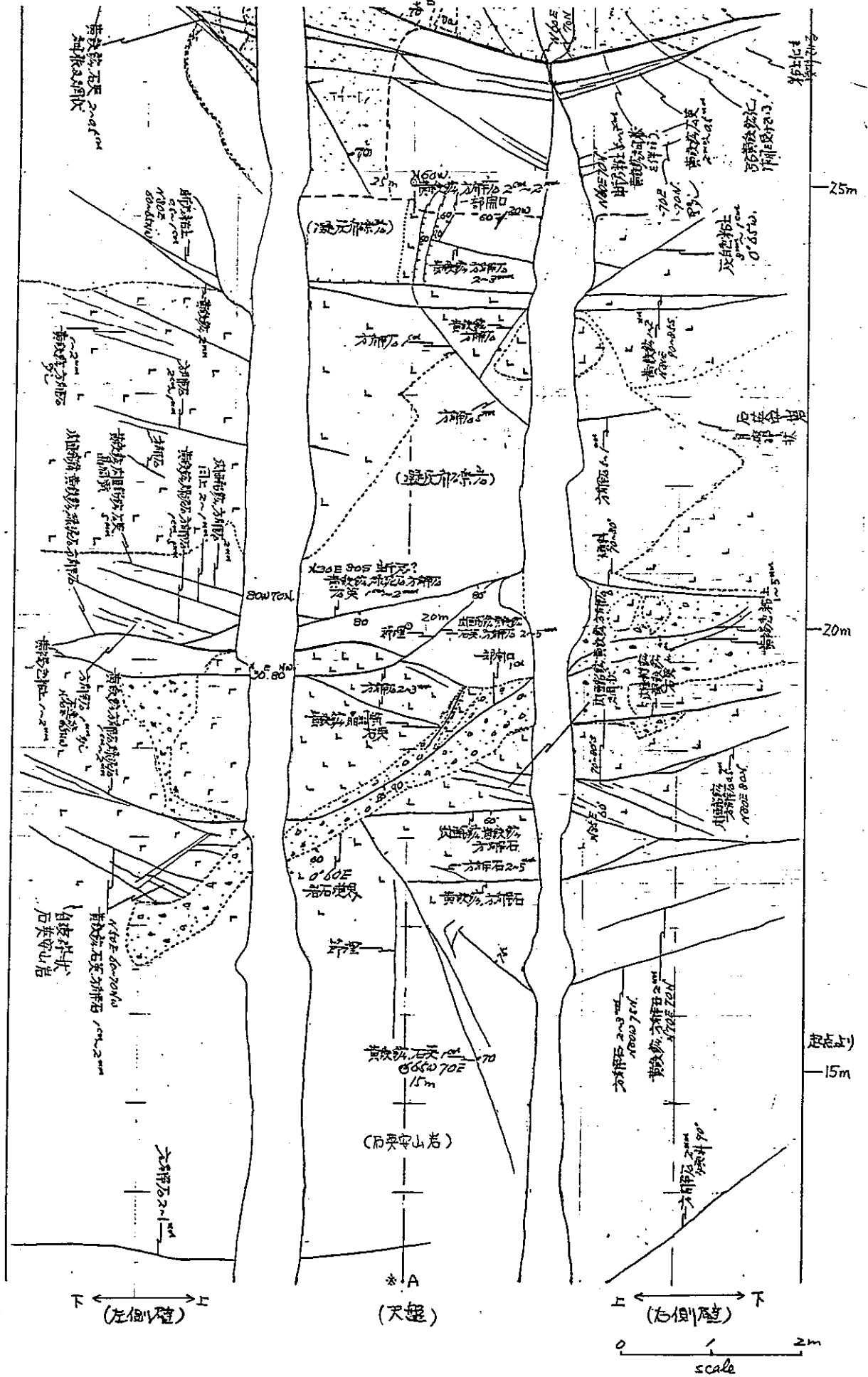


Fig. 4-2(2) (Cont'd)

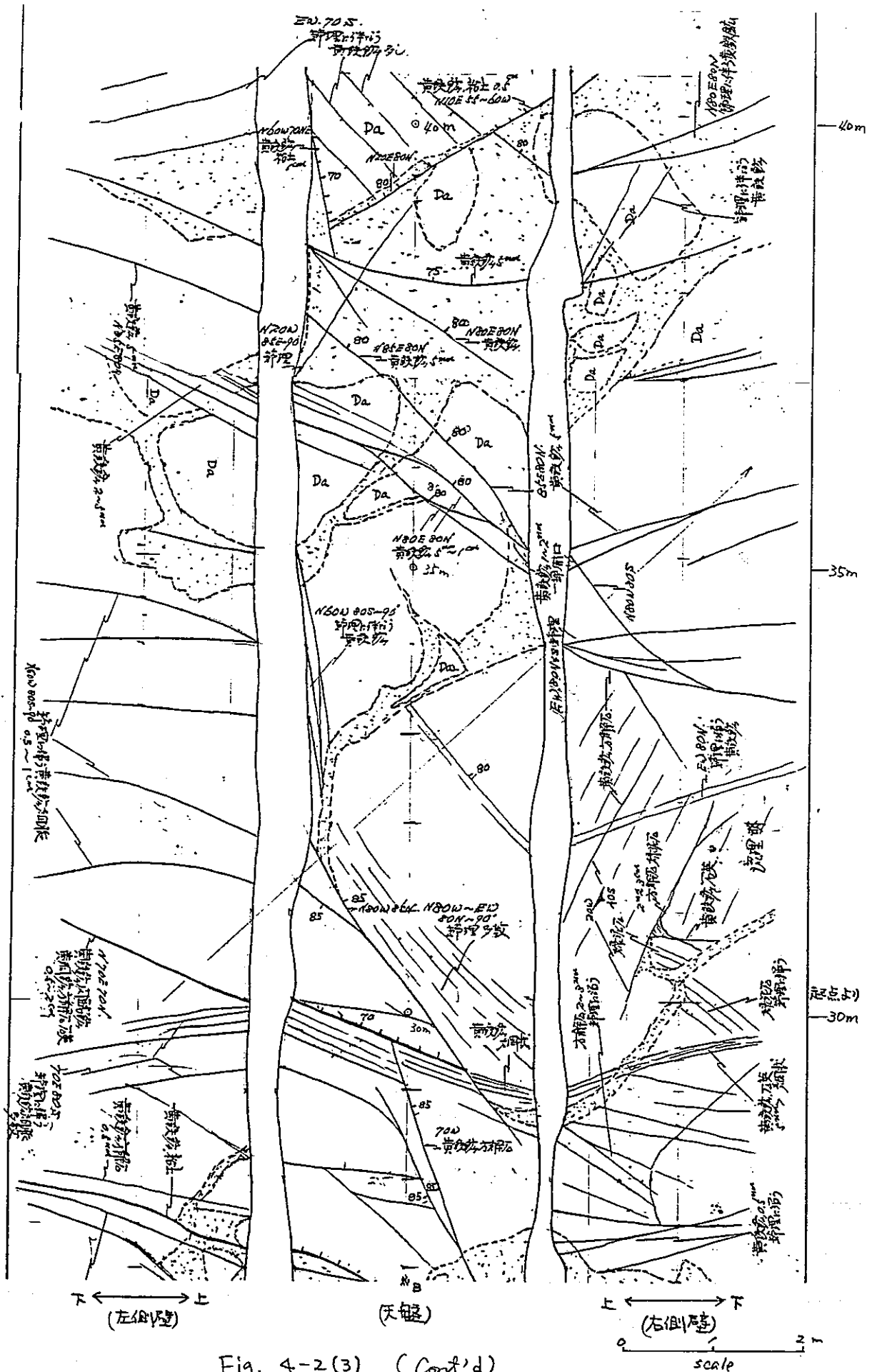
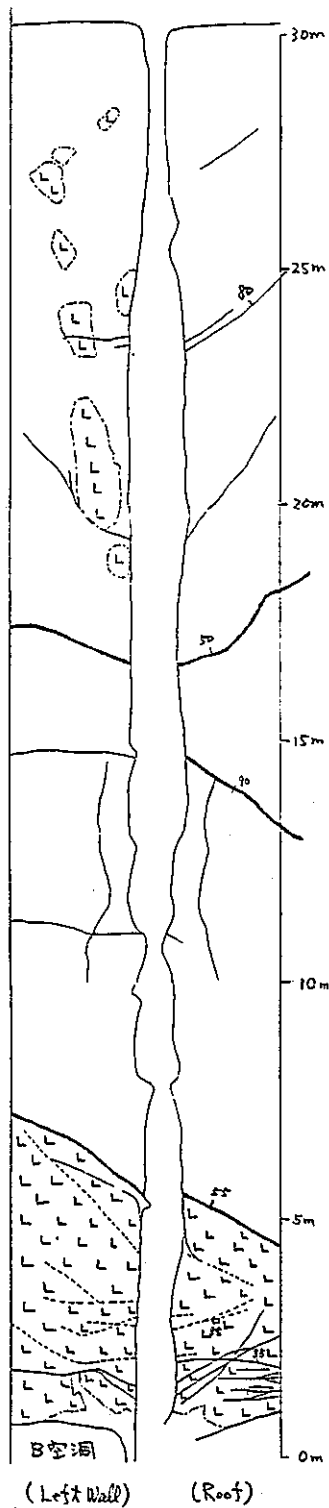


Fig. 4-2(3) (Cont'd)



Legend

- Fracture filled with Clay & Calcite (Quartz)
- - - Fracture filled with Clay
- Fracture filled with Calcite (Quartz)
- Fracture without Infillings
- - - Rock Boundary
- Dacitic Tuff Breccia
- LLL Dacite

- note 1. Clay-bearing Fractures are mostly Faults, and Slickensides are clearly shown along them.
2. Pyrite is Common Minerals both in Rocks and in Fractures. Sphalerite and Galena are sometimes detected in Fractures.

Fig. 4-4 Geology and Main Fractures Observed in Drift A.

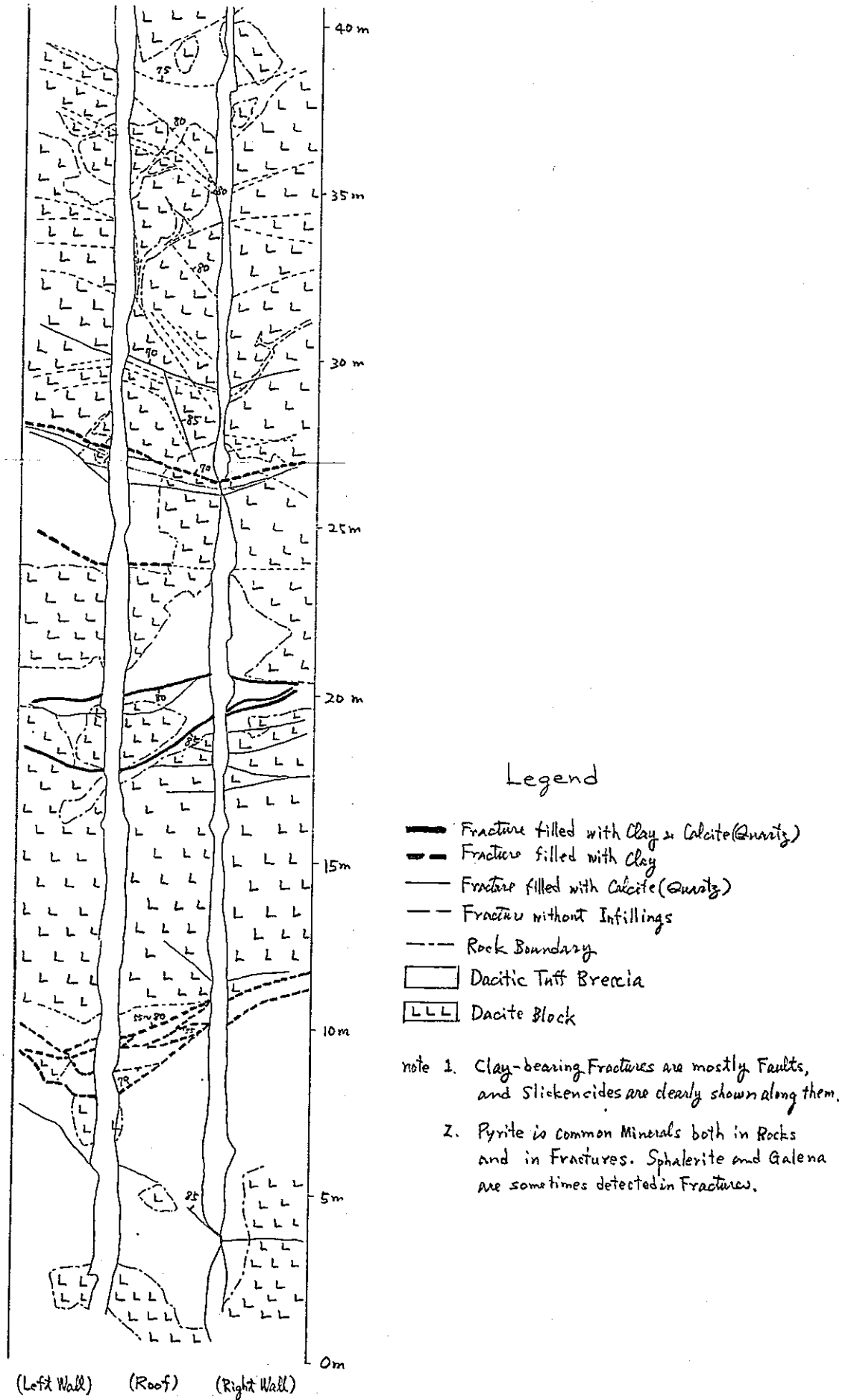
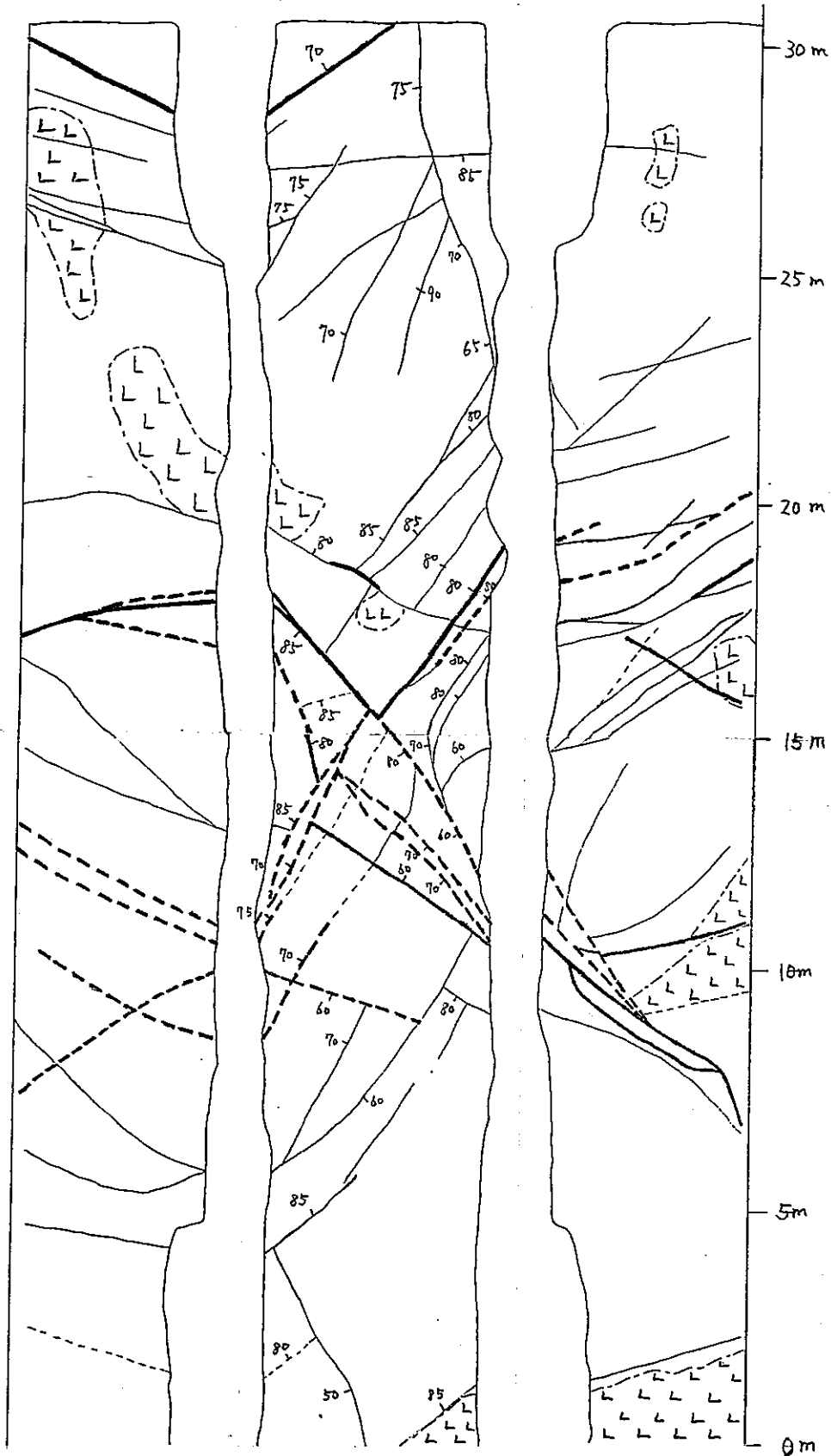


Fig. 4-5 Geology and Main Fractures Observed in Drift B.



(Left Wall)

(Roof)

(Right Wall)

Legend

- Fracture filled with Clay & Calcite (Quartz)
- - - Fracture filled with Clay
- · · Fracture filled with Calcite (Quartz)
- · · Fracture without Infillings
- - - Rock Boundary
- ▨ Dacitic Tuff Breccia
- ▣ Dacite Block

- note 1. Clay-bearing Fractures are mostly Faults, and Slickensides are clearly shown along them.
2. Pyrite is common Minerals both in Rocks and in Fractures, Sphalerite and Galena are sometimes detected in Fractures.

Fig. 4-6 Geology and Main Fractures Observed in Drift C.

割れ目（断層）と岩石の分布を明示した。Fig. 4—7にはFig. 4—4・5・6で別個に示した各空洞の天盤スケッチを合わせて示し、かつ主要な割れ目の走向・傾斜等の方向性、連続性を考慮して、それら主要割れ目の空洞周辺における分布状況を推察した。その結果、B空洞10m付近からC空洞10m付近へと、B空洞27m付近からC空洞10m付近にかけて伸びる顕著な2系統の割れ目帯が認められる。

前者は1mから2mの幅を有し、数条の割れ目よりなる割れ目帯であり、鏡肌が明瞭な断層である。C空洞の天盤の調査結果では、それらの割れ目の一部は他の割れ目で切られているものの、切られていない割れ目もあり、過去において断続的な断層運動のあったことが推察される。この割れ目帯に認められる充填物の幅は10cm程の箇所もあり、本試験場においては最大規模を有する割れ目である。本割れ目帯はほぼN15°Eの走向を示し、傾斜は70°W前後であるが、逆傾斜を示す箇所もある。

後者は前者程顕著ではないが、N70°Eの走向で70～80°Nの傾斜を示す断層であり、同様に鏡肌を有している。

割れ目の規模・走向傾斜、B空洞に現れている位置から、前者の割れ目帯が単一割れ目トレーサ試験で対象とする割れ目として他の割れ目よりも適切であると判断される。

4.2.2 C空洞床岩盤の調査結果

B空洞からの距離が5mから25m間のC空洞床岩盤を洗いだした後、同区間の床岩盤のスケッチを実施した。スケッチは50cmごとに区画する紐を張って、1/10のスケールで行った。同調査結果をFig. 4—8に示す。

同図から、B空洞からの距離が7～18m間で石英安山岩の岩塊が分布しているのがわかる。その一部は破碎状を呈している。それ以外の区間では同質の凝灰角礫岩が分布している。本調査結果から、石英安山岩の岩塊は同質の凝灰角礫岩に比べて、珪化作用を強く受けており、逆に粘土化作用はあまり受けていないことが認められる。

スケッチ前に浮石の除去を充分行ったため、観察した割れ目には掘削等の影響により生じたと思われる人工的割れ目は少ない。開口部はそれら人工的割れ目に多く認められたが、自然の割れ目には認められなかった。ただし、洗いだし作業により開口部が閉塞して、開口部の識別が困難になったことにより認められなかった可能性もある。

床岩盤の割れ目は天盤・側壁よりも詳細に分類した。すなわち、同図の凡例に示すよう

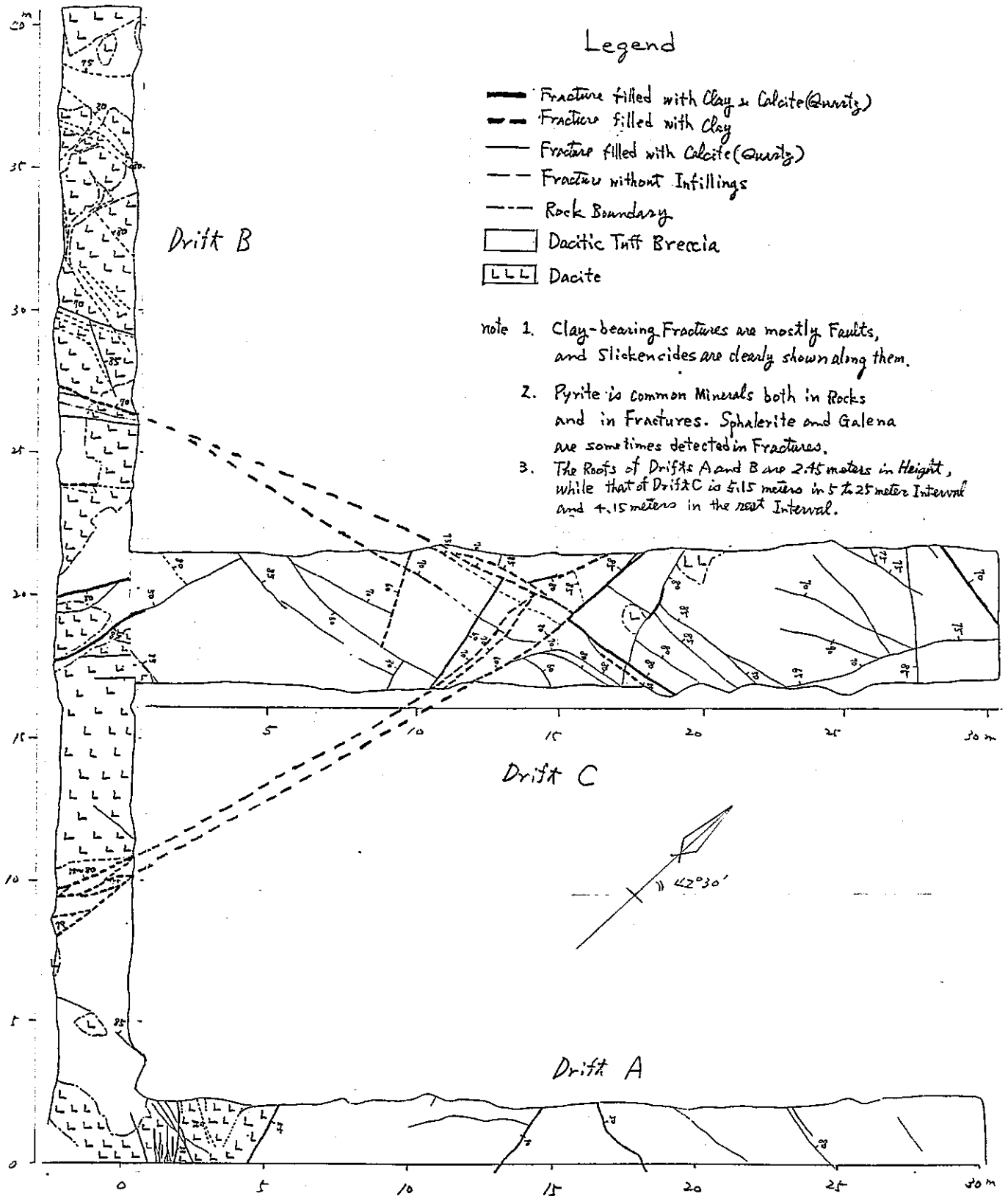
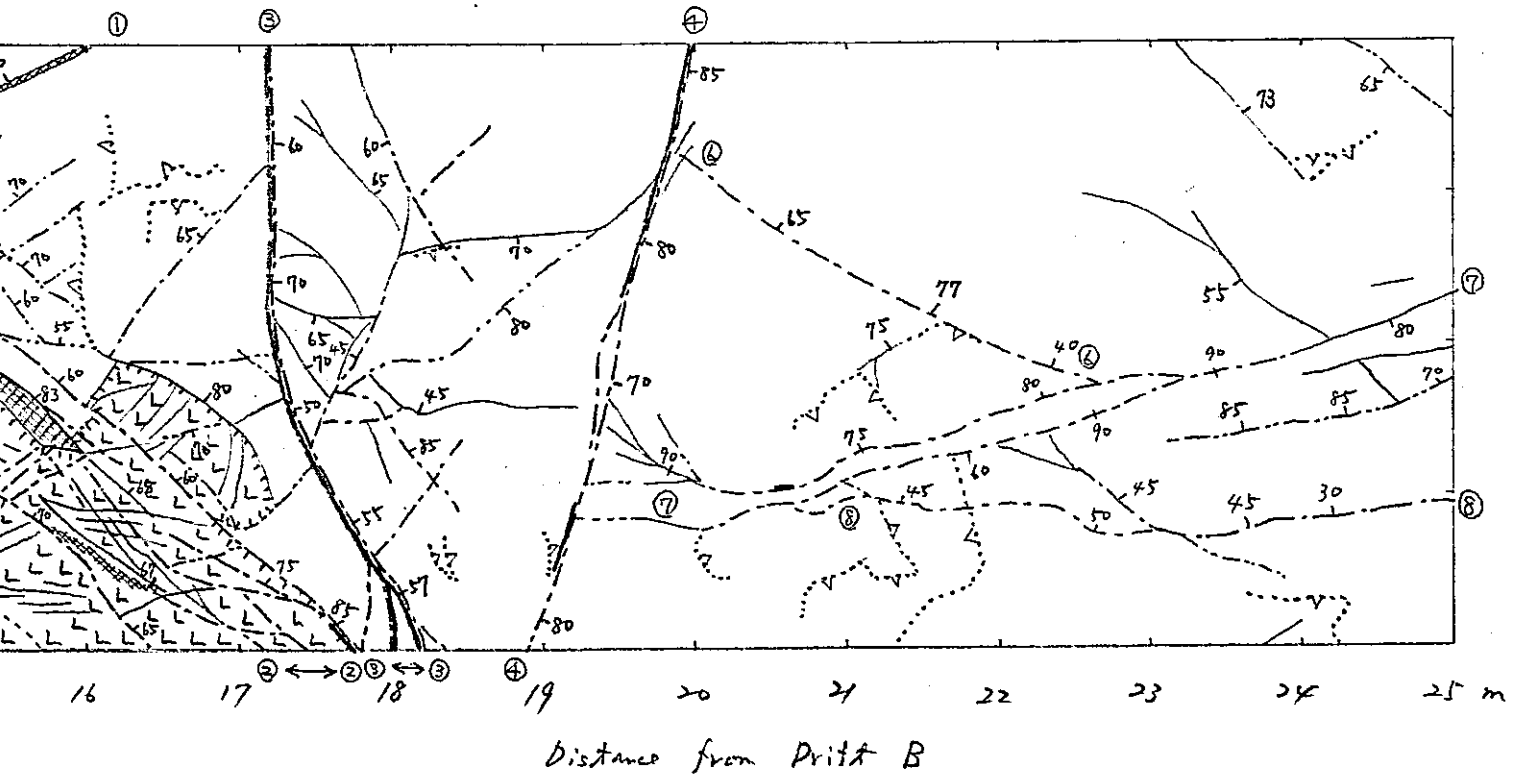
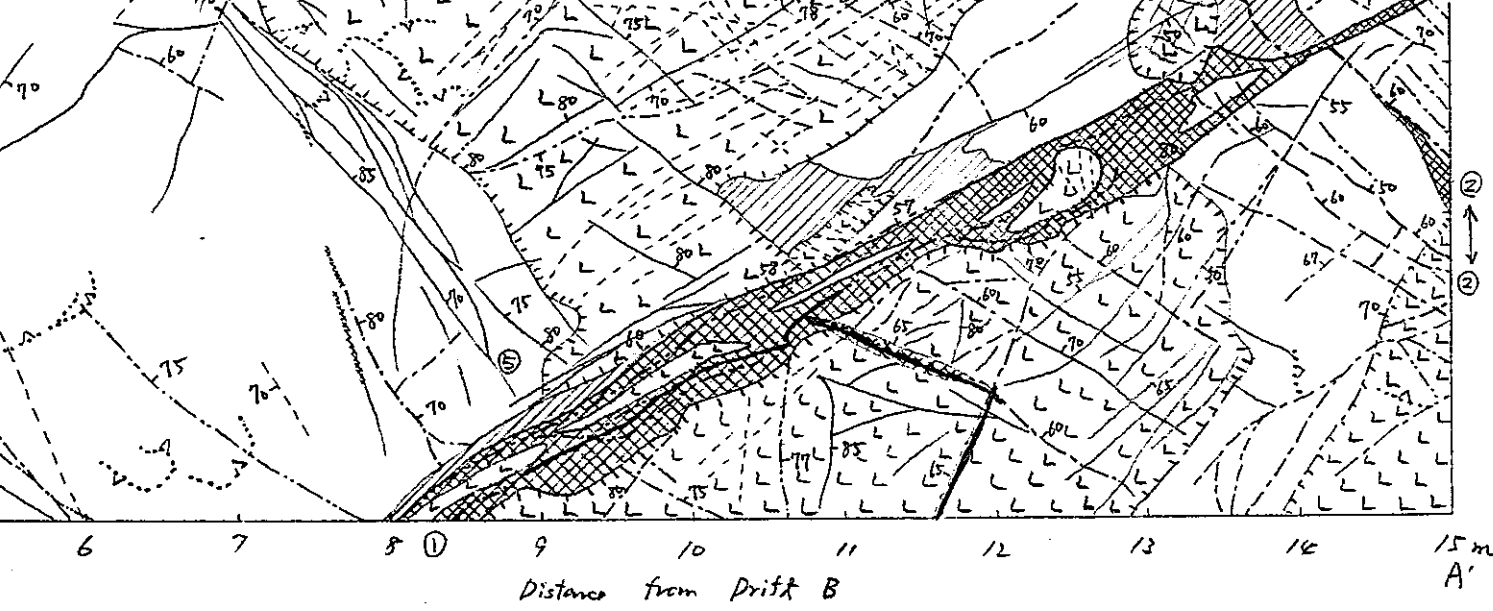


Fig. 4-7 Fracture Distribution Pattern around Drifts A, B and C.



- Legend
-△..... Artificial Fracture with Direction
 - Fracture without Intillings
 - Fracture with Quartz (and/or Calcite)
 - Fracture with Quartz (and/or Calcite) and P
 - Fracture with Pyrite
 - Ore Minerals (Shalerite, Galena)
 - ▨ Clay
 - ▨ Argillized Zone
 - ⊖ Dacite Block with Brecciated Part
 - Dacitic Tuff Breccia
 - 70° Dip of Fractures
 - ① ~ ⑧ No. of Main Fractures and Main Fra

Fig. 4-8 Geological Sketch of the Floor of Drift C.

に、割れ目を人工的割れ目、充填物を伴わない割れ目、石英（および／または方解石）を伴う割れ目、石英（および／または方解石）および黄鉄鉱を伴う割れ目、黄鉄鉱を伴う割れ目、粘土部、閃亜鉛鉱および方鉛鉱等の鉱石鉱物の部分に分類した。

天盤スケッチで認めた2方向の顕著な割れ目帯は床岩盤面においても同様に顕著である。それらの割れ目は同図においては①および②で示した。その他、C空洞に直交する方向に③および④で示す石英および黄鉄鉱を主として伴う割れ目が認められる。共に、北東方向に傾斜しているが、③は $50^{\circ} \sim 70^{\circ}$ 、④は $70^{\circ} \sim 85^{\circ}$ と③はややゆるやかな傾斜角度を示している。その他、⑤～⑧で示す割れ目も比較的明瞭に認められる割れ目であるが、これらは共に、①～④の割れ目に交差する付近でその延長が明瞭でなくなっており、①～④程大きな割れ目ではないと思われる。

①の割れ目は他の割れ目と比較して、粘土を伴う部分が大きな割合を占めている。上下盤の岩石も粘土化の程度が強い。また、内部に岩石片を包有しており、これからも本割れ目が規模の大きい割れ目であることがわかる。

Fig. 4—8のうち①～⑧の割れ目を簡略化してFig. 4—9に示した。そのうち①～④については、測定した傾斜から深度6mの深さまでその分布を推定した。⑤～⑧は①～④で一方の延長が切れているため、鉛直下方向にどの深度付近まで分布しているか推定するのが困難である。したがって、床岩盤面下におけるそれらの分布の推定は行っていない。

同図によると、①～④の主要な割れ目は急傾斜のものが多い。しかし、それらを含めた①～⑧の割れ目は比較的限なく分布している。したがって、既存試験場で実施した試験からは試験対象岩盤を多孔質系と扱いうるという結果が得られているが、本床岩盤を対象とした試験結果を解析するにあたっては、本床岩盤を割れ目系として扱わねばならない可能性が大きい。

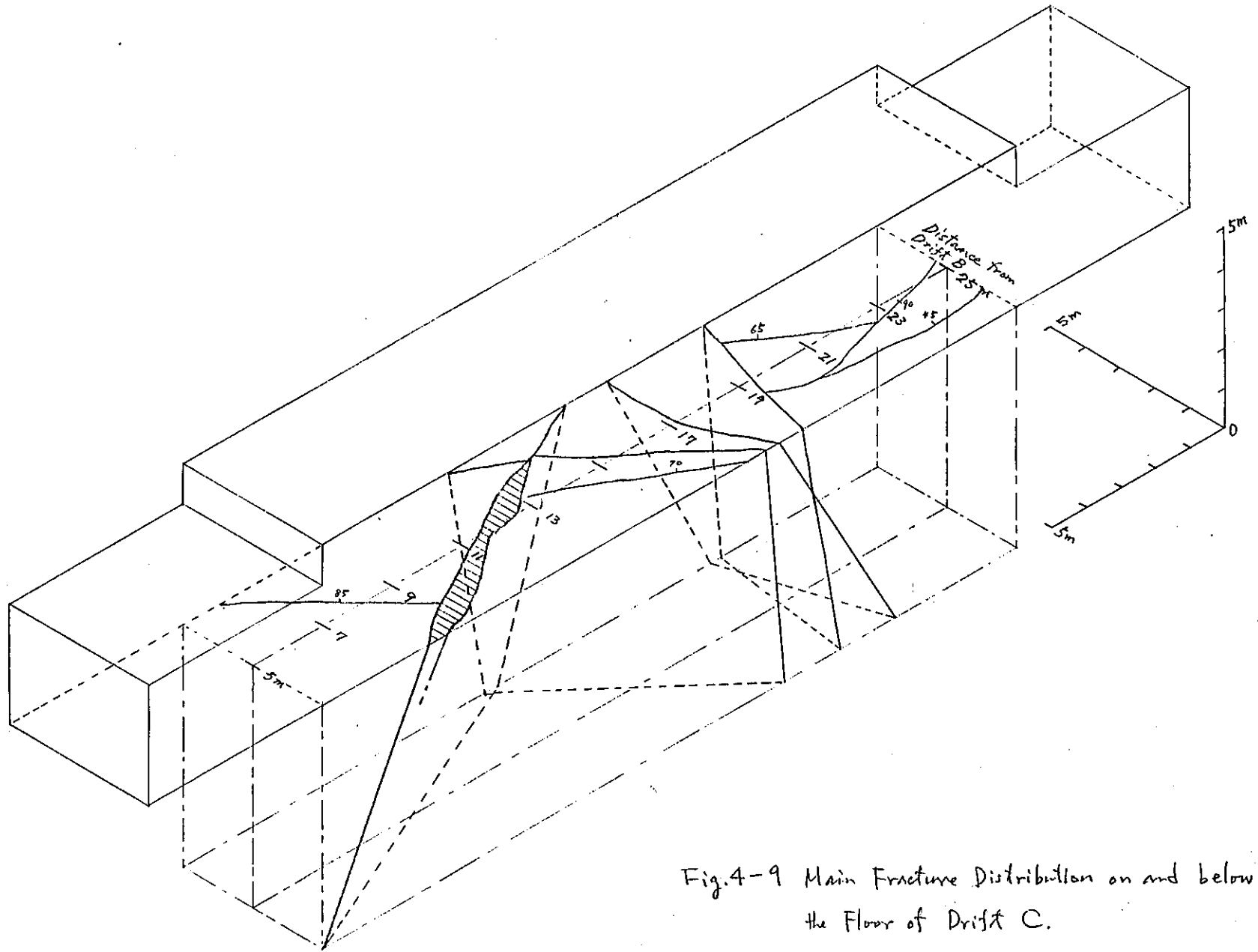


Fig.4-9 Main Fracture Distribution on and below the Floor of Drift C.

模擬 第5章 TRU核種を用いた室内核種収着試験

5.1 目的

高レベル放射性廃棄物には長半減期のTRU核種が含まれるため、地層処分安全性を評価するためにはTRU核種の地層中での挙動を予測する必要があり、このためにはTRU核種を用いた原位置核種移行試験を実施することが必要である。

しかし、原位置試験においてTRU核種を使用することは、現状において困難であるため、本年度から始まる第二フェーズの試験においては、実際のTRU核種を使用する代わりに、非放射性元素の中からTRU核種の“模擬核種”となる元素を選定し使用することが考えられる。

こうしたTRU核種の模擬核種としては、TRU核種（アクチニド元素）と化学的挙動の類似が予想されるランタニド元素を用いることが一つの方法であるが、本研究の目的は、室内収着試験を通じてこうした方法の妥当性を検討することである。

室内試験によってアクチニド元素とランタニド元素の化学的挙動および収着挙動の類似性に関する検討を行うためには、本来、アクチニド元素を用いた収着試験とランタニド元素を用いた収着試験を並行して行い、これら両者の結果を比較検討することが必要であるが、本年度に実施する室内収着試験は、こうした比較試験の予備試験として位置づけられるものである。

すなわち、本年度の研究においては、まずランタニド元素を用いた室内収着試験を実施することにより、収着試験の方法を確立し、さらに、ランタニド元素の化学的挙動を観察する。次に、観察されたランタニド元素の化学的挙動と、文献等により報告されているアクチニド元素の化学的挙動との比較を行い、ランタニド元素とアクチニド元素の化学的類似性と模擬核種としての使用可能性に関する予備的検討を行った。

TRU模擬核種の候補元素としては、主要なアクチニド元素である、トリウム、ウラン、ネプツニウム、プルトニウム、アメリシウム、キュリウムの模擬核種候補と考えられるランタニド元素として、既往の文献により示唆されているランタン、セリウム、ネオジウム、ユーロピウムの四元素を、また、ラジウムと類似の化学的性質を示すと予想されるバリウムを、それぞれ選定し、これらの元素の安定同位体を使用して収着試験を実施した。また、

試験に用いる収着媒体としては、地層中に一般的に存在し比較的均質な特性をもつ粘土鉱物であり、現在、人工バリアの一つとして考えられているベントナイト充填材にも含有される粘土鉱物であるモンモリロナイトを選定し、バッチ式収着試験法により分配係数を測定した。

5. 2 TRU模擬核種候補元素の選定

TRU模擬核種の候補元素としては、周期律表においてアクチニド元素と類似の化学的性質を示すと予想されるランタニド元素が考えられる。

ランタニド元素は、原子番号57のランタンから71のルテチウムに至る一群の元素で Table 5-1 に示されるように不活性元素の電子構造 $+4f^n 5d 6s^2$ または $4f^n 6s^2$ を持っている。2つの電子構造の相違によるエネルギー差は非常に小さいので、多くの化学的性質はそれによって変わらない。元素の種類別を与えている $4f$ は外部の電子殻によって十分遮蔽されているので化学的変化にはほとんど関係しない。

アクチニド元素は、原子番号89のアクチニウムから103のローレンシウムに至る一群の元素であり、Table 5-16 に示されるように、その電子構造は $Rn + 5f^n 6d^1$ (or d^2) $7s^2$ または $Rn + 5f^n 7s^2$ の電子構造を持っている。ランタニド元素と同様に、 d 軌道および f 軌道に電子を持っていることから、相互の類似性がうかがえる。しかし、アクチニド元素の場合は $5f$ 軌道がこれら原子の電子殻の外側に張り出しているため、 $5f$ 電子の遮蔽効果は弱められる。このため、電子は $4f$ 電子に比較して離れやすくなるため、様々な酸化状態を生じる。

Table 5-1 に示されるアクチニド元素の電子構造とランタニド元素の電子構造との比較、および、既往の実験研究の結果から、次の諸点が予想される。

- ①アクチニウムとランタンは、金属としても、イオンとしても反応が同じである。
- ②ウランの3価と4価のものは、酸化されやすい点を除けば3価のランタニド、4価のトリウムと化学的挙動が類似している。
- ③3価のアメリシウムと3価のユーロピウムは原子構造が類似であることから化学的挙動が類似している。
- ④原子番号がアメリシウムより大きいアクチニドは3価の酸化状態が安定になり、ラン

Table 5-1 Electronic Configuration of Lanthanides and Actinides.

Element	Atomic number	Number of electron.								
		1,2,3	Electron shell				Electron shell			6 6s
			4s	4p	4d	4f	5s	5p	5d	
Cs	55	28	2	6	10	—	2	6	—	1
Ba	56	28	2	6	10	—	2	6	—	2
La	57	28	2	6	10	—	2	6	1	2
Ce	58	28	2	6	10	2	2	6	—	2
Pr	59	28	2	6	10	3	2	6	—	2
Pm	60	28	2	6	10	4	2	6	—	2
Pm	61	28	2	6	10	5	2	6	—	2
Sm	62	28	2	6	10	6	2	6	—	2
Eu	63	28	2	6	10	7	2	6	—	2
Gd	64	28	2	6	10	7	2	6	1	2
Tb	65	28	2	6	10	9	2	6	—	2
Dy	66	28	2	6	10	10	2	6	—	2
Ho	67	28	2	6	10	11	2	6	—	2
Er	68	28	2	6	10	12	2	6	—	2
Tm	69	28	2	6	10	13	2	6	—	2
Yb	70	28	2	6	10	14	2	6	—	2
Lu	71	28	2	6	10	14	2	6	1	2

Element	Atomic number	Number of electron.								
		1,2,3,4	Electron shell				Electron shell			7 7s
			5s	5p	5d	5f	6s	6p	6d	
Er	87	60	2	6	10	—	2	6	—	1
Ra	88	60	2	6	10	—	2	6	—	2
Ac	89	60	2	6	10	—	2	6	1	2
Th	90	60	2	6	10	—	2	6	2	2
Pa	91	60	2	6	10	2	2	6	1	2
U	92	60	2	6	10	3	2	6	1	2
Np	93	60	2	6	10	4	2	6	1	2
Pu	94	60	2	6	10	6	2	6	—	2
Am	95	60	2	6	10	7	2	6	—	2
Cm	96	60	2	6	10	7	2	6	1	2
Bk	97	60	2	6	10	8	2	6	1	2
Cf	98	60	2	6	10	10	2	6	—	2
Es	99	60	2	6	10	11	2	6	—	2
Fm	100	60	2	6	10	12	2	6	—	2
Hd	101	60	2	6	10	13	2	6	—	2
No	102	60	2	6	10	14	2	6	—	2
Lr	103	60	2	6	10	14	2	6	1	2

82
HT

タニドと非常に類似した性質を持つようになる。例えば、イオン交換法によりランタニドおよびアクチニドからそれぞれの元素を溶離させる場合、溶離される順序はランタニドではツリウムからユーロピウム、アクチニドではメンデレビウムからアメリシウムと、周期律表の配列と良く対応している。

- ⑤ランタニドは、通常、水溶液中では3価であるが、サマリウム、ユーロピウム、イッテルビウムは2価、セリウムは4価の酸化状態でも存在する。一方、ウラン、プルトニウム、ネプツニウム、アメリシウムなどのアクチニドは3～7価の酸化状態で存在し、周辺の化学的雰囲気によってその酸化状態は異なる。また、pH条件によっても、また炭酸塩、シュウ酸塩などの共存によっても、複雑な化学種、錯体形成、沈澱生成を生じ、その化学的挙動はランタニドと比較してはるかに複雑である。

また、ペンシルバニア州立大学のMCCARTHYらは、廃棄物固化体と地下水との反応に関する研究において、ランタンとネオジウムをアメリシウムとキュリウムの模擬核種として用いており、廃棄物固化体の研究において、セリウムをプルトニウムの模擬核種として用いている例も報告されている。

以上の検討より、本研究においては、ランタニド元素のうちランタン、セリウム、ネオジウム、ユーロピウムの四元素を選定し、それぞれ次のアクチニド元素の模擬核種候補とした。

模擬核種の候補とした ランタニド元素	模擬対象とした アクチニド元素
ランタン セリウム ネオジウム ユーロピウム ランタニド元素 (3価)	アメリシウム キュリウム (アクチニウム) プルトニウム トリウム アメリシウム キュリウム ウラン アメリシウム ウラン (3価)

すなわち、ランタン、セリウム、ネオジウム、ユーロピウム、の各元素により、主要なアクチニド元素である、トリウム、ウラン、ネプツニウム、プルトニウム、アメリシウム、キュリウムのうち、ネプツニウムを除く5元素については、模擬核種候補を設定することができる。しかし、近年、安全評価の面で重要性が指摘されているネプツニウムについては、模擬核種候補となる適当なランタニド元素を選定することが困難である。

また、これらのランタニド元素に加えて、高レベル廃棄物中の主要な元素であるラジウムと類似の化学的性質を示すと予想されるバリウムを模擬核種の候補として加えることが考えられる。

5. 3 ランタニド元素とアクチニド元素の化学的挙動の比較方法

本研究の目的は、原位置試験においてランタニド元素をアクチニド元素の模擬核種として使用することの妥当性を検討するために、室内収着試験によって、ランタニド元素とアクチニド元素の化学的挙動の類似性を検討することである。そして、本年度の研究では、アクチニド元素に関する収着試験を実施する前段階の検討として、まず、ランタニド元素を用いた収着試験を実施し、収着試験の方法を確立するとともに、この試験結果を、既往の研究文献によって報告されているアクチニド元素の収着試験結果と比較することにより、ランタニド元素とアクチニド元素の化学的挙動の類似性について予備的検討を行った。すなわち、本年度の研究の方法は以下の基本的考え方にもとづくものである。

- ①ランタニド元素とアクチニド元素の化学的挙動の類似性の指標としては、本研究が地層中での移行挙動における類似性を問題としていることから、移行挙動に主要な影響を与えるパラメータである〔分配係数値〕を比較指標として採用する。
- ②分配係数値の測定方法としては、化学的条件を制御しやすく、比較的再現性が良いことから、静的試験方法である〔バッチ式収着試験法〕を採用する。
- ③収着試験における収着媒体としては、地層中に一般的に存在し、また、人工バリアのベントナイト充填材にも含有される粘土鉱物であることから、〔モンモリロナイト〕を採用した。モンモリロナイトは、既往の収着試験においてもしばしば用いられていること、および、その特性が均質であることから、既往の研究結果と比較しやすく、再現性の良い試験を実施することができる収着媒体である。
- ④収着試験の実施に際しては、次の諸点に留意する必要がある。
 - ・地層中での核種挙動に関する検討を行うことから、固相／液相比は大きいことが望ましい。
 - ・しかし、固相／液相比を大きくすると、分配係数の測定に必要な固相／液相分離が困難となることから、適切な固相／液相比を調べる必要がある。
 - ・pH等の化学的条件を一定値に設定するためには、試験溶液と収着媒体との混合時におけるpH等の変化について把握しておく必要がある。
 - ・試験における誤差要因として、試験装置壁への元素収着等が存在するため、これを検討しておく必要がある。

- ・地層処分の安全評価上問題となるTRU核種濃度は極めて低い濃度であることから試験溶液の濃度も、可能な限り低いものとし、分配係数値の濃度依存性の無視し得る濃度領域で収着試験を実施することが望ましい。従って、試験溶液中のランタニド元素の濃度は可能な限り低くし、その分析方法としては、検出感度の良い〔放射化分析法〕を採用する。
- ・しかし一方、試験溶液の濃度を低くした場合には、検出限界の問題が生じることからこれを検討し、適切な試験溶液濃度を設定する。

従って、以上の諸点を検討するためには、本試験の実施前に〔予備試験〕を実施することが必要である。

- ⑤予備試験の後に実施する本試験においては、ランタニド元素の化学的挙動を観察するため、pH条件を変化させた場合の分配係数値の変化を測定する。
- ⑥本試験の結果と比較する既往の試験研究結果としては、モンモリロナイトを収着媒体として用いていること、および、ウラン、プルトニウム、ネプツニウム、アメリシウムを対象元素として用いていることから、ANDERSSONらが実施した収着試験結果を採用する。

5.4 試験方法

5.4.1 試験溶液の調製

ランタン、ネオジウム、ユーロピウムの保存溶液はそれぞれの酸化物 (M_2O_3) を硝酸に溶解し、Table 5-2 に示した濃度に調製した。ただし、セリウムとバリウムはそれぞれの硝酸塩を蒸留水 (イオン交換水をさらに3回蒸留したもの) に溶解して保存溶液とした。

(和光純薬工業株式会社)

Table 5-2 Selected Element Concentration of Stocked Solution.

Element	La	Ce	Nd	Eu	Ba
Concentration	1.000	1.008	1.000	13.72	1.004

(M^{3+} mg/ml, Eu: μ g/ml)

この保存溶液をマイクロピペットで適量分取し、アンモニア水と硝酸を加え所定の元素濃度とpHに調整した。さらに温度と酸化還元電位を測定した。このようにして実験条件に合う対象元素の試験溶液を30.0 ml調製した。なお、使用したpHメータは電気化学計器株式会社COM-8型卓上デジタルpH計である。

5.4.2 モンモリロナイト

クニミネ工業株式会社の高純度ソジウムモンモリロナイト、クニピアー-Gを使用した。下記の項目につき測定し、その結果は次の通りであった。

(1) X線回折法によるモンモリロナイトの同定

(a) 無処理

12.50, 6.276, 3.118 Åの強い回折線を示す。25.96 Åの回折線は、層間のカチオン (主に (Na, Ca) のunmixingによる混合層的な構造を示すと思われる。

(b) E. G. 処理

エチレングリコール処理により回折線は 17\AA とその高次線となりモンモリロナイトと判定できる。

(c) 加熱処理

300°C の加熱処理で 9.9\AA とその高次線となり、モンモリロナイトと判定できる。

(2) 化学分析法による主要元素含有率の測定

(a) 分析方法

試料 0.1g をHFと KClO_4 で分解、ICP-OES (Inductively Coupled Optical Emission Spectrometry) 法で測定した。

(b) 結果

Table 5-3 Chemical Composition of Montmorillonite.

Constituent	Content (%)
SiO_2	54.66
TiO_2	0.12
Al_2O_3	22.47
Fe_2O_3	1.93
MnO	0.02
MgO	3.28
CaO	0.41
Na_2O	3.03
$\text{H}_2\text{O}(+)$	6.11
$\text{H}_2\text{O}(-)$	7.92
P_2O_5	0.03
Total	100.14

メーカーの試験データと比較して SiO_2 の値が多少異なるが、モンモリロナイトの分析値として妥当なものとする。

(3) 陽イオン交換容量の測定

(a) 方法

ショーレンベルジャー法により NH_4OH で陽イオンを交換し、交換性陽イオンは、ICP-OES法で分析した。

(b) 結果

陽イオン交換能 120meq/100g

Table 5-4 Percentage of Cation Exchange Capacity.

Cations	%
Na ⁺	81.5
K ⁺	7.2
Mg ⁺⁺	2.1
Ca ⁺⁺	9.0
Al ⁺⁺⁺	0.2

(4) 粒度分布の測定

(a) 方法

光透過式粒度分布測定装置(平沼粒度分布測定装置PSA-2型)を用いて測定した。

(b) 結果

分析のチャートから粒度組成のヒストグラム(Fig.5-1)を作成した。0.4 μ m以下の微細粒子のみから成り、中央粒径はおよそ0.28 μ mと見積もられる。

(5) 吸着表面積の測定

(a) 方法

柴田化学表面積測定装置P-700を用いてN₂吸着のBET法により測定した。

(b) 結果

1.32m²/gという値が得られた。

5.4.3 バッチ試験

(1) 予備試験

本試験を始めるにあたり、以下の点を明らかにするために予備試験を行った。

(a) 目的

(i) モンモリロナイトの粒径が小さいので、バッチ試験の際の岩石と溶液との分離の可能性について調べる。

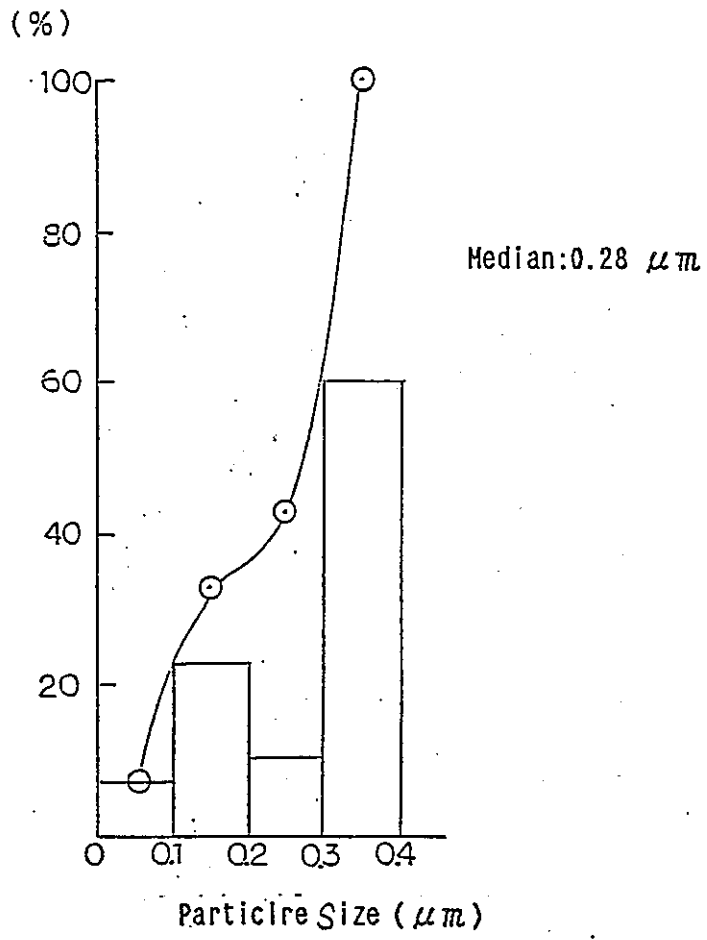


Fig.5-1 Particle Size Distribution.

- (ii) 溶液と岩石との混合時におけるpH変化について調べる。
- (iii) モンモリロナイトを添加しない状態で同じ吸着試験の操作を行った時の対象元素の損失について調べる。(ブランク試験)
- (iv) 対象元素の吸着率の予測を行い本試験における濃度を設定する。
- (v) 試験後におけるモンモリロナイトに吸着した元素の分析感度について調べる。
- (b) 結果

Table 5-5 Change of pH Value with Standing Time and Centrifugation.

Montmorillonite weight (g)	Concentration of montmorillonite	Initial pH	Treatment	Final pH
5	1.6	5.38	Standing for a day	8.54
1	0.3	5.38	Centrifuge after a day standing	8.42
1	0.3	2.54	Centrifuge after 4hrs standing	2.94
1	0.3	9.75		9.84

*遠心分離機はトミー精工製MODEL-RS-71Aロータイプ9N, 最大10000rpm(16000G)を使用した。

(i) モンモリロナイト1~5gと試験溶液300mlとを混合した場合、遠心分離機にて分離後、上澄液を0.45 μ m, 142mm ϕ ミリポアフィルターで吸引濾過の一連の操作を行った結果、固-液分離可能なモンモリロナイトの重量は1gで、吸引濾過操作に要する時間は20分である事がわかった。

(ii) 購入したモンモリロナイトのカタログでは濃度2%においてpH10.1となっている。この試験では1日放置後においては濃度によるpHの差は認められず、pH8.4~8.5であった。また、初期pHを2.54と9.75にした場合、4時間後では顕著なpHの変化が認められなかった。

(iii) 熱中性子束 $1.0 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ で10分間照射を行い、比較的 analysis 感度のよいと思われる短寿命核種 (Table 5-6) を測定対象核種とした。しかし、溶液中の ^{24}Na による妨害の為、対象核種の光電ピークがマスクされ上澄液中の微量な元素量や溶出バックグラウンド量を把握することはできなかった。それに対してモンモリロナイト中のバックグラウンド量の測定は、熱中性子束 $3.2 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ で5時間照射して15日間冷却し ^{24}Na の減衰を待って行ったので、セリウムでも数 μ gオーダーで検出可能であることがわかった。

(c) 予備試験の結果をもとにした本試験の試験条件

- (i) 分析感度を向上させるために長時間照射(中央実験管にて5時間照射)を行い、 ^{24}Na の減衰を待って測定を行った。

Table 5-6 Radionuclides Selected in the Sorption Experiment.

Element	Nuclide	Half-life	Radioactivity Yield* ($\mu\text{Ci}/\mu\text{g}$)	Note
La	^{140}La	40.3 h	1.8×10^{-2}	○ △
Ce	^{137}Ce	9.0 h	1.0×10^{-4}	○ △
	^{141}Ce	32.5 d	5.2×10^{-5}	
	^{143}Ce	33.0 h	2.5×10^{-4}	
Nd	^{147}Nd	11.0 d	6.6×10^{-5}	○ △
	^{149}Nd	1.7 h	5.3×10^{-3}	
	^{151}Nd	12.4 m	7.3×10^{-3}	
Eu	$^{152\text{m}2}\text{Eu}$	96.0 m	6.8×10^{-2}	○ △
	$^{152\text{m}1}\text{Eu}$	9.3 h	1.2×10^{-1}	
	^{152}Eu	13.3 y	3.1×10^{-4}	
	^{154}Eu	8.6 y	3.4×10^{-5}	
Ba	$^{131\text{m}}\text{Ba}$	14.6 m	3.0×10^{-4}	○ △
	^{131}Ba	12.0 d	3.8×10^{-6}	
	^{139}Ba	82.7 m	1.2×10^{-2}	

*: Calculated Value on the basis of irradiation of thermal neutron flux
($1.0 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)

○: Nuclide selected in the main experiment

△: Nuclide selected in the preliminary experiment

(ii) 予備試験の際には試料の損失が比較的多かったので、本試験においてはバリウムを除くランタニドを効率よく捕集するため水酸化第二鉄による鉄共沈を行った。なお、バリウムおよび混合試験については酸性にして濃縮した後濾紙上で蒸発乾固した。

(iii) 分配係数の測定—取着試験中にフラスコの器壁への吸着による損失がある場合も考えられるので、上澄液およびモンモリロナイト中の両方の元素量を求めることによって分配係数を測定した。

(iv) 試料の初期濃度の設定—モンモリロナイト中の元素の定量は(i)の条件で行えば数 μg オーダで検出可能である。モンモリロナイト中のバックグラウンド量と比較して添加する元素量が少ない場合、正確な取着を求めることが出来ないので、ランタン、セリウム、ネオジウムについては1 ppm (300 μg)、ユーロピウムについては0.01 ppm (3 μg)、バリウムについては5 ppm (1500 μg)の濃度を初期濃度とする。

(2) 本試験

(a) 吸着試験

Table 5-7 に示すような条件で試験を行い、初期および吸着試験終了時の試験溶液の pH, Eh, 温度、また吸着試験終了時の上澄液およびモンモリロナイトに吸着した対象元素濃度を定量し分配係数を求めた。

Table 5-7 Conditions of the Main Sorption Experiment

Element	La	Ce	Nd	Eu	Ba	La+Ce+Nd+Eu+Ba
Initial concentration (ppm)	1	1	1	0.01	5	1 + 1 + 1 + 0.01 + 5
pH3	○	○	○	○	○	○
pH7	○	○	○	○	○	○
pH10	○	○	○	○	○	○

(b) ブランク試験

吸着試験において、試験溶液のかわりに蒸留水をもちいて試験終了後のモンモリロナイトおよび上澄液中の対象元素を定量した。

(c) 試験方法

(i) ランタン、セリウム、ネオジウム、ユーロピウムの単一元素試験

モンモリロナイトを110℃の乾燥器で乾燥後、(1.00 ± 0.01)gを秤量し、試験溶液(300ml)中に分散させて振盪器で2時間振盪した。振盪速度は100往復/minである。22時間静置して10000rpm(最大遠心加速度16000G)で20分間遠心分離した。上澄液は0.45μm, 142mmφのミリポアフィルタで吸引濾過し、ろ液のうち200mlを照射に供し、残液を使って試験終了後pH, 酸化還元電位, 温度を測定した。

ろ液200mlに塩酸を加えてpH1以下とし、Fe³⁺ 5mg(FeCl₃)とアンモニア水を加えて加熱し水酸化第二鉄の沈澱を熟成させた。東洋ろ紙No5Aで濾過し、沈澱を赤外線ランプで乾燥させて照射試料とした。また、試験後のモンモリロナイトは薬さじでかきだして時計皿中で風乾させ、メノウ乳鉢を使って粉碎した。ついで、110℃の乾燥器中で3時間乾燥させ約100mgを精秤して照射試料とした。照射試料はいずれもポリエチレン袋に二重に封入した。

標準試料は保存溶液を吸着試験と同じ量だけ東洋濾紙に滴下し、乾燥後、ポリエチ

標準試料は保存溶液を収着試験と同じ量だけ東洋濾紙に滴下し、乾燥後、ポリエチレン袋に二重に封入して照射試料とした。ただし、セリウムについては既知量の CeO_2 を硫酸で溶解させたものを標準溶液とし、他の元素と同様に濾紙に滴下した。

以上の操作をフローチャートとしてFig.5-2に示した。

(ii) 単一元素試験(バリウム)と混合元素試験

0.45 μm 142mm ϕ のミリポアフィルターで吸引濾過後にろ液の一部に塩酸を加えてpH1以下に調節するところまでの操作とモンモリロナイトの処理、pH等の測定は(i)と同様である。ろ液に塩酸を加えたのち、ロータリエバポレータで濃縮しピーカーに移して徐々に蒸発濃縮した。濃縮液を東洋濾紙No.5Aに滴下して赤外線ランプで乾燥させ照射試料とした。

以上の操作をフローチャートとしてFig.5-3に示した。

(iii) ブランク試験

試験溶液のかわりに蒸留水を用いてFig.5-3と同様な操作で行った。

5.4.4 照射, 測定及び解析

照射は武蔵工業大学原子力研究所TRIGA-II型原子炉中央実験管熱中性子束 $3.2 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ でフラックスモニタ(AI/AUワイヤ純度99.9845%)とともに5時間照射し11~13日間冷却後1000~3000秒測定した。水酸化第二鉄共沈した照射試料については4日間冷却後1000~3000秒測定した。測定核種はTable 5-5に示す。

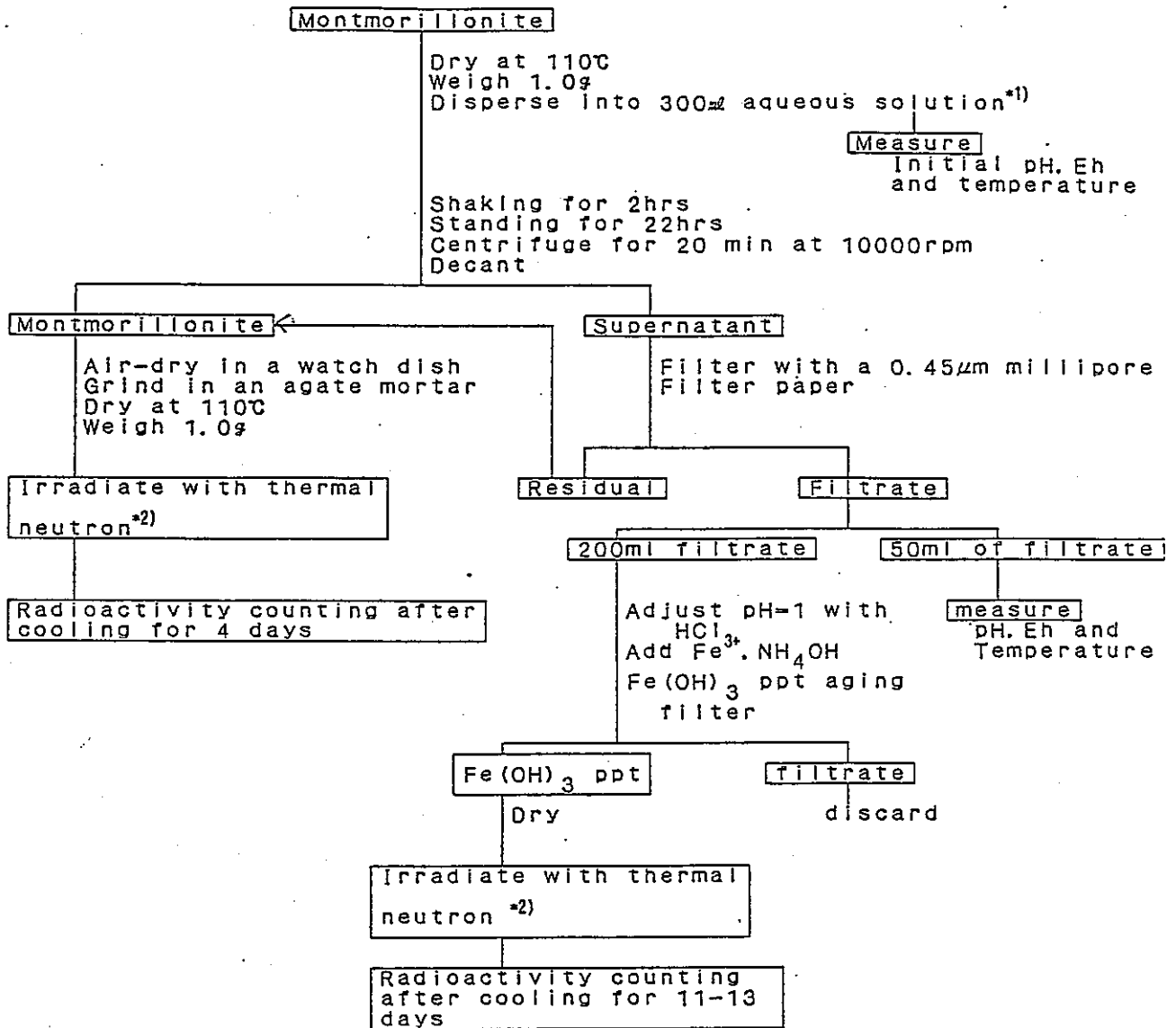
測定は東京都立アイソトープ総合研究所の純Ge検出器(ORTEC製相対検出効率15%,有効体積約50cc,分解能2keV)とマルチチャンネルアナライザー(CAMBERA SERIES 35PLUS)を用いて行った。

データ解析はパーソナルコンピュータAPPLEを使用し、Covell法により行った。

標準試料は、測定の際に幾何学的効率を同一にするためつぎのように調製して使用した。

① 試験後のモンモリロナイト中に含まれる対象元素の定量にはJB-1を標準試料として使用した。JB-1をメノウ乳鉢で粉碎して110°Cで3時間乾燥後約100mg精秤してポリエチレン袋に二重に封入した。

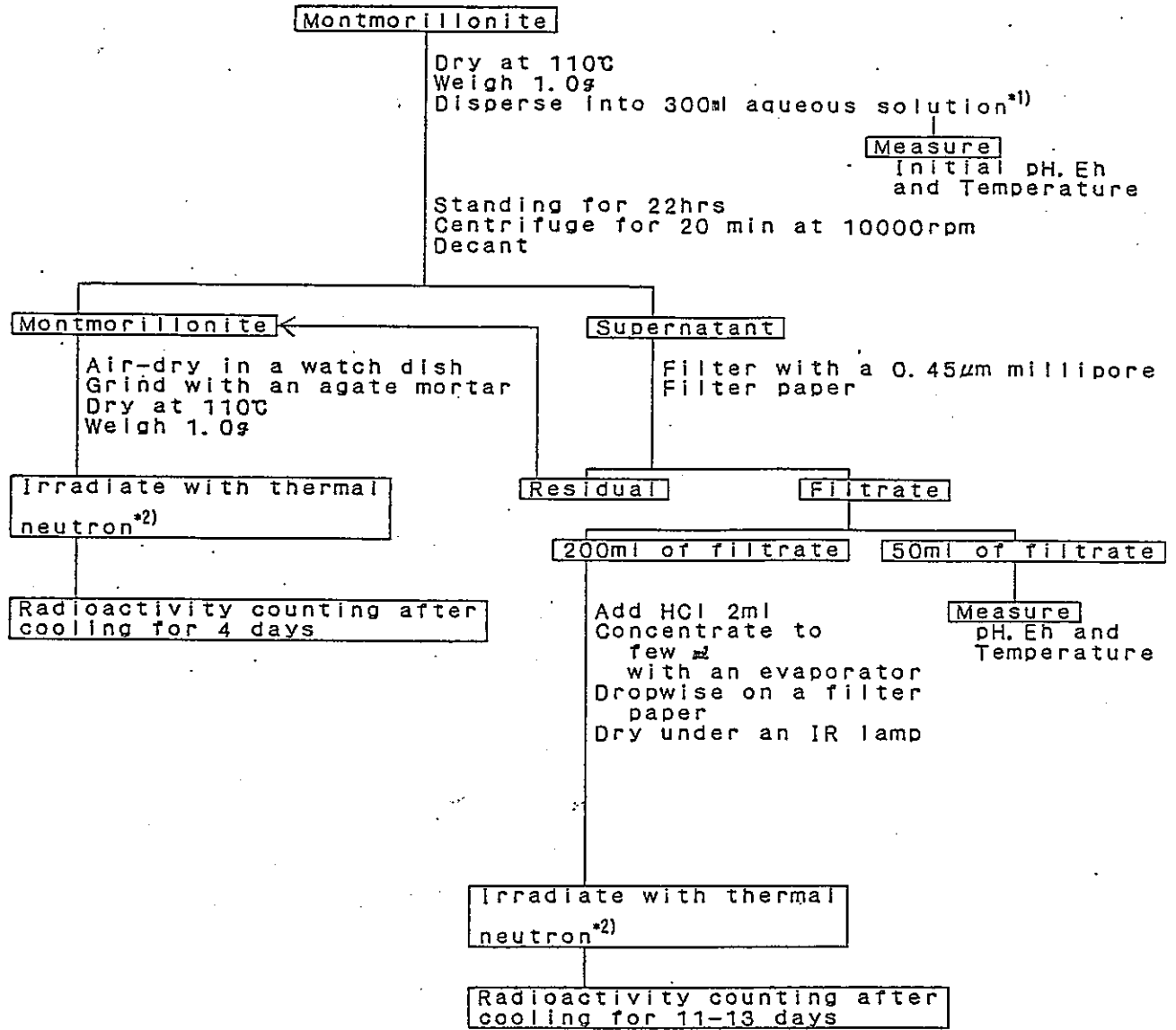
② 上澄液中に残存した対象元素の定量は保存溶液を濾紙に滴下して赤外線ランプで乾燥させポリエチレン袋に二重に封入して行った。



*1) Solution contains one element selected from among La (300µg), Ce (365 µg), Nd (300µg) and Eu (3µg).

*2) Thermal neutron flux; $3.2 \times 10^{12} \text{ n, cm}^{-2}, \text{ s}^{-1}$, irradiation; 5hrs in a central thimble

Fig. 5-2 Experimental Procedure for the Sorption Measurement (Single Element Run).



*1) Solution contains either Ba (1500µg) (single element run) or all of La, Ce, Nb, Eu and Ba (Mixed elements run)

*2) Thermal neutron flux; $3.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, Irradiation; 5hrs in a central thimble

Fig. 5-3 Experimental Procedure for the Sorption Measurement of Ba and Mixed Elements.

5.5 試験結果

5.5.1 モンモリロナイト中のバックグラウンド元素量とブランク試験

モンモリロナイト中に含まれているランタン，セリウム，ネオジウム，ユーロピウム，バリウムのバックグラウンド量を定量した結果をTable 5-8に示す。

ブランク試験における結果をTable 5-9に示す。ブランク試験ではセリウムとネオジウムがモンモリロナイトから蒸留水へ溶出してくることががわかった。

5.5.2 pHと酸化還元電位 (Eh)

Table 5-10, Table 5-11は単一元素試験及び混合元素試験のpH条件を変化させた時の初期と収着試験終了時についてそれぞれpHとEhの測定結果を示す。初期のpHとEhは調整した試験溶液のものを示し、試験終了時のpHとEhは0.45 μ mのミリポアフィルタでろ過した時のろ液のpHとEhを示している。なお、ブランク試験の初期のpHとEhは蒸留水の値を示している。

(1) pH

単一元素試験ではいずれの元素の試験においてもpHを2.8~3.2に調整した試験溶液、及びpHを6.8~7.3に調整した試験溶液は試験終了後にはpHが8.0~9.4に、またpHを9.9~10.0に調整した試験溶液は試験終了後にはpHが8.7~9.8に変化した。また混合元素試験においても同様な結果が得られた。ブランク試験ではpHが5.6~6.2から7.3~8.7に変化した。

以上の結果から、試験終了後のpHは試験溶液のpHに拘らず(pH 2.8~pH 10.0の範囲において)、9.3~9.8になることが分かった。

(2) Eh

単一元素試験ではいずれの元素においてもpH3の条件の時、Ehが500~540mVから190~240mVに低下した。また、pH7の条件の時セリウム以外の元素ではEhは280~310mVから150mV~200mVに低下した。一方、pH10の条件の時セリウムの場合は、試験前後において80mVから190mVに変化した。その他の元素についてはEhの変化はほとんど認められなかった。

混合元素試験ではpH3, 7の条件においては単一元素試験におけるセリウムを除く他の元素と同様な結果が得られ、pH10の条件ではEhは80mVから120mVに変化した。

ブランク試験ではEhが340~360mVから280~350mVに変化した。

以上結果からセリウムを除く元素試験では、EhはpHに依存し、試験終了後pHが8.0~9.8になったとき、Ehもまた120~220mVの範囲内となった。

Table 5-8 Background Element Contents in Montmorillonite.

La	Ce	Nd	Eu	Ba
18.7 ± 0.7	51.0 ± 0.7	20.5 ± 0.9	0.77 ± 0.05	170 ± 20

(μg/g)

*Average value of data from three samples and standard deviation calculated on the basis of counting error.

Table 5-9 Blank Test.

Element	Concn. in montmorillonite. (μg/g)	Concn. in supernatant. (×10 ⁻³ μg/ml)
La	25.3 ± 0.7	—
Ce	69.8 ± 0.9	9.3 ± 0.3
Nd	23.2 ± 1.0	17.0 ± 0.7
Eu	1.1 ± 0.2	—
Ba	196 ± 23	—

Table 5-10 Initial and Final Values of pH & Eh in the Sorption Experiment.
(Single Element Run)

Element	pH Range	Measured pH	Measured Eh
		Initial / Final	Initial / Final
La	pH 3	2.86	532
		8.22	196
	pH 7	7.00	288
		8.63	202
	pH10	10.02	125
		9.35	132
Ce	pH 3	3.19	502
		8.09	227
	pH 7	7.28	184
		9.05	183
	pH10	9.97	84
		8.71	188
Nd	pH 3	3.15	541
		8.25	215
	pH 7	6.86	279
		8.66	201
	pH10	9.96	137
		9.75	139
Eu	pH 3	3.11	496
		8.49	191
	pH 7	6.96	300
		9.37	153
	pH10	9.44	146
		9.44	155
Ba	pH 3	3.14	503
		8.17	241
	pH 7	6.90	310
		8.83	199
	pH10	9.94	153
		9.65	154

Table 5-11 Initial and Final Values of pH & Eh in the Sorption Experiment.
 (Mixed Elements Runs and Blank Test)

Element	pH Range	Measured pH		Measured Eh	
		Initial	Final	Initial	Final
Mixture of selected Elements	pH 3	2.84		532	
		8.51		200	
	pH 7	6.89		274	
		9.89		122	
	pH 10	9.87		79	
		9.86		117	
Blank Test	Sample No.				
	1	5.65		355	
		8.52		353	
	2	6.21		344	
		8.73		280	
	3	5.86		347	
		7.34		312	

5.5.3 吸着試験結果

吸着試験で得られた分配係数の値 (K_d) を Table 5-13 ~ 14 にまとめた。表中の誤差の数値はすべて計数誤差から計算した値で、放射能の計数の際に生ずる統計的な誤差を示す。また分配係数の値 (K_d) と試験溶液の初期 pH との関係を図 5-4, Fig. 5-5 に示す。

(1) 単一元素試験

ランタン, セリウム, ネオジウム, ユーロピウム, バリウムの各元素の吸着試験の結果、分配係数の値 (K_d) は、ほとんどが 10^4 オーダであり、大部分がモンモリロナイトへ吸着していることがわかった。特に pH 3 でネオジウムは K_d 値が 1.5×10^5 ml/g で最も高い値を示した。

また、各元素の吸着挙動の pH 依存性について検討すると、ランタン, セリウム, ユーロピウム (pH 10 を除く。), バリウム (pH 3 を除く。) の各元素において pH が低くなるに従い K_d 値が大となった。他方、ネオジウムは K_d 値が pH 7 の条件で pH 3 と pH 10 と比較して小さくなった。

pH 7 の条件で各元素を K_d 値の大きい順に並べると次のようになった。

$$La, Ba > Eu > Nd > Ce$$

(2) 混合元素試験

バリウムを除く各元素の K_d 値は pH 3 と pH 7 の条件で 10^4 オーダであった

また、単一元素試験と同様に、ランタン, セリウム, ユーロピウム, ネオジウムの各元素の吸着挙動は、pH が低いほど K_d 値が大きい。他方、pH の高い (pH 10) 条件下では K_d 値を pH 7 の条件と比較すると K_d 値が 10^3 オーダで 1 オーダ低くなった。

pH 7 の条件下で各元素の K_d 値の大きい順に並べると、次のようになった。

$$La, Ce > Nd, Eu$$

Table 5- Data to Calculate Kd in the Single Element Run.

Element and pH	Concn. (ppm)	Added amount. (μg)	Irradiation sample		Concn. In montmorillonite. ($\mu g/g$)	Supernatant / 200 ml		Kd (ml/g)
			Weight (g)	Observed content (μg)		Observed content (μg)	Concn. in supernatant ($\times 10^{-3} \mu g/ml$)	
La 3	1.00	300	0.1034	36.5 \pm 1.1	353 \pm 11	0.855 \pm 0.01	4.28 \pm 0.05	82500 \pm 2700
			0.1008	29.8 \pm 0.9	296 \pm 9	1.23 \pm 0.01	6.15 \pm 0.05	48100 \pm 1500
			0.1047	29.4 \pm 0.8	281 \pm 8	1.67 \pm 0.02	8.35 \pm 0.10	33700 \pm 1000
Ce 3	1.218	365.4	0.1023	49.8 \pm 1.1	487 \pm 11	<0.13	<0.65	>749000
			0.1030	41.3 \pm 0.9	401 \pm 9	4.62 \pm 0.16	23.1 \pm 0.80	17400 \pm 700
			0.1033	37.3 \pm 0.6	361 \pm 6	9.98 \pm 0.18	49.9 \pm 0.90	7230 \pm 180
Nd 3	1.00	300	0.1006	42.1 \pm 2.3	418 \pm 23	0.548 \pm 0.048	2.74 \pm 0.24	153000 \pm 16000
			0.1007	36.2 \pm 2.0	359 \pm 20	2.79 \pm 0.08	14.0 \pm 0.40	25600 \pm 1600
			0.1016	35.0 \pm 1.8	344 \pm 18	1.99 \pm 0.06	9.95 \pm 0.30	34600 \pm 2100
Eu 3	0.0101	3.0184	0.1017	0.403 \pm 0.030	3.96 \pm 0.29	0.0191 \pm 0.0021	0.0955 \pm 0.0105	41500 \pm 5500
			0.1005	0.320 \pm 0.025	3.18 \pm 0.25	0.0193 \pm 0.0020	0.0965 \pm 0.0100	33000 \pm 4300
			0.1017	0.333 \pm 0.018	3.27 \pm 0.18	<0.0061	<0.031	>105000
Ba 3	4.55	1500	0.1036	178 \pm 15	1720 \pm 140	-	-	-
			0.1036	185 \pm 16	1790 \pm 150	7.50 \pm 2.07	37.5 \pm 10.4	47700 \pm 13800
			0.1006	166 \pm 11	1650 \pm 110	11.8 \pm 2.2	59.0 \pm 11.0	28000 \pm 5500

103

Table 5-13 Data to Calculate Kd in the Mixed Elements Run.

Element and pH	Concn. (ppm)	Added amount. (μg)	Irradiation sample		Concn. in montmorillonite. ($\mu\text{g}/\text{g}$)	Supernatant / 200 ml		Kd (ml/g)
			Weight (g)	Observed content (μg)		Observed content (μg)	Concn. in supernatant ($\times 10^{-3} \mu\text{g}/\text{ml}$)	
La 3	1.00	300	0.1029	31.0 ± 1.1	301 ± 11	1.15 ± 0.07	5.75 ± 0.35	52300 ± 3700
				34.2 ± 1.2	332 ± 12	1.66 ± 0.09	8.30 ± 0.45	40000 ± 2600
				28.8 ± 0.8	280 ± 8	12.6 ± 0.2	63.0 ± 1.0	4440 ± 150
Ce 3	1.218	365.4	"	41.4 ± 0.9	402 ± 9	1.41 ± 0.09	7.05 ± 0.45	57000 ± 3900
				50.3 ± 1.1	489 ± 11	2.71 ± 0.12	13.6 ± 0.60	36000 ± 1800
				41.5 ± 0.6	403 ± 6	15.7 ± 0.2	78.5 ± 1.0	5130 ± 100
Nd 3	1.00	300	"	36.7 ± 2.1	357 ± 20	2.43 ± 0.18	12.2 ± 0.90	29300 ± 2700
				42.6 ± 2.4	414 ± 23	3.05 ± 0.14	15.3 ± 0.70	27100 ± 1900
				37.9 ± 2.0	368 ± 19	14.8 ± 0.3	74.0 ± 1.5	4970 ± 280
Eu 3	0.0101	3.0184	"	0.431 ± 0.035	4.19 ± 0.34	0.0214 ± 0.0056	0.107 ± 0.028	39200 ± 10700
				0.520 ± 0.042	5.05 ± 0.41	0.0362 ± 0.0065	0.181 ± 0.033	27900 ± 5600
				0.416 ± 0.021	4.04 ± 0.20	0.194 ± 0.010	0.970 ± 0.050	4160 ± 300
Ba 3	5.00	1500	"	168 ± 16	1630 ± 160	<8.7	<44	>37000
				212 ± 20	2060 ± 190	—	—	—
				174 ± 11	1690 ± 110	40.7 ± 4.1	204 ± 21	8280 ± 1000

Table 5-1/4 Distribution Coefficients.

	pH	La	Ce	Nd	Eu	Ba
Single element run.	3	8.3±0.3	>7.5	15±2	4.2±0.6	-
	7	4.8±0.2	1.7±0.1	2.6±0.2	3.3±0.4	4.8±1.4
	10	3.4±0.1	0.72±0.2	3.5±0.2	>10.5	2.8±0.6
Mixed elements run.	3	5.2±0.4	5.7±0.4	2.9±0.3	3.9±1.1	>3.7
	7	4.0±0.3	3.6±0.2	2.7±0.2	2.8±0.6	-
	10	0.44±0.02	0.51±0.01	0.50±0.03	0.42±0.03	0.83±0.1

($\times 10^4$ ml/g)

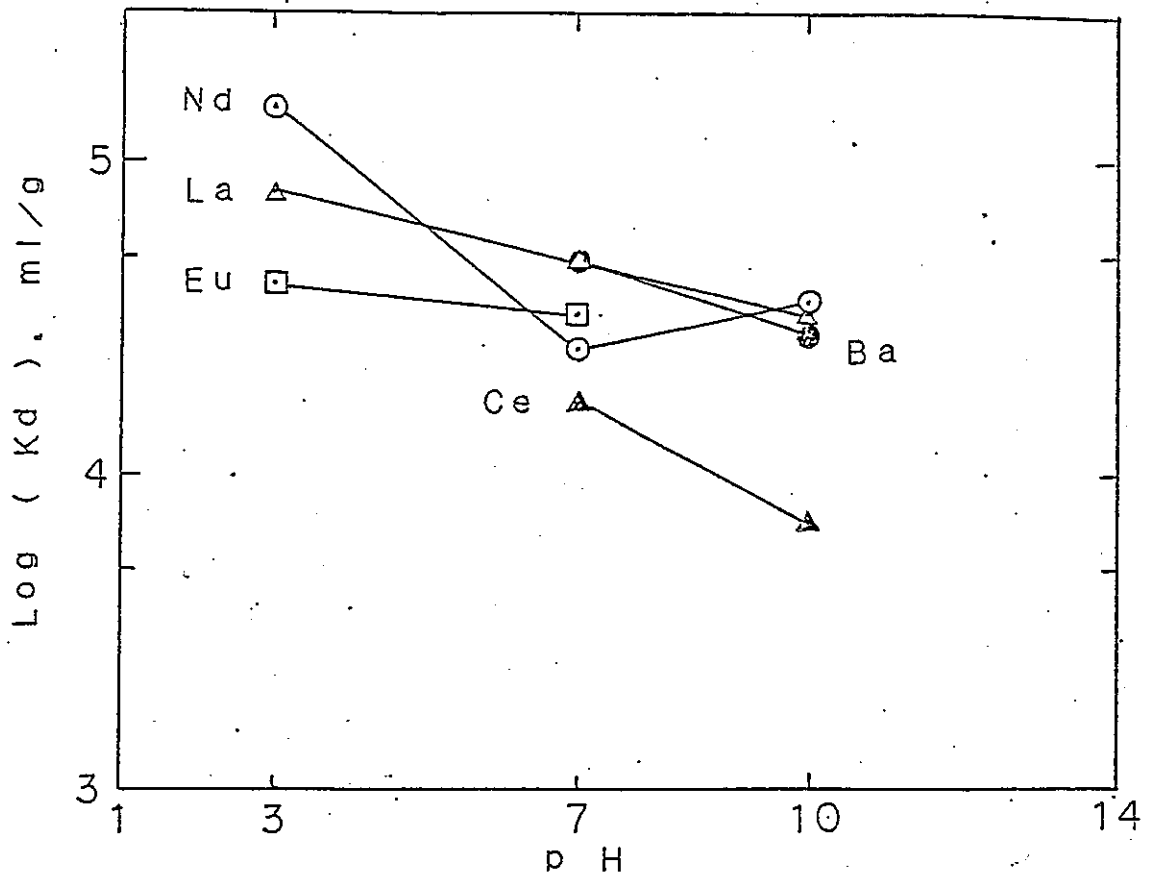


Fig.5-4 pH Dependence on Distribution Coefficient (Single Element Run).

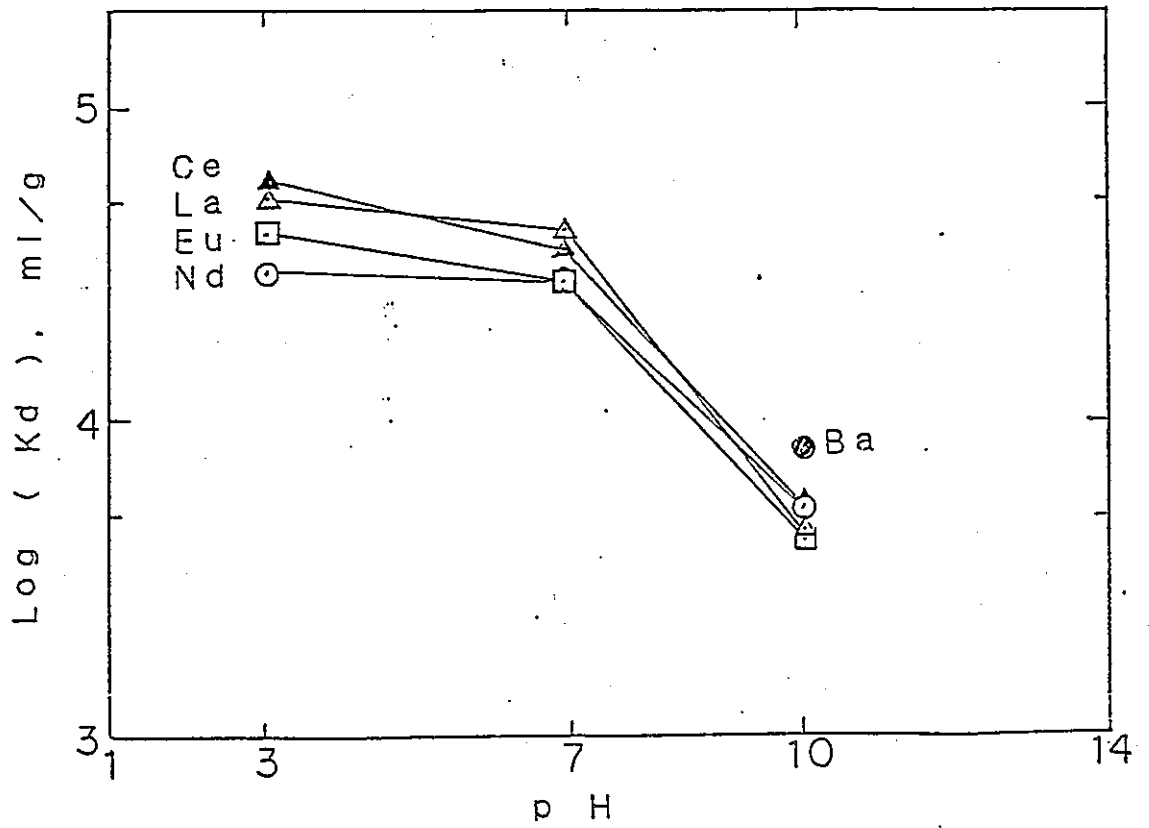


Fig.5-5 pH Dependence on Distribution Coefficient (Mixed Elements Run).

5. 6 考察

5. 6. 1 検討課題

本研究の目的は、将来実施する原位置核種移行試験において、TRU核種（アクチニド元素）を使用する代わりに、アクチニド元素と化学的挙動の類似が予想されるランタニド元素を“模擬核種”として使用する方法の妥当性を検討することである。

ランタニド元素をアクチニド元素の模擬核種として用いる方法の妥当性を検討するためには、本来、アクチニド元素を用いた収着試験とランタニド元素を用いた収着試験をそれぞれ実施し、両者の結果を比較することが不可欠であるが、本年度は、こうした比較試験を実施するための予備試験として、まず、ランタニド元素を用いた室内収着試験を実施し、ランタニド元素を用いた室内収着試験の方法を確立し、ランタニド元素の化学的挙動に関する基礎的情報を得るとともに、既往の研究結果と比較することにより、ランタニド元素とアクチニド元素の化学的挙動の類似性について予備的検討を行った。

すなわち、本年度に実施した室内収着試験における検討課題は、以下の諸点である。

① 低濃度のランタニド元素溶液を用いた収着試験の方法を確立する。

ランタニド元素を用いた収着試験は、本来、アクチニド元素を用いた収着試験と比較されるものであり、模擬されるべきアクチニド元素の化学的挙動は極低濃度の溶液状態での挙動である。従って、本収着試験において用いるランタニド元素の溶液も、こうした点から、可能な限り低濃度の溶液を用いることが望ましい。

しかしながら、この収着試験は安定元素を用いる試験であるため、ランタニド元素の濃度測定において放射線測定を利用することができず、中性子照射による放射化分析を利用することとなる。しかし、この方法は、収着媒体である粘土鉱物中にバックグラウンドとして存在するランタニド元素をも放射化してしまうため、このバックグラウンド濃度のレベルによって、有意なデータを得ることのできる溶液濃度の下限値が決まる。従って、本年度の室内収着試験においては、この溶液濃度の下限値を検討することが必要である。

② 微細粒子状の粘土鉱物を用いた収着試験の方法を確立する。

本試験は、ランタニド元素とアクチニド元素の化学的挙動と収着挙動を比較検討する

試験であるため、試験の方法としては可能な限り“再現性”の良い試験方法を採用することが必要である。そこで、試験に用いる収着媒体としては比較的均質な特性を持つものとして、粘土鉱物の一種であるモンモリロナイトを用いることとした。しかし、粘土鉱物を用いた収着試験を実施する場合には、粘土鉱物の微細粒子の処理などの試験技術面での課題を解決する必要がある。また、同時に、上記①の課題を検討するために粘土鉱物に含まれるランタニド元素のバックグラウンド濃度およびその影響を評価する方法を確立することが必要である。

③ 地層中の亀裂経路内での核種挙動を模擬する収着試験の方法を確立する。

地層中の亀裂経路内での核種挙動を模擬するためには、一般に、試験条件として固相／液相比を大きくすることが必要である。しかし、固相／液相比を大きくした場合には、試験液の採取などの技術的困難が生じるため、適切な固相／液相比の試験条件を探ることが必要である。

④ ランタニド元素の化学的挙動および収着挙動に関する基礎情報を得る。

アクチニド元素の収着試験結果との比較検討を行うためには、ランタニド元素の化学的挙動および収着挙動の特性を把握することが必要であるが、このためには、ランタニド元素の化学的挙動と収着挙動に対する、

- ・陽イオン交換容量の影響
- ・pH、酸化還元電位の影響
- ・共存イオンの影響
- ・溶存化学種の影響

などを検討することが必要である。

⑤ ランタニド元素をアクチニド元素の“模擬核種”として用いる方法に関する予備的検討を行う。

既往の研究において実施されたアクチニド元素の収着試験結果を参考としつつ、本収着試験の結果をもとに、ランタニド元素をアクチニド元素の模擬核種として用いる方法に関する予備的検討を行うことが必要である。

5. 6. 2 検討結果

本年度において実施したランタニド元素の収着試験を通じ、それぞれ次の諸点が明らかになった。

(1) 低濃度のランタニド元素溶液を用いた収着試験の方法について

モンモリロナイト中に含まれているランタン、セリウム、ネオジウム、ユーロピウム、バリウムのバックグラウンド量はTable 5-7に示される値であった。一方、ブランク試験において測定されたモンモリロナイトから液相中へのバックグラウンド元素の浸出量は、Table 5-8に示される値であった。

まず、Table 5-8に示されるように、1gのモンモリロナイトから300mlの液相中に浸出するバックグラウンド元素の量は極めて小さく、検出されたセリウムとネオジウムについても、それぞれ約0.01ppm、約0.02ppm程度であった。

また、Table 5-7に示されるように、1gのモンモリロナイトに含まれるバックグラウンド元素の総量は、それぞれ、

ランタン	約20 μ g
セリウム	約50 μ g
ネオジウム	約20 μ g
ユーロピウム	約0.8 μ g
バリウム	約200 μ g

程度であり、換言すれば、収着反応系内(1gのモンモリロナイト、300mlの液相)内にはバックグラウンドとして、これだけの量が存在していることとなる。

従って、収着試験において系内に新たに加えてやるトレーサー元素の総量として、これらバックグラウンド元素量に比べて十分に大きな量を用いるならば、有意な試験結果を得ることができる。

従って、本収着試験においては、それぞれ、

ランタン	約300 μ g
セリウム	約300 μ g
ネオジウム	約300 μ g
ユーロピウム	約3 μ g

バリウム 約1500 μg

中トレサ量
を300mlの溶液として使用することとした。

本試験で添加した元素量は300 μg (Eu: 3 μg) であるが、そのほとんどがモンモリロナイトに吸着する結果が得られている。したがって、上澄液中に残存した元素量は数 μg で極微量となるので、試験容器の器壁への元素の吸着が問題となってくる。しかし、試験容器の器壁への元素の吸着は固相が存在した状態であればほとんどない。¹⁾ すなわち、モンモリロナイトは粒径が非常に小さく溶液中に分散しているため、モンモリロナイトへの吸着の方が器壁への吸着よりはるかに多い。

吸着試験の際、遠心分離操作後の上澄液中の元素量が数 μg オーダとなることや遠沈管がポリエチレン製であることから遠沈管への元素の吸着がまた問題となってくる。したがって、出来るだけ遠沈管への吸着を防止するため、固相と液相との分離操作後素早く塩酸を添加し、pH 1に調整後処理した。

ここで、Table 5-15に元素収支を示す。収率として一側最大16%、+側最大30%であったが、放射化分析の場合誤差が10%程度であれば一般に容認されている。本試験では一側誤差が少なく、元素の試験容器の器壁への吸着は無かったと考えられる。

Table 5-15 Material Balance of Elements Used.

Element	pH Value	a)	b)	Element	pH Value	a)	b)
La	3	1.11	0.95	Ce	3	1.17	0.97
	7	0.94	1.05		7	0.98	1.18
	10	0.89	0.94		10	0.90	1.03
Nd	3	1.31	1.13	Eu	3	1.05	1.11
	7	1.13	1.30		7	0.84	1.35
	10	1.08	1.22		10	0.86	1.14
Ba	3	1.03	-				
	7	1.08	-				
	10	1.0	1.05				

a) Material balance for single element run.

b) Material balance for mixed element run.

(2) 微細粒子状の粘土鉱物を用いた収着試験の方法について

本収着試験に使用したモンモリロナイトについて粒度分布を測定した結果、Fig. 5-1の値が得られた。

また、これらモンモリロナイトの粒径が比較的小さいことから、バッチ試験の際の岩石と溶液との分離の可能性について調べた。すなわち、モンモリロナイト1～5gと試験溶液300mlとを混合して固-液分離の可能性について調べた結果、300mlの液相に対して分離可能なモンモリロナイトの重量は1gであり、この吸引濾過操作に要する時間は20分であることが示され、モンモリロナイトなどの粘土鉱物を用いた収着試験の方法を確立することができた。

また、モンモリロナイトに含まれる対象元素のバックグラウンド濃度はTable 5-7に示す値であり、ブランク試験において液相中に浸出してくるバックグラウンド元素の量は前項に述べた様にTable 5-8に示す値である。

試験後においてモンモリロナイトに収着した元素の分析感度について調べた結果、分析感度を向上させるためには、5時間程度の長時間照射を行いNa-24の減衰を待って測定を行うことによりセリウムでも数 μ gオーダーで検出可能であることが示された。

(3) 地層中の亀裂経路内での核種挙動を模擬する収着試験の方法について

本来、原位置試験における対象元素の岩石間隙中の移動を考慮した場合、岩石に対する試験溶液の容量比をできるだけ小さくした方が、分配係数の値が原位置試験の条件に近くなる。しかし、本試験の対象元素の分析法は放射化学分析法を使用しているため上澄液中の残存量の分析感度と収着率との関係を考慮しなければならなかった。また、モンモリロナイトの粒径が中央粒径で $0.28\mu\text{m}$ であることや、試験溶液量が少ないとゲル状で存在すること等から固相と液相との分離操作においても考慮しなければならなかった。それゆえ、本試験での試験条件では濃度をできるだけ低くする点と固相と液相との分離操作の点を考えると、予備試験からモンモリロナイト量/試験溶液量が $1\text{g}/300\text{ml}$ とすることが最善であることがわかった。

(4) ランタニド元素の化学的挙動および収着挙動に関する基礎情報について

本試験においては、まず、分配係数測定的基本的考え方として、次の考え方を採用した。

「分配係数」の定義は、化学種が平衡状態において固相と液相とに分配されたとき、液相の化学種濃度に対する固相の化学種濃度の比の値である。一般に放射性核種の収着試験における分配係数の値は、系内に添加された液相中の放射性「核種」のみに着目するので、固相中のバックグラウンド放射性「核種」濃度を無視し、液相への移行を考慮に入れない。

しかしながら、安定「元素」の収着試験では分配係数の値を求める際、特に系内に添加する安定「元素」量が少ない場合(μg オーダー)、固相中に存在するバックグラウンドの安定「元素」濃度を無視できない場合がある。すなわち、液相中の安定「元素」が固相へ収着移行すると同時に、また固相中に存在している安定「元素」から液相への溶出移行もあるので、これらを考慮して分配係数をもとめなければならないからである。

したがって、系内に添加された安定元素の固相への収着率を正確に測定するには、各pH条件での安定元素の固相から液相への溶出移行率をあらかじめ把握しなければならないと思われる。

そこで、本収着試験による分配係数の算出は、系内に添加した元素とモンモリロナイト中に存在するバックグラウンドの対象元素を含めた全元素量から液相に対する固相に分配する時の濃度比を求める方法が適当と思われる。

また、対象元素の分配係数に影響を与える主な要因としては、次の要因が考えられる。

- ・陽イオン交換容量の影響
- ・pH, 酸化還元電位の影響
- ・共存イオンの影響
- ・溶存化学種の影響

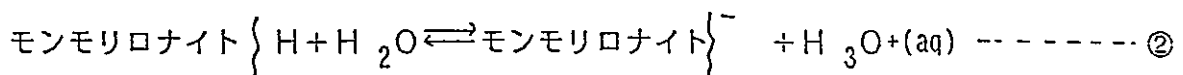
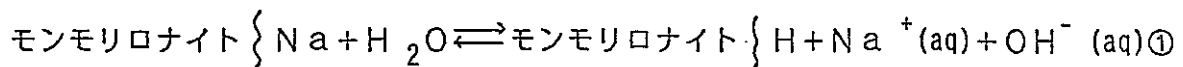
(a) 陽イオン交換容量の影響

本試験に用いたモンモリロナイトのCECは120meq/100gであるので、本試験に用いた1gのモンモリロナイトは1.2ミリグラム当量の陽イオン交換容量を持つ。ランタン、セリウム、ネオジウム、ユーロピウム、バリウムの各グラム当量数は、それぞれ6.48, 7.82, 6.24, 0.06, 21.8マイクログラム当量であり、5元素が共存したときのそれは42.4マイクログラム当量となる。

したがって、対象元素がすべて陽イオン状態で存在し、イオン交換反応によって吸着したと仮定しても、モンモリロナイト1gは十分な陽イオン交換容量を持っているといえる。

(b) pH, 酸化還元電位の影響

pHは初期pHを変化させても吸着試験後pHは8.0~9.8となった。これは次のように考えられる。²⁾



} は、固相表面を表わす。

①式のようにモンモリロナイトから交換性塩基(Na)が脱着し、液相中のpHが高くなる。他方、②式のようにHがモンモリロナイト表面から解離し、液相中のpHが低くなる。このことは緩衝作用のためと考えられる。

また、試験後のEhが初期Ehより低くなったことは、試験終了時には、酸化還元雰囲気は還元方向にあったと考えられる。酸化還元電位はpHの影響を受ける。すなわち(a)酸化還元反応に H^+ イオンが関与し直接的に、また(b)イオン平衡に影響することにより間接的にpHの変化が酸化還元に影響する。本試験での酸化還元電位はこのようにpHの影響を受けるので、試験後のEhが初期Ehより低下したのはpHが増大したためと考えられる。³⁾

Table 5-5に示すように、初期pHが2.5の試験溶液を4時間放置しただけではpHの値は2.9とわずかに増加しただけで、一夜放置するとpHが8以上となる。初期pHを3で収着試験を開始しても時間の経過とともに徐々にpHの値が増加するので、後で記すように加水分解による水酸化物の生成も充分考えられる。

(c) 共存イオンの影響

混合試験溶液の場合、バリウムを除いたどの元素についても収着挙動はほぼ同様な結果が得られた。

ネオジウムは単一元素試験ではpH7の条件で分配係数はpH10の条件でのそれより低い値を示していたが、他元素と共存させた場合、他のランタニドとほぼ同じ収着挙動を示す。これは次のように考えられる。ランタニドは電子配置上、最外殻の電子構造すなわち化学的性質に決定的な影響をもつ軌道の電子配置が同じであるので化学的類似性をもっているため、また、各ランタニドの濃度が極微量でランタニドが同族元素でもあるので、相互に担体(キャリア)の役割を果たし化学的挙動に影響を及ぼしあっているためと思われる。

(d) 溶存化学種の影響

ランタニドはpHが高くなると分配係数(Kd)の値が小さくなる傾向にある。これは、もしイオン交換反応であるならば有効陽電荷の減少のためモンモリロナイトへの収着が減少したと考えられる。

ランタニド(Ln)の溶解度積と加水分解定数⁴⁾を用いて、pH=7及びpH=10で溶液中に存在する化学種とその濃度を推定し、Table 5-16に示す。

197
1/15

Table 5-16 Dissolved Chemical Species and Estimated Concentration.

		Ln^{3+}	$Ln(OH)^{2+}$	$Ln(OH)^+$	$Ln(OH)^0$	$Ln(OH)^-$
PH=7	La	7.9×10^{-2}	0.25×10^{-2}			
	Ce	2.0×10^{-1}	6.0×10^{-3}			
	Nd	3.9×10^{-3}	1.4×10^{-4}	5.0×10^{-6}		
PH=10	La	2.0×10^{-10}	6.3×10^{-9}			
	Ce	7.9×10^{-11}	2.5×10^{-9}			
	Nd	4.0×10^{-12}	4.0×10^{-10}	5.0×10^{-9}	1.3×10^{-8}	3.2×10^{-9}

(M/L)

115

また、本吸着試験のLa, Ce, Ndの初期濃度はそれぞれ 7.2×10^{-6} , 8.7×10^{-6} , 7.0×10^{-6} Mで行った。pH ≤ 3 の条件ではLnはすべてLn³⁺として溶存する。pH=7の条件ではLn³⁺, Ln(OH)²⁺と極めてわずかのNd(OH)²⁺で、これらの濃度はいずれも本試験に用いたLnの初期濃度と比較して高い。pH=10の条件ではLn³⁺, Ln(OH)²⁺の濃度はLnの初期濃度と比較して著しく低い。Ndの場合には中性のNd(OH)₃⁰ (1.3×10^{-8} M) が支配的となり、負に荷電したNd(OH)₄⁻ (3.2×10^{-9} M) も生成する。さらにpHが高くなるとNd(OH)₄⁻ が支配的になる。

モンモリロナイトに対するランタニドの吸着がpHの影響を受けるとするならば、いずれのLnについてもpHの増加に伴って水酸化物の沈澱を生成するため、液相中のLn濃度は減少するのでKd値は大きくなると予想される。

しかし、本試験におけるKd値はpH=3, 7, 10の条件で1回の吸着試験で得た結果であり、試験精度等を考慮すればむしろpHの増加に伴って小さくなる傾向にみえるので、Kd値が小さくなる理由はpHによるものとは思えない。この理由については今後さらに検討する必要がある。

(5) ランタニド元素をアクチニド元素の“模擬核種”として用いる方法に関して

ANDERSSONら⁵⁾は、6価のウラン、5価のネプツニウム、4価のプルトニウム、3価のアメリカニウムに関して、モンモリロナイトをはじめとする諸種の鉱物に対する分配係数を測定し、そのpH依存性を観察した。この結果を、Fig. 5-6に示す。

ANDERSSONらの収着試験において観察された結果を整理するならば、次の諸表ようになる。(分配係数値の単位はml/g)

① 6価のウランの分配係数値のpH依存性

pH	4	5	7	8	10
分配係数値	2000	10000	1000	2000	900

② 5価のネプツニウムの分配係数値のpH依存性

pH	6	7	8	9	10
分配係数値	100	80	90	300	2000

③ 4価のプルトニウムの分配係数値のpH依存性

pH	4	7	8	9	10
分配係数値	10000	10000	18000	9000	7000

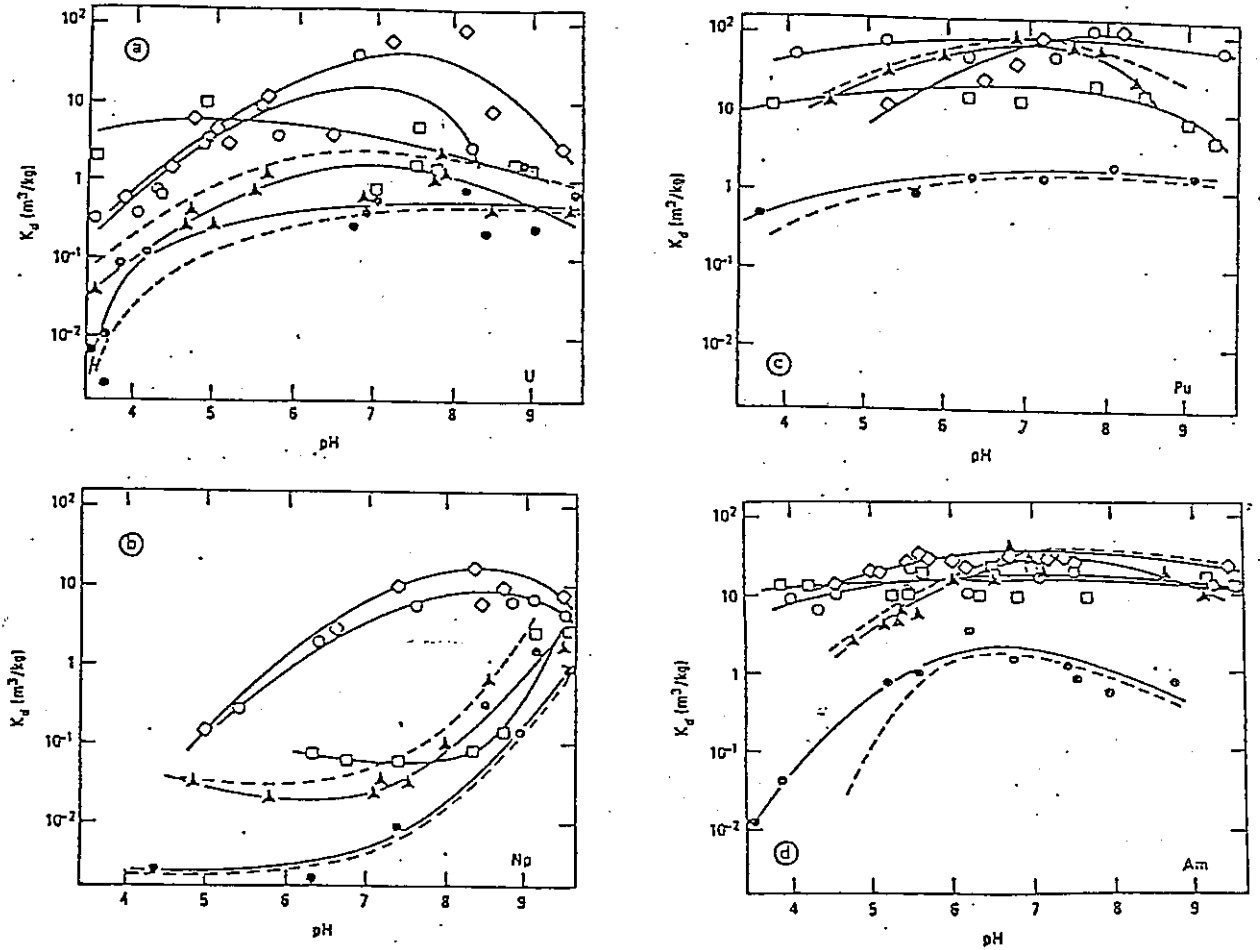


Fig. 5-6 Distribution coefficients (K_d) versus pH for (a) U(VI), (b) Np(V), (c) Pu(IV), and (d) Am(III). \bullet = quartz, \blacktriangle = biotite, \circ = apatite, \diamond = attapulgite, \square = montmorillonite. (Distribution coefficients for most of the other 30-35 minerals studied fall within the areas defined by the dotted lines.)

112
118

④3価のアメリシウムの分配係数値のpH依存性

pH	4	6	7	8	10
分配係数値	12000	10000	10000	10000	12000

一方、本収着試験の結果観察されたランタニド元素およびバリウムの分配係数値を整理するならば、次の諸表のようになる。(分配係数値の単位はml/g)

①ランタンの分配係数値のpH依存性

pH	3	7	10
単一元素分配係数値	82500	48100	33700
共存元素分配係数値	52300	40000	4440

②セリウムの分配係数値のpH依存性

pH	3	7	10
単一元素分配係数値	749000	17400	7230
共存元素分配係数値	57000	36000	5130

③ネオジウムの分配係数値のpH依存性

pH	3	7	10
単一元素分配係数値	1 5 3 0 0 0	2 5 6 0 0	3 4 6 0 0
共存元素分配係数値	2 9 3 0 0	2 7 1 0 0	4 9 7 0

④ユーロピウムの分配係数値のpH依存性

pH	3	7	10
単一元素分配係数値	4 1 5 0 0	3 3 0 0 0	1 0 5 0 0 0
共存元素分配係数値	3 9 2 0 0	2 7 9 0 0	4 1 6 0

⑤バリウムの分配係数値のpH依存性

pH	3	7	10
単一元素分配係数値	—	4 7 7 0 0	2 8 0 0 0
共存元素分配係数値	3 7 0 0 0	—	8 2 8 0

以上の結果を比較することにより、モンモリロナイトに対する、ランタニド元素とアクチニド元素の収着特性の比較を行うことができる。

この比較検討により、次の諸点が明らかとなった。

①ウランの模擬核種候補元素としては、3価のウランに対しては3価のランタニドが考えられるが、本試験において、ランタニドはユーロピウム、セリウムを除き3価で存在していると予想されるため、本試験結果のうちランタンとネオジウムに関するものは、3価のウランの収着試験と比較することができる。しかし、ANDERSSONらの試験は6価のウランに関して実施されたものであり、この試験結果と本試験結果を直接的に比較することはできない。しかし、ALLARDらにより報告されたFig. 5-7に示されるように、3価のウランは低pH領域においては陽イオン状態で存在し、高いpH領域では陰イオンが支配的となる。このため、陽イオン交換体であるモンモリロナイトへの収着特性も、pHの増大につれて減少すると予想される。これに対し、本試験結果においては、ランタンとネオジウムの分配係数値もpHの増大に伴い減少しており、この点で、3価のウランの模擬核種として3価のランタニド（ランタンおよびネオジウム）を用いることの妥当性が示唆されている。しかし、ランタン、ネオジウムともに6価のウランの分配係数値に比べてかなり大きな分配係数値を示していることから、模擬核種として用いることの可否は、3価のウランを用いた試験結果と定量的な比較することにより判断することが必要である。

②プルトニウムの模擬核種候補元素としては、4価のプルトニウムに対しては4価のセリウムが考えられるが、本試験においてセリウムは3価もしくは4価で存在していると予想されることから、ANDERSSONらの試験結果と本試験結果を比較することができる。両試験結果を比較するならば、低pH領域においては、本試験での分配係数値がANDERSSONらの分配係数値よりもかなり大きくなっていくが、高pH領域（pH=10）での分配係数値は、いずれも7000程度の値となっている。全体としてセリウムの分配係数値が4価のプルトニウムの分配係数値よりも大きくなっているため、保守側の試験結果を与える模擬核種としては使用できない。この理由としては、セリウムが3価で存在しているためであることも考えられる。しかし、地層処分場近傍でのプルトニウムは、より還元側の雰囲気のもとにあるため、3価で存在することも考えられ、この場合には、ALLARDらにより報告されたFig. 5-8に示されるように、かなり高pH領域まで陽イオンが支配的となっていることから、3価のプルトニウムの分配係数値は4価の分配係数値

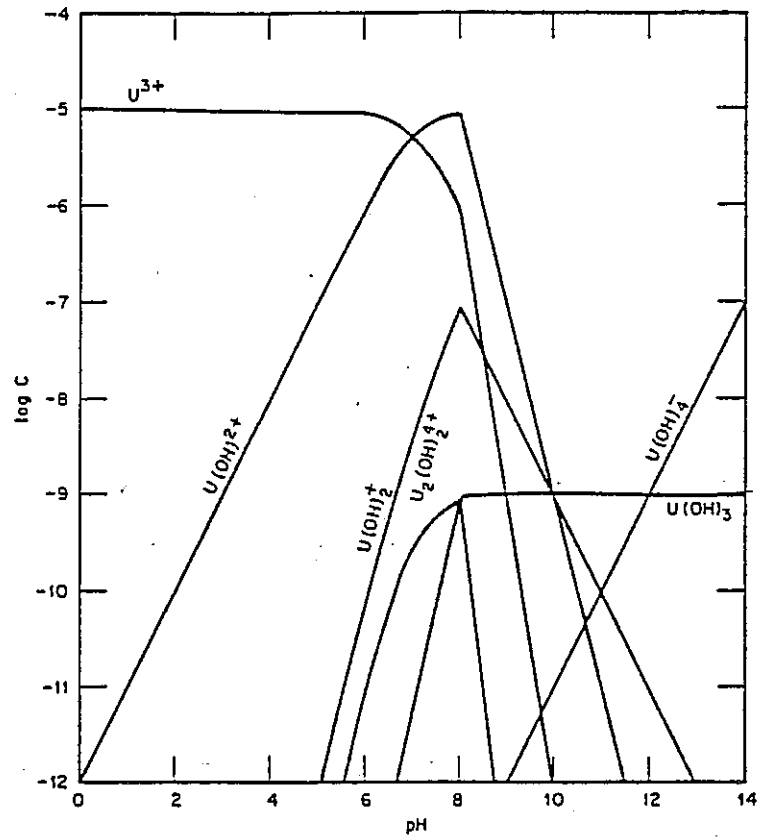
B. ALLARD *et al.*

Fig. 5-7 Logarithmic Diagram Depicting the Concentration of Uranium (II) Hydroxide Species as a Function of pH.

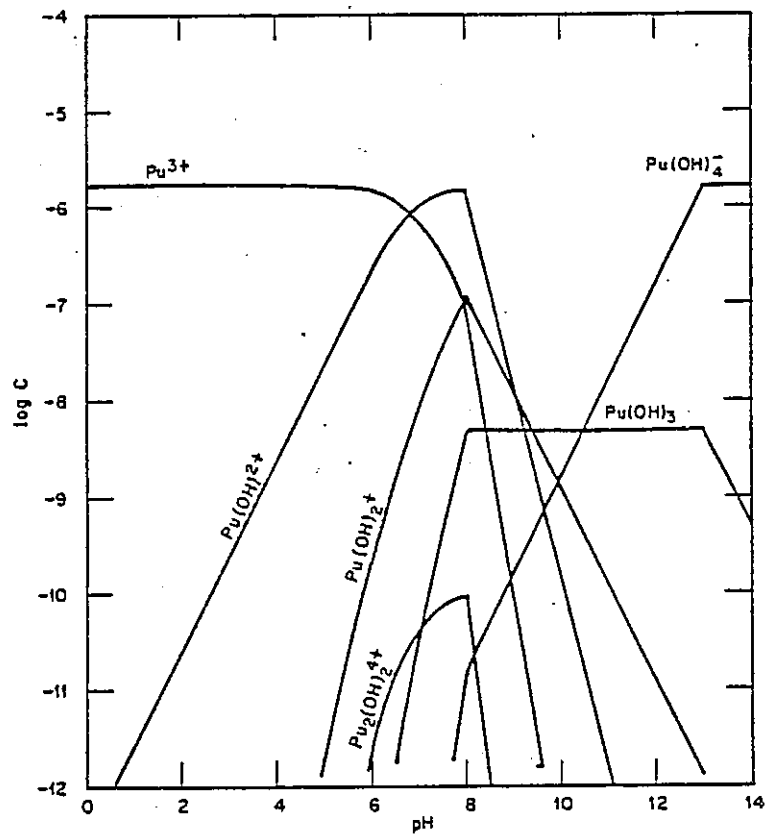
B. ALLARD *et al.*

Fig. 5-8 Logarithmic Diagram Depicting the Concentration of Plutonium (III) Hydroxide Species as a Function of pH.

よりも増大することが予想される。従って、セリウムをプルトニウムの模擬核種として用いることの可否は、3価のプルトニウムを用いて測定した分配係数値と、本試験結果とを比較することにより判断する必要がある。

- ③アメリカシウムの模擬核種候補元素としては、3価のアメリカシウムに対しては3価のランタン、ネオジウム、ユーロピウムが考えられるが、本試験においては、ランタン、ネオジウムは3価で存在していると予想されるが、ユーロピウムは2価で存在している可能性もある。本試験の結果とANDERSSONらの試験結果を比較するならば、ANDERSSONらの試験結果において、3価のアメリカシウムの分配係数値はpHによらず、ほぼ一定値(10000~12000)を示すのに対し、ランタン、ネオジウム、ユーロピウム、いずれの分配係数値もこの値を大幅に上回っている。これら3つの模擬核種候補を比較するならば、分配係数値がpHにより大きく変化しないものはランタンであり、今後の検討対象となり得ると考えられるTable 5-17は、ネバダテストサイトで採取された3種類の凝灰岩に対する核種の平均的分配係数値である。このうち、JA-18試料は変質していないガラスとゼオライトを含んでいるが、ストロンチウム、セシウム、バリウム等の1価と2価のイオンに対しては分配係数値が大きい、アメリカシウムに対しては中程度、セリウムとユーロピウムに対しては小さい。また、JA-37試料はゼオライトを多量に含んでいるがガラスは含んでいない。この試料に対しては、セシウム、バリウム、ユーロピウムは大きな分配係数値を持ち、ストロンチウムとプルトニウムは中程度の値を持つ。さらに、JA-32試料は、花崗岩に類似しているが、上記の核種に対する分配係数値は中程度ないし小さい。このように、ユーロピウムとアメリカシウムは、3つの試料それぞれに対して異なった分配係数値の傾向を示している。
- ④ネプツニウムの模擬核種候補としては、既往の文献において示唆されているランタニド元素はなく、また、ANDERSSONらの試験においても、ネプツニウムを対象としたモンモリロナイトへの収着試験は行われていない。しかし、BEALL⁽⁶⁾らにより報告されたFig. 5-9に示されるように、ネプツニウムの諸種の鉱物に対する分配係数値は、pHの増大に伴い増大する傾向を持つ。この点では、本試験においてユーロピウムが示した傾向と類似しており、ランタニド元素からネプツニウムの模擬核種候補を検討する場合、ユーロピウムが対象となり得る可能性を示唆しており、今後の検討が必要である。

Table 5-17 Average Sorption Ratios.

	R_d (m ² /g)					
	JA-18		JA-32		JA-37	
	22°C	70°C	22°C	70°C	22°C	70°C
Sr ^a	13 000	20 000	55	106	300	1 200
Mo, Sorption	4		8		10	
Ru, Sorption	50		70		65	
Sb, Sorption	0		0		0	
I, Sorption	0		0		0	
Cs ^a	6 000	19 000	150	103	740	2 100
Ba ^a		80 000	440	1 100	850	5 000
Ba, Sorption	4 800	50 000				
Ba, Desorption	30 000	110 000				
Ce, Sorption	40	43	80	80		
Ce, Desorption	180	320	400	600		
Eu, Sorption	30	43	90	190	6 000	4 200
Eu, Desorption	150	270	800	1 800	13 000	14 000
Pu, Sorption	140		~110		~280	
Am, Sorption	190	220	120	110	600	910

^aFor sorption and desorption.

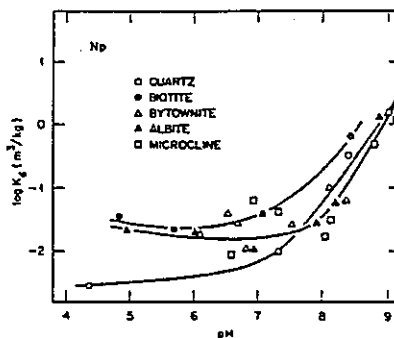


Fig.5-9 Distribution Coefficients vs. pH for ²³⁵Np on Selected Minerals.

引用文献

- 1) K. Wolfsberg et al.
: [Sorption-Desorption Studies
on Tuff] LA-7480-MS (1979)
- 2) JHON W. MOORE 他 (岩本 振武訳)
: 「環境理解のための基礎化学」P.287 東京化学同人, 東京(1980)
- 3) 土壤養分測定法委員会編
: 「土壤養分分析法」P.55 養賢堂, 東京(1983)
- 4) BALLARD et al.
: J. Inorg. Nucl. , 42,1015 (1980)
- 5) ANDERSSON et al.
: [Environmental migration long-
lived radioisotopes]P.111 , IAEA,
VIENNA(1982)
- 6) G.W. Beall, B.Allard, T.Krajewski, G.D. O'Kelley " Chemical Reactions in the
Bedrock-Groundwater System of Importance for the Sorption of Actinides "
Scientific Basis for Nuclear Waste Management III, p.625, (1981)

第6章 模擬廃棄物固化体の埋設および 環境調査

6. 1. 目的

高レベル廃棄物の地層処分において、ガラス固化体及び容器の長期にわたる健全性を確保することは重要な課題である。本調査・試験は、地下深部環境において、ガラス固化体及び容器の長期にわたる化学的耐久性、耐蝕性に関する現象を明らかにするため、ガラス固化体、容器と岩石、地下水、充填材との化学的相互作用を把握することを目的とする。

本年度は、上記調査・試験を行う埋設箇所周辺の地質及び地下水の状況を調査するとともに、埋設箇所においてガラス固化体、金属材料、ベントナイトを埋設し、それらの長期健全性を評価する基礎データを収集した。

6. 2 埋設箇所の選定

細倉鉱山の既存坑道の調査により、下記の条件を満たす箇所を選定し、埋設箇所とした。

- ①地下水が比較的多く湧出する。
- ②埋設孔を削孔するために十分な空間がある。
- ③通常の鉱山操業に支障をきたさない。
- ④埋設箇所への作業者等の往来が容易である。
- ⑤保安上問題がない。
- ⑥長期的な維持・管理が可能である。

また、第2章で記述した原位置試験場への往来や機材等の搬出入に利用される感天立坑の近くが適当であると判断した。

以上を勘案して、細倉鉱山の既存資料、感天立坑周辺の地質・湧水等の状況の調査結果より、埋設箇所としてFig. 6-1に示す位置を選定した。

埋設箇所は、感天立坑より南へ約70mの距離に位置し、垂直的には直上の地表面(EL+15.5m)より約28.5m(下8番坑)の地下深部にある。

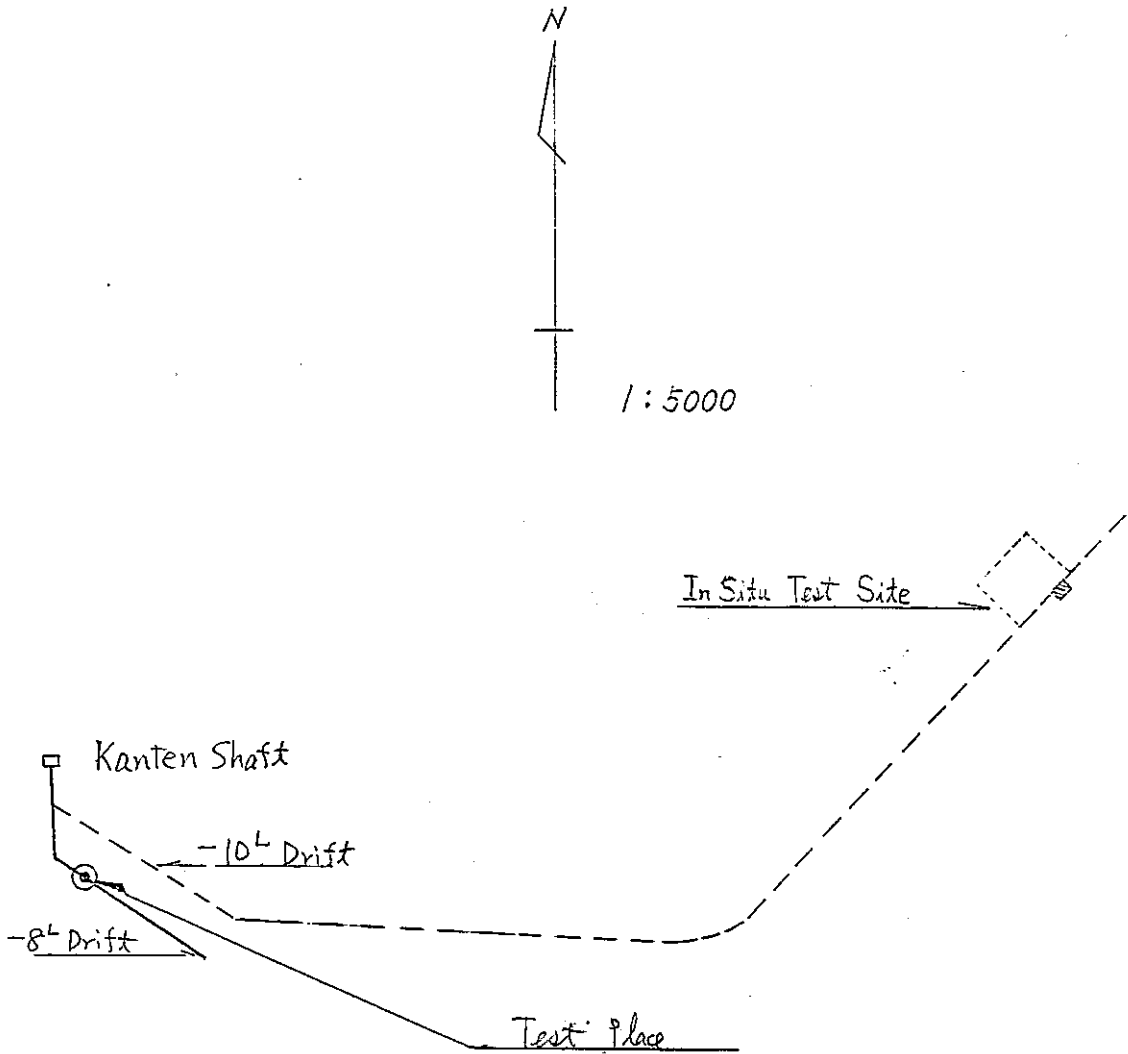


Fig. 6-1 Location of Test Place in Hosokura Mine.

6. 3 埋設箇所環境調査結果

6. 3. 1 地質

Fig. 6-2 に埋設箇所の側壁スケッチを示す。埋設箇所には、細倉鉱床の鉱床胚胎層準である中新世の細倉層下部層に属する石英安山岩質凝灰岩が分布する。石英安山岩質凝灰岩は淡緑灰色を呈する粗粒凝灰岩からなり、塊状で堅硬である。変質作用によると考えられる緑泥石や黄鉄鉱の生成が認められる。

割れ目としては、粘土を挟むもの、方解石脈を挟むもののほかに節理が存在する。

6. 3. 2 湧水状況

Fig. 6-2 に示すとおり、N30W20E の走向・傾斜を示す、粘土を挟む割れ目が坑道の天蓋と交叉する付近より多くの湧水が認められる。湧水量は約170cc /min 程度である。この割れ目より湧出する地下水は、側壁をつたわって流下しており、側壁の流下範囲では黒褐～茶褐色の析出物（多くは水酸化鉄と思われる）によって覆われている。

他の割れ目では、いずれも水がしみ出すかほとんど認められない程度であり、上記の割れ目からの湧出量と比べはるかに小さい。

埋設箇所に5本のパイロット孔を削孔し、1週間程度放置した後、削孔内の湧水の有無を観察した結果、いずれの孔も水の湧出はほとんど認められなかった。

6. 3. 3 水質分析結果

埋設前（昭和60年10月10日）及び第1回目の試料回収時（昭和61年3月5日）に、埋設孔への補給用として用いた地下水（6.3.2で記述した湧水量の多い箇所）を採水し水質分析を行った。

その結果をTable 6-1に示す。Table 6-1に示すように、埋設時と回収時とで、 Fe^{2+} 及び Fe^{3+} の量がかなり異なっている。 Fe^{3+} は、採水後のサンプリング水の Fe^{2+} が酸化されたために生成したと考えられ、採水後の分析の時期によって異なる値が出たものである。このことは、埋設時と回収時の全鉄量を比較すると大きな差がないことから推定される。

他の成分は、埋設時と回収時とで、有意な差が認められないので、補給用として用いた地下水の水質はほとんど変化していないと判断できる。

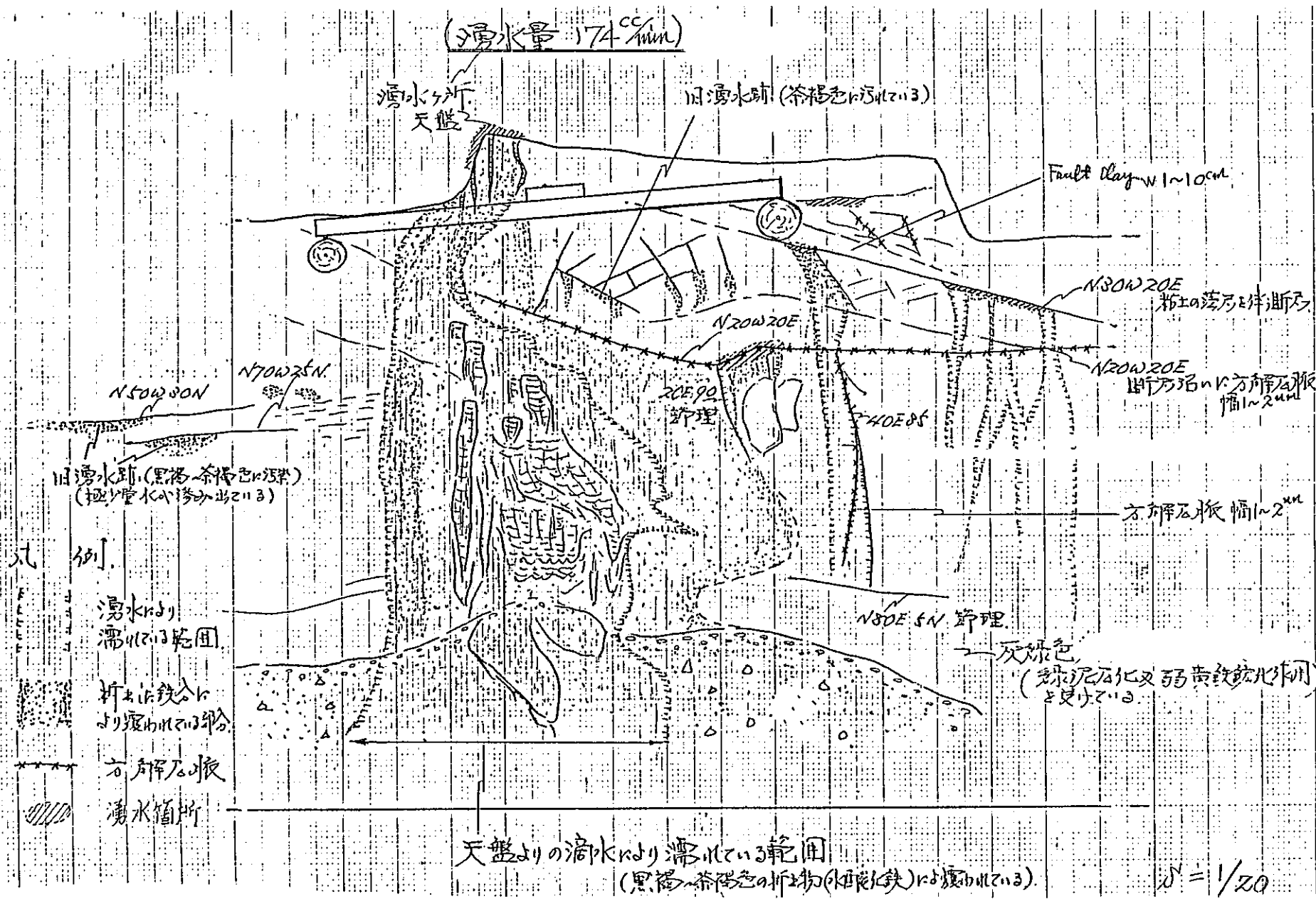


Fig. 6-2 Geological Sketch of Wall (northernmost side) at Test Place.

Table 6 - 1 Chemistry of Groundwater.

Chemical Parameters	Groundwater Sampled on Oct. 10 '85	Groundwater Sampled on March 5 '86
Ca mg/ l	541	457
Mg mg/ l	96.9	98.2
Na mg/ l	91.1	86.2
K mg/ l	9.7	10.6
Fe ²⁺ mg/ l	<0.1 *	85 **
Fe ³⁺ mg/ l	131 *	28 **
Cu mg/ l	<0.01	<0.01
Al mg/ l	6.4	17.2
Cl mg/ l	8.5	9.4
SO ₄ mg/ l	2,220	2,150
SiO ₂ mg/ l	28.7	25.2
Br mg/ l	<0.05	0.06
I mg/ l	<0.1	<0.1
Co mg/ l	0.05	0.02
Sr mg/ l	4.2	4.3
Cs mg/ l	<0.1	<0.1
T-CO ₂ mg/ l	41	26
Electric Conductivity μ S/ l	3,200	3,200

* Analyzed 100 Days after Sampling
 ** Analyzed 7 Days after Sampling

6. 4 試験体の埋設

下表の工程で埋設作業等を実施した。

昭和60年	10月10日	水質分析用地下水の採水
	10月28日	パイロット孔削孔
	11月10日	15孔削孔
	11月27日	埋設孔選定および地下水を各孔へ導水
	12月5日	埋設孔内環境測定および試験体の埋設
昭和61年	3月5日	埋設孔内環境測定および試験体の回収 水質分析用地下水の採水

6. 4. 1 ボーリング

Fig. 6-3 に示す位置に、下記の方法及び仕様で埋設用の孔を削孔した。

- 1) 方法：削岩機
- 2) 方向：水平面より -5° ～ 10° 程度の傾斜
- 3) 径：約50mm
- 4) 深さ：約50cm
- 5) 本数：20本（内5本パイロット孔）

削孔した各孔の深さ、傾斜、方向を整理し、Table 6-2 に示す。

上記の削孔した孔より、試料の種類、数を考慮し12本を埋設孔とした。

6. 4. 2 埋設試験体

昭和60年12月5日に埋設した試験体の種類および個数をTable 6-3 に示す。各孔ごとに試験体一種類を埋設することとし、埋設期間を約3ヶ月、1年、2年、3年、4年の5つの期間に分けた。従って、各孔とも計5個あるいは5セットの試験体数である。

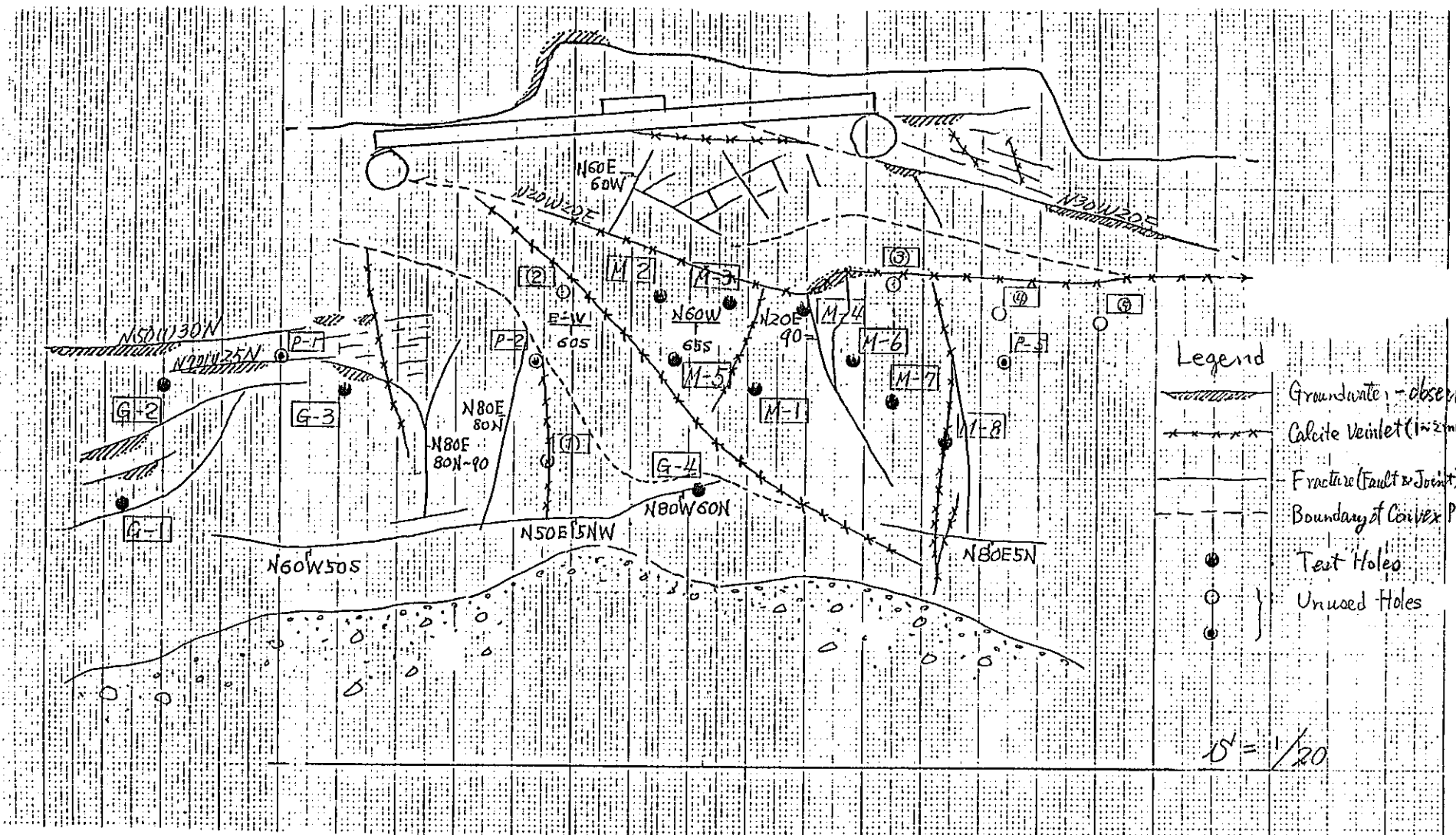


Fig. 6-3 Layout of Boreholes.

Table 6 - 2 List of Boreholes.

Hole No.	Depth (cm)	Inclination	Direction	Remarks
G-1	56	-13°	N40°E	Used for Emplacement of Glass Waste Form, etc.
G-2	55	-10°	N35°E	
G-3	54	-12°	N45°E	
G-4	60	-13°	N40°E	
M-1	58	-11°	N 7°E	Used for Emplacement of Metal Materials.
M-2	58	-10°	N 6°W	
M-3	60	-8°	N35°E	
M-4	55	-10°	N43°E	
M-5	58	-5°	N38°E	
M-6	50	-5°	N40°E	
M-7	54	-10°	N70°E	
M-8	56	-8°	N66°E	
① 孔	60	-11°	N60°E	.. Unused for Emplacement
② 孔	56	-9°	N 4°W	
③ 孔	54	-7°	N55°E	
④ 孔	55	-7°	N63°E	
⑤ 孔	60	-7°	N80°E	
P-1	50	-6°	N30°E	
P-2	55	-5°	N40°E	
P-5	53	-5°	N40°E	

Table 6 - 3 List of Test Samples.

(Lower: Sample No.)

Test Samples		Enplacement Period					Hole No.	
		About 3 Months	1 Year	2 Years	3 Years	4 Years		
Glass Waste Form Two Pieces in one set.		1 set G-1-1	1 set G-1-2	1 set G-1-3	1 set G-1-4	1 set G-1-5	G-1	
Glass Waste Form in Minicapsules		1 piece G-2-1	1 piece G-2-2	1 piece G-2-3	1 piece G-2-4	1 piece G-2-5	G-2	
Glass Waste Form + Compacted Bentonite		1 piece G-3-1	1 piece G-3-2	1 piece G-3-3	1 piece G-3-4	1 piece G-3-5	G-3	
Glass Waste Form in Minicapsules + Compacted Bentonite		1 piece G-4-1	1 piece G-4-2	1 piece G-4-3	1 piece G-4-4	1 piece G-4-5	G-4	
Metal Materials	Stainless Steel SUS 304	Coupon	1 piece M-1-1	1 piece M-1-2	1 piece M-1-3	1 piece M-1-4	1 piece M-1-5	M-1
		Double U Bend	1 piece M-2-1	1 piece M-2-2	1 piece M-2-3	1 piece M-2-4	1 piece M-2-5	M-2
	Commercially Pure Titanium	Coupon	1 piece M-3-1	1 piece M-3-2	1 piece M-3-3	1 piece M-3-4	1 piece M-3-5	M-3
		Double U Bend	1 piece M-4-1	1 piece M-4-2	1 piece M-4-3	1 piece M-4-4	1 piece M-4-5	M-4
	Hastelloy C-276	Coupon	1 piece M-5-1	1 piece M-5-2	1 piece M-5-3	1 piece M-5-4	1 piece M-5-5	M-5
		Double U Bend	1 piece M-6-1	1 piece M-6-2	1 piece M-6-3	1 piece M-6-4	1 piece M-6-5	M-6
	Mild Steel	Coupon	1 piece M-7-1	1 piece M-7-2	1 piece M-7-3	1 piece M-7-4	1 piece M-7-5	M-7
	Pure Copper	Coupon	1 piece M-8-1	1 piece M-8-2	1 piece M-8-3	1 piece M-8-4	1 piece M-8-5	M-8

(1)ガラス固化体等

ガラス固化体、ミニキャニスタ入ガラス固化体、ガラス固化体+圧縮ベントナイトおよびミニキャニスタ入ガラス固化体+圧縮ベントナイトの試験体は、動力炉・核燃料開発事業団殿にて作成し、支給されたものである。いずれも径3cm×高さ5cm程度のテフロン容器（目あき）に封入した。

(2)金属試料

金属試料については、委託研究「高レベル廃棄物固化体容器の健全性に関する試験（PNC -SJ121 84 -04、PNC -SJ121 85 -06）」において試験試料として使用されてきた、ステンレス鋼（SUS 304）、純チタン、ニッケル基合金（ハステロイC -276）、軟鋼、無酸素銅を選び埋設試験体とした。

いずれの金属試料も、幅18mm×長さ80mm程度の大きさの平板試験体を作成した。また、薄膜型金属であるステンレス鋼（SUS 304）、純チタン、ニッケル基合金（ハステロイC -276）についてはFig. 6-4に示す大きさのダブルUバンド試験体を作成した。埋設前の各試験体の寸法および重量等をTable 6-4(1)、(2)に示す。また、各試験体の組成をTable 6-5(1)～(5)に示す。

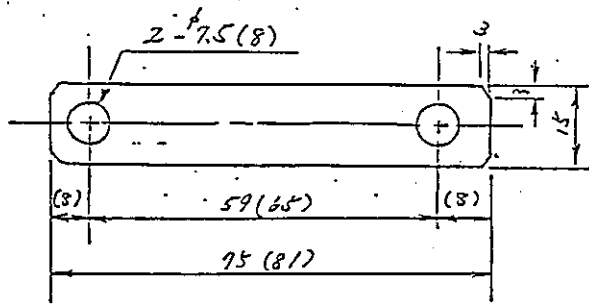
6. 4. 3 埋設方法

試験体各一種類を各一孔にFig. 6-5に示すように埋設した。所要の期間経過後に試験体を容易に回収するため、ガラス固化体、ミニキャニスタ入ガラス固化体、ガラス固化体+圧縮ベントナイト及びミニキャニスタ入ガラス固化体+圧縮ベントナイトは、テフロン容器に入れ、その容器を細いテフロンチューブで結び、チューブの端を孔口の外へ出しておいた。金属試験体の場合は、テフロン糸で試験体を結び、その糸の端を孔口の外へ出しておいた。いずれの試験体も、回収時に試験体と試料番号との混乱を避けるため、孔口の外へ出したチューブ及びテフロン糸の端には試料番号を記入した番号札を結びつけた。

前述のように、各埋設孔とも孔内からの湧水がほとんど認められないため、埋設箇所 の天蓋（6.3.2で記述した湧水量の多い箇所）より地下水を捕集し各埋設孔へテフロンチューブを用いて導水し埋設孔内を満水とした。

埋設試験体を埋設後は、適時孔内を観察し、減水している孔については地下水を補給することとした。また、減水の大きい孔については、連続的に地下水を補給する方法を

寸法は内側
試験片を示す
()内は
外側試験片
を示す。



厚み: 2mm
仕上げ研磨:
温式 #400

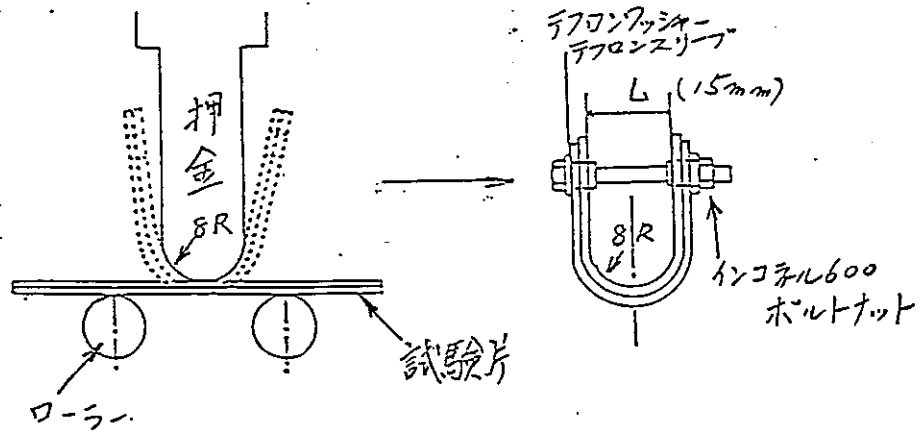


Fig. 6-4 Method of Preparing Double U Bend Sample.

Table 6 - 4(1) List of Metallic Samples (Coupons).

Test Sample	Sample No.	Weight (g)	Size (mm)
Stainless Steel SUS 304	M-1-1	22.5503	13 ^w × 80 ^L × 2 ^T
	M-1-2	22.5484	13 ^w × 80 ^L × 2 ^T
	M-1-3	22.5220	18 ^w × 80 ^L × 2 ^T
	M-1-4	22.5616	18 ^w × 80 ^L × 2 ^T
	M-1-5	22.5476	18 ^w × 80 ^L × 2 ^T
CP Titanium	M-3-1	18.7656	18 ^w × 80 ^L × 3 ^T
	M-3-2	19.0376	18 ^w × 80 ^L × 3 ^T
	M-3-3	19.0137	18 ^w × 80 ^L × 3 ^T
	M-3-4	19.4317	18 ^w × 80 ^L × 3 ^T
	M-3-5	17.9926	18 ^w × 80 ^L × 3 ^T
Hastelloy C-276	M-5-1	22.3269	18 ^w × 80 ^L × 1.8 ^T
	M-5-2	22.8592	18 ^w × 80 ^L × 1.8 ^T
	M-5-3	22.8653	18 ^w × 80 ^L × 1.8 ^T
	M-5-4	20.6034	18 ^w × 80 ^L × 1.8 ^T
	M-5-5	21.0543	18 ^w × 80 ^L × 1.8 ^T
Mild Steel	M-7-1	38.5386	18 ^w × 80 ^L × 3.4 ^T
	M-7-2	39.0672	18 ^w × 80 ^L × 3.4 ^T
	M-7-3	39.2129	18 ^w × 80 ^L × 3.4 ^T
	M-7-4	37.5775	18 ^w × 80 ^L × 3.4 ^T
	M-7-5	37.9234	18 ^w × 80 ^L × 3.4 ^T
Pure Copper	M-8-1	22.4879	18 ^w × 80 ^L × 1.8 ^T
	M-8-2	22.7445	18 ^w × 80 ^L × 1.8 ^T
	M-8-3	23.8036	18 ^w × 80 ^L × 1.8 ^T
	M-8-4	22.7322	18 ^w × 80 ^L × 1.8 ^T
	M-8-5	21.9175	18 ^w × 80 ^L × 1.8 ^T

Table 6 - 4(2) List of Metallic Samples (Double U Bends).

Test Sample	Sample No.	Weight (g)		Size (mm)	
		Outer Piece	Inner Piece	Outer Piece	Inner Piece
Stainless Steel SUS 304	M-2-1	16.4113	14.6795	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-2-2	16.1948	14.4474	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-2-3	16.3494	14.5057	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-2-4	15.9174	14.6302	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-2-5	15.7825	14.5416	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
CP Titanium	M-4-1	9.4506	8.7558	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-4-2	9.6641	8.9287	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-4-3	9.4947	8.9677	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-4-4	9.4163	9.0787	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-4-5	9.5655	9.0495	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
Hastelloy C-276	M-6-1	18.9448	17.9161	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-6-2	18.9298	17.2336	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-6-3	18.9865	17.5778	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-6-4	19.0833	17.2724	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T
	M-6-5	19.1632	17.4194	15 ^w × 81 ^L × 2 ^T	15 ^w × 75 ^L × 2 ^T

Table 6 - 5(1) Chemical Composition of Type 304 Stainless Steel. (wt %)

C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Cu
0.066	0.58	0.82	0.029	0.002	8.75	18.29	0.14	0.14

Table 6 - 5(2) Chemical Composition of Commercially Pure Titanium. (wt %)

Fe	O	N	H	Ti
0.005	0.009	0.001	0.0022	the rest

Table 6 - 5(3) Chemical Composition of Hastelloy C -276. (wt %)

Mo	Cr	Fe	W	Co	C	Si	Mn	V	P	S	Ni
15.6	15.4	5.7	3.6	1.6	0.00	0.04	0.4	0.24	0.01	<0.001	the rest

Table 6 - 5(4) Chemical Composition of Mild Steel. (wt %)

C	Si	Mn	P	S	Al	Nb	N	O
0.003	<0.005	0.15	0.010	0.008	0.04	0.02	0.002	0.0025

Table 6 - 5(5) Chemical Composition of Pure Copper. (wt %)

Cu	—
99.99	—

139
127

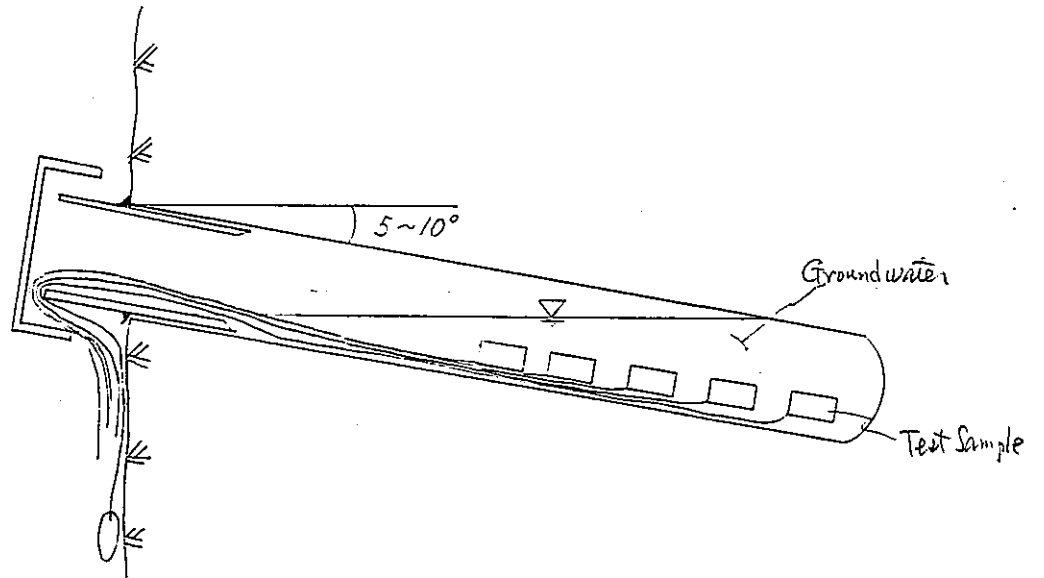


Fig. 6-5 Schematic Diagram of Test Samples Setting in Test Hole.

採った。

6. 4. 4 埋設孔内環境測定結果

昭和60年12月5日の試験体埋設時および昭和61年3月5日の試験体回収時に各孔内のpH、Eh及び温度を測定した。その結果をTable 6-6に示す。

pHは、5.1～7.1の範囲にあり、やや弱酸性である。埋設時と回収時を比較すると大きな変化は認められない。

Ehは、埋設時では+0.2～-0.1(V)の範囲であり、酸化環境または還元環境としても共に弱い環境であると考えられる。回収時では+0.4～-0.1(V)の範囲である。埋設時と比較すると、G-3孔及びM-7孔以外では、Ehの値は増加している。

温度については各孔共24℃程度を示している。

6. 4. 5 各孔の地下水の状況と補給

埋設時より適時各孔内を観察し、減水している孔には地下水を補給する方法をとった。埋設時(昭和60年12月5日)以降の各孔の地下水状況及び地下水補給量をTable 6-7に示す。

G-1、G-4、M-2～5の6孔はいずれも満水または若干の減水が認められたが、地下水の補給を必要とするまで^{たは至ら}なかった。

一方、G-2、G-3、M-1、M-6～8の6孔では減水の程度が大きかった。G-3、M-1、M-7、M-8の4孔では試験体が露出する場合があった。そのため、減水した量を適時補給したが、2月11日以降では、連続的に地下水を補給する方法を採った。また、G-4孔では、2月21日以降減水が認められたため、この孔についても連続的に地下水を補給する方法を採った。補給方法として、テフロンチューブで孔内へ直接導水するには給水量が多く、孔外へオーバーフローする可能性が大きいことから、補給を必要とする孔口上方の壁面にチューブ口を着け、側壁面に滴下して孔内へ地下水を補給する方法を採った。Table 6-7に記入してある滴下量はチューブ口から出る量を示しており、滴下水の下方への拡がりなどから、実際に孔内に導入されている水量は、滴下量の数%程度であると見積もられる。

Table 6 - 6 PH, Eh, Temperature of Water in Test Holes,
and

Hole No.	Measurement on Dec. 5 '85			Measurement on March 5 '86		
	pH	Eh (mV)	Temperature (°C)	pH	Eh (mV)	Temperature (°C)
G-1	6.6	+005	24.1	6.6	+039	24.4
G-2	6.0	+100	24.1	6.0	+360	24.4
G-3	5.8	+170	24.1	5.9	+093	24.0
G-4	6.0	+110	24.1	5.2	+146	24.6
M-1	6.3	-007	24.1	6.1	+090	24.8
M-2	6.5	+050	24.0	6.8	+060	24.5
M-3	6.8	+027	24.1	7.1	+051	24.7
M-4	6.6	+092	24.1	6.9	+104	24.1
M-5	5.1	-048	24.4	6.2	+128	24.1
M-6	6.3	-022	24.1	6.4	+180	24.2
M-7	6.4	-026	24.1	6.4	-145	24.5
M-8	6.4	+011	24.0	5.7	+012	24.5

Table 6-7(2) (Cont'd)

Hole No.	Test Sample (Volume)	Supply Water (cc)																			
		2/15	16	18	21	23	25	27	3/3	5	9	15	21								
G-1	Glass Waste Form (5)	—	—	—	—	—	—	—	—	30	—										
G-2	Glass Waste Form in Minicamister (5)	100 Δ *	—	100 Δ	—	—	100 Δ	100 Δ	170	—											
G-3	Glass Waste Form + Compacted Bentonite (5)	100	100 *	—	—	—	—	100 Δ	100	—											
G-4	Glass Waste Form in Minicamister + Compacted Bentonite (5)	—	—	—	200	200	—	*	—	—											
M-1	Stainless Steel SUS 304, Coupon (5)	*	—	—	—	—	—	—	clogged	200	100										
M-2	Stainless Steel SUS 304, Double U Bend (5)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—										
M-3	CP Titanium, Coupon (5)	—	—	—	—	—	—	—	—	40	—										
M-4	CP Titanium, Double U Bend (5)	—	—	—	—	—	—	—	—	30	—										
M-5	Hastelloy C-276, Coupon (5)	—	—	—	—	—	—	—	—	30	—										
M-6	Hastelloy C-276, Double U Bend (5)	*	—	—	100	—	—	—	—	—	100	100									
M-7	Mild Steel, Coupon (5)	*	—	—	—	—	—	—	100 Δ	—	100	200									
M-8	Pure Copper, Coupon (5)	*	—	—	—	200 Δ	—	300 O	—	—	—	200									
		↑ Recovery																			

G-1~4: Δ; Teflon Container, partly Exposed. O; Test Sample, partly Exposed.
 M-1~8: Δ; Test Sample, partly Exposed. O; About half of Test Sample, Exposed.
 — : Filled with Groundwater

note: Mark * Shows Water Supply to the Part of a Wall above Holes. Therefore, Net Supply Rates are estimated to be several percent of Gross Supply Rates Shown.

144

6. 5 金属試験体の分析結果

埋設後3ヶ月経過後（昭和61年3月5日）、ガラス固化体等及び金属試験体を各孔より1個または1セット回収し、金属試験体の腐食状況などについて観察・分析を行った。なお、ガラス固化体等の試験体は、動燃事業団・東海事業所へ送付した。

6. 5. 1 金属試験体の表面状態

1) 平板試験体

平板試験体の表面状態をPhoto 6-1(1) ~ (5) に示す。軟鋼では全面腐食が生じており、その表面は肌荒れの状態である。他の金属試験体は健全状態であった。また、いずれの試験体表面にも、スケール（茶色）が付着していた。特に、無酸素銅に多く認められた。

2) ダブルUバンド試験体

試験体側面の表面状態をPhoto 6-2(1) ~ (3)に示す。いずれの試験体も、応力腐食割れは認められなかった。

試験体表面に付着したスケールは、ハステロイC-276に認められたが、SUS 304、純チタンでは僅かであった。

6. 5. 2 腐食減量

平板試験体の腐食減量の測定結果、並びにこれから算出した腐食速度をTable 6-8に示す。

純チタン、軟鋼、無酸素銅で腐食減量が認められ、その腐食減量は、それぞれ1.0 mg、194.7 mg、21.8mgであった。SUS 304及びハステロイC-276では、腐食減量は認められなかった。純チタン、軟鋼、無酸素銅の腐食速度は、それぞれ0.00026 mm/y、0.0280mm/y、0.0030mm/y程度と見積もられる。

腐食生成物については、その色調から、軟鋼では酸化鉄 (Fe_2O_3) が生成し、無酸素銅では酸化銅 (Cu_2O) が生成していると判断できる。純チタンでは腐食減量が微量であることから、その生成物は不明であるが、一般には酸化チタン (TiO_2) の生成が知られている。

以上の結果から、3ヶ月間という限定された期間での地下水浸漬環境における金属材料の耐蝕性についていえば、その耐蝕性は、SUS 304及びハステロイC-276が最も良

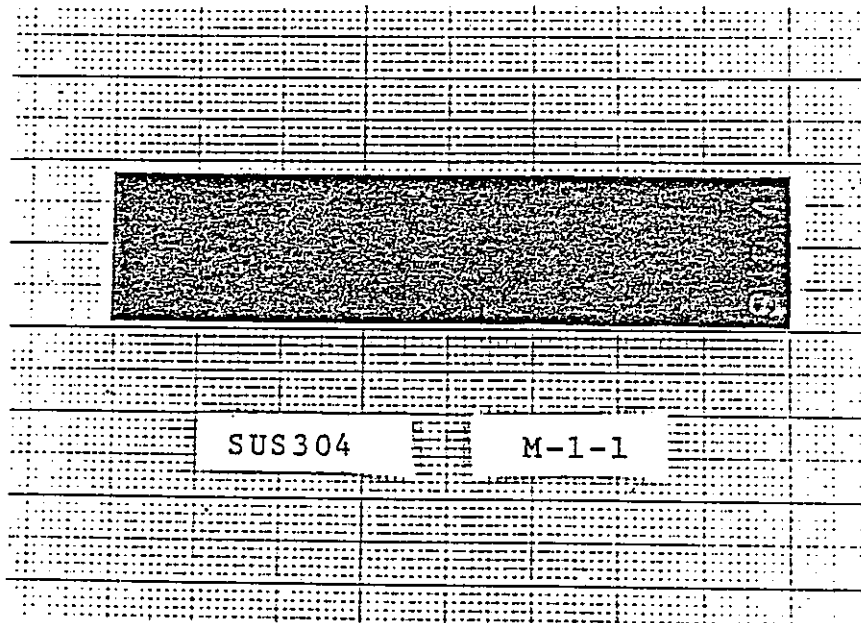


Photo 6 - 1 (i) SUS 304 Test Sample after 3 Month Immersion Corrosion Test.

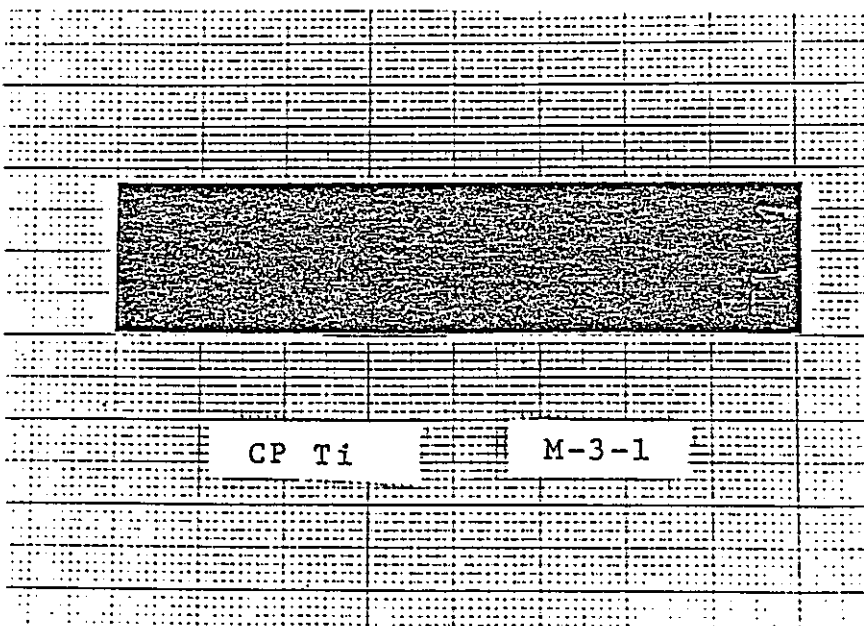


Photo 6 - 1 (z) CP Titanium Test Sample after 3 Month Immersion Corrosion Test.

126
134

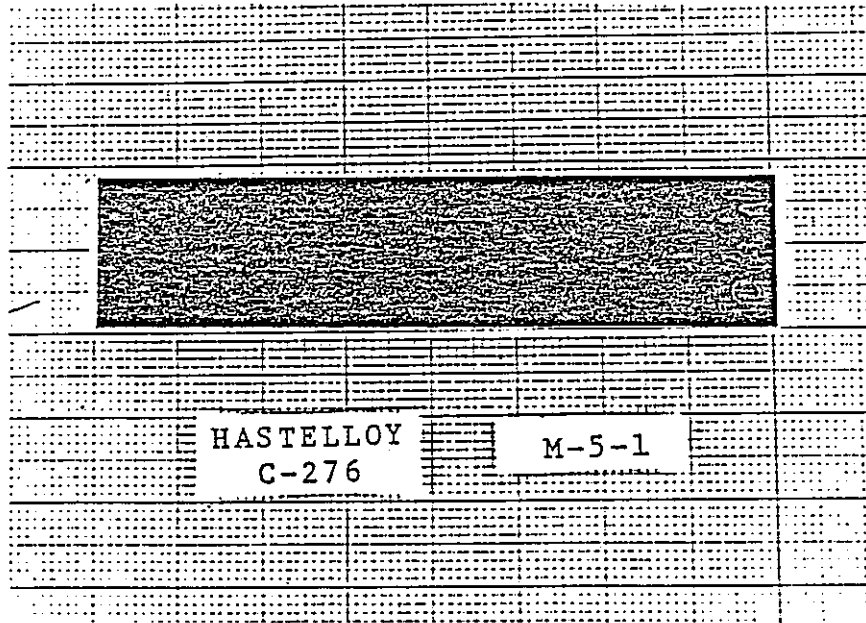


Photo 6 -1 (3) Hastelloy C-276 Test Sample after 3Month Immersion Corrosion Test.

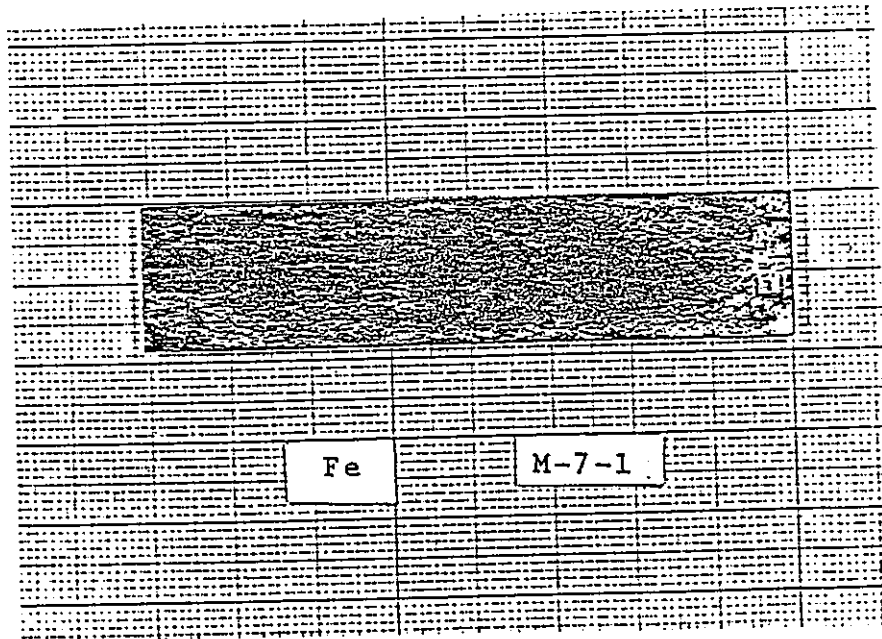


Photo 6 -1 (4) Mild Steel Test Sample after 3Month Immersion Corrosion Test.

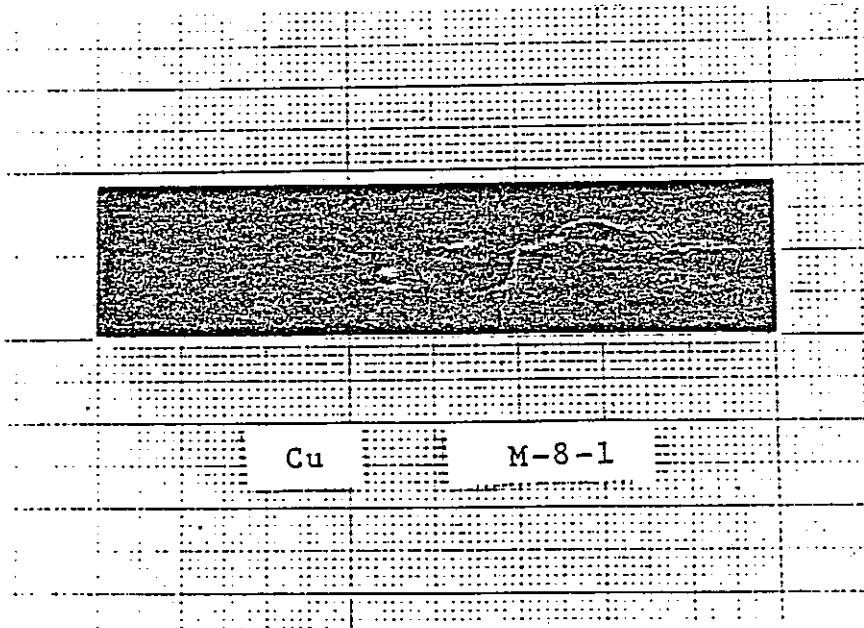


Photo 6 - 1 (5) Pure Copper Test Sample after 3 Month Immersion Corrosion Test.

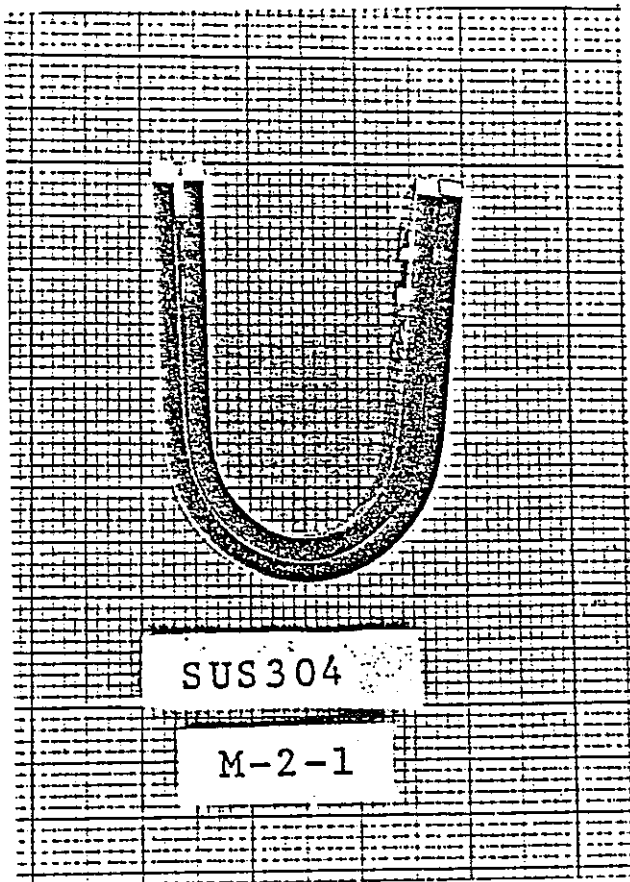


Photo 6 - 2 (1) Double U Bend SCC Test Sample of SUS 304 after 3 Month Immersion Corrosion Test.

148
128

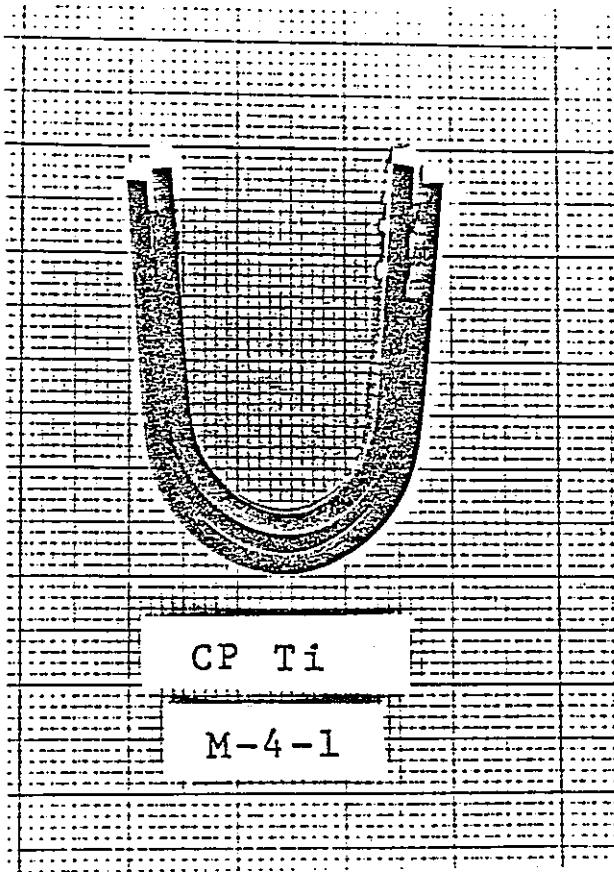


Photo 6 - 2 (z)
Double U Bend SCC Test Sample of
CP Titanium after 3 Month
Immersion Corrosion Test.

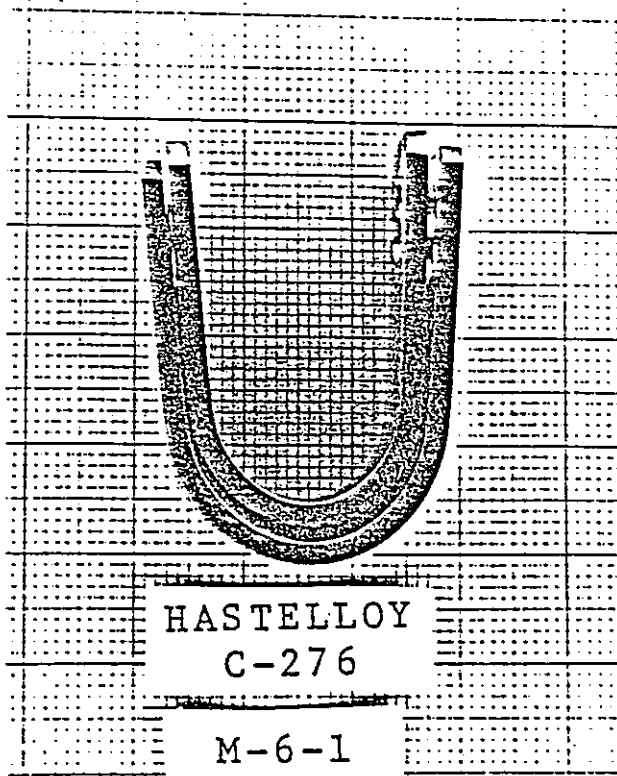


Photo 6 - 2 (z)
Double U Bend SCC Test Sample of
Hastelloy C-276 after 3 Month
Immersion Corrosion Test.

Table 6 - 8 Corrosion Test Results of Coupon Samples after 3 Month Immersion Corrosion Test.

Test Sample (Sample No.)	Corrosion			Attachment Weight of Scale (mg)	Surface Appearance of Test Samples
	Weight Loss (mg)	Rate (g/m ² h)	Rate (mm/y)		
Stainless Steel SUS 304 (M-1-1)	0	—	—	3.6 *	Stable Brown Scale Attached
CP Titanium (M-3-1)	1.0	0.00013	0.00026	<0.1 *	Stable Brown Scale Slightly Attached
Hastelloy C-276 (M-5-1)	0	—	—	3.5 *	Stable Brown Scale Attached
Mild Steel (M-7-1)	194.7	0.0251	0.0280	3.5 **	Totally Corroded Brown Scale Attached
Pure Copper (M-8-1)	21.8	0.0031	0.0030	7.6 **	Stable Brown Scale Attached

Descaling : * 20% H₂SO₄ + 2.5% NaCr₂O₇ 30 °C, 30 min
 ** 10% Ammonium Citrate 70 °C, 1 min

く、次ぎに純チタン、無酸素鋼であり、軟鋼が最も腐食大であるといえる。

SUS 304、ハステロイ C-276 及び純チタンは、表面に不動態被膜を形成する材料で、良好な耐蝕性を示すものである。本年度の結果では、純チタンが3ヶ月間の浸漬環境で 1.0 mgの腐食減量が認められたが、さらに長期の埋設試験では、不動態被膜に保護され、腐食の進行は緩やかになるものと思われる。

6. 5. 3 応力腐食割れ

6. 5. 1で記述したように、SUS 304、ハステロイ C-276 及び純チタンのダブル Uベンド試験体では、いずれも応力腐食割れは認められなかった。

試験体は、2枚の平板を重ね合わせ、U字状に曲げてあるので、金属-金属すきま腐食や応力腐食割れが発生し易い状態にある。3ヶ月間の浸漬では、これらの腐食は認められなかったが、さらに長期の浸漬期間後の試験体によって、これらの腐食性を評価することが可能と考えられる。

6. 6 今後の試験方法の検討

本年度の試験方法及び結果から今後の試験方法について以下に検討する。なお、試験規模（試験体などの大きさ）としては本年度と同程度のものを前提として検討を行う。

6. 6. 1 試験条件の検討

本年度より開始した固化体等の埋設試験は、地下水を埋設孔に満たし、固化体等の試験体を設置したものである。

地層処分環境では、固化体からの発熱により固化体周辺では温度が上昇することが予想される。高レベル廃棄物ガラス固化体の工学的貯蔵期間、処分場の母岩、処分孔の規模や間隔等によって、固化体周辺の温度分布はさまざまであるが、熱解析の研究例（PNC SJ-199 84-04 (2-2)）から、キャニスタ表面温度を 100℃以下に保持することは可能であると考えられる。従って、今後の固化体等の埋設試験では、高温条件（100℃以下）を試験条件に加えることは、地層処分環境を模擬する上で重要である。

また、地層処分環境では、オーバーパックと地層との間には緩衝材（候補材料としてベントナイトを主体とする可能性が高いと予想される）が定置される。オーバーパック材料の候補としては金属材料が一般に考えられている。その機能としては耐蝕性が第一義

的に要求されるので、オーバーパック材料の耐蝕性を評価するには、緩衝材の共存する系においてなされることが重要であると考えられる。今回の埋設試験に使用した金属材料は、オーバーパック材料の候補として可能性があることから選択されているが、本年度の試験では金属/地下水の共存下条件のみを設定したものである。従って、今後の埋設試験では、金属/ベントナイト/地下水の共存下条件での試験が必要である。

以上の観点を考慮し、今後の埋設試験では、次の試験条件を加えることを提案する。

- ①加熱装置を用いて高温条件（100℃以下）を設定する。
- ②金属/ベントナイト/地下水共存下条件を設定する。

6. 6. 2 加熱方法

埋設孔内の温度条件としては、50～70℃と30～50℃程度の2点を提案する。各埋設孔に所要のヒータを挿入することが考えられるが、試験体の種類が多いため、埋設孔の孔数が多くなることから、各孔につき1ヒータでは経済的ではないと思われる。ヒータ用の孔を1孔設け、その周囲に埋設孔を設けることが最も安価な方法である。

58年度の原位置岩石加熱試験の結果を参考にすると、ヒータ（径約32cm）出力1.5kWで、外周囲孔（半径1.5m）の孔内温度が約45℃（1ヶ月後）で、温度が定常に近くなるのに2ヶ月程度の期間を要することが判明している。この時の温度分布の解析から、ヒータの中心から約50cm離れた地点で約70℃であることが求められている。岩石の種類、割れ目の状況や周囲の空洞の形状によって熱の伝達は異なるが、今後の埋設試験の箇所を原位置試験と同様の凝灰岩中に選定するならば、温度の分布は大きく変わらないと予想される。

以上より、埋設孔の設置箇所として、

- ・ヒータより約40cmの地点：約70℃
- ・ヒータより約140cmの地点：約40℃

の2点を提案する。また、温度の観測孔として数孔を設け、熱電対を設置することで埋設孔内の温度を推定することが可能である。

ヒータは出力1.5kW程度で、蒸気熱源として使用できるもので十分である。ただし、長期間（2～3年）にわたり、加熱を継続するにはその性能は保証されないため、予備ヒータを備えおくことが必要であろう。

6. 6. 3 埋設方法と回収方法

埋設試験体の種類、大きさとしては、本年度と同程度のものを用いる。ただし、金属／ベントナイト／地下水共存系では、埋設孔内に金属試験体を設置し、ベントナイトで埋め戻す方法があるが、数年間分の試験体を1孔に埋設しておく場合、所要の期間が経過した後、試料を回収する時に、残りの試験体周辺の環境を変化させる可能性があり、また、回収に困難が予想される。そのため、金属／ベントナイト／地下水共存系での試験体は、ベントナイト中に金属試料を埋め込み、加圧機などで押し固めて、金属＋圧縮ベントナイトの試験体を作成する方法を提案する。いずれの試験体も、テフロン容器（目あき）に封入し、埋設孔へ設置するれば、試験体の回収も容易に行えるものと考えられる。

なお、本年度の試験では、埋設孔を水平に近い方向で削孔したため、孔内のわずかな減水により、試験体が露出することがあった。試験体の露出を避けるためには、埋設孔を床面より垂直に削孔する方が適当であると考えられる。また、削孔深度も、本年度のものより深いものとしておくことも必要である。

前記の加熱条件での、ヒータ孔及び埋設孔の配置の一例を Fig. 6-6 に示す。Fig. 6-6 は、床面に垂直に埋設孔を掘削したものである。孔の深さを約 2 m とし、試験体の設置区間は孔下部約 1 m の範囲である。地下水の水位を床面より下 30～50 cm 程度に保持する。

Fig. 6-7 に示すように、埋設孔内には、テフロン製など（耐化学性）の網状の円筒を挿入し、その内側に試料を封入した容器を所要の数だけ積み重ねて設置する。円筒の外側には、円筒を固定するため並びに岩石と円筒の間にサンプリング用などのチューブが挿入できるように、数 cm のガイドつめをつけておくと便利である。

埋設孔内の地下水は自然に湧出するものが望ましいが、本年度の結果から、地下水の湧出する孔を多く見いだすには、数多くの削孔（大部分は湧水がないものと思われる）が必要であると推定される。従って、本年度と同様に、坑内に湧出する地下水を埋設孔内へ導水する方法を採用する。

以上は、埋設方法の一例であるが、空洞の状況によっては、所要の床面の広さが確保出来ない場合がある。その場合には、ヒータより 1.4 m 程度離れた埋設孔の位置を変更する方法や、ヒータを複数設ける方法がある。また、坑道の側壁を利用する場合には、埋設孔の傾斜を大きくとることにより可能であると思われるが、試験体を埋設する前に、

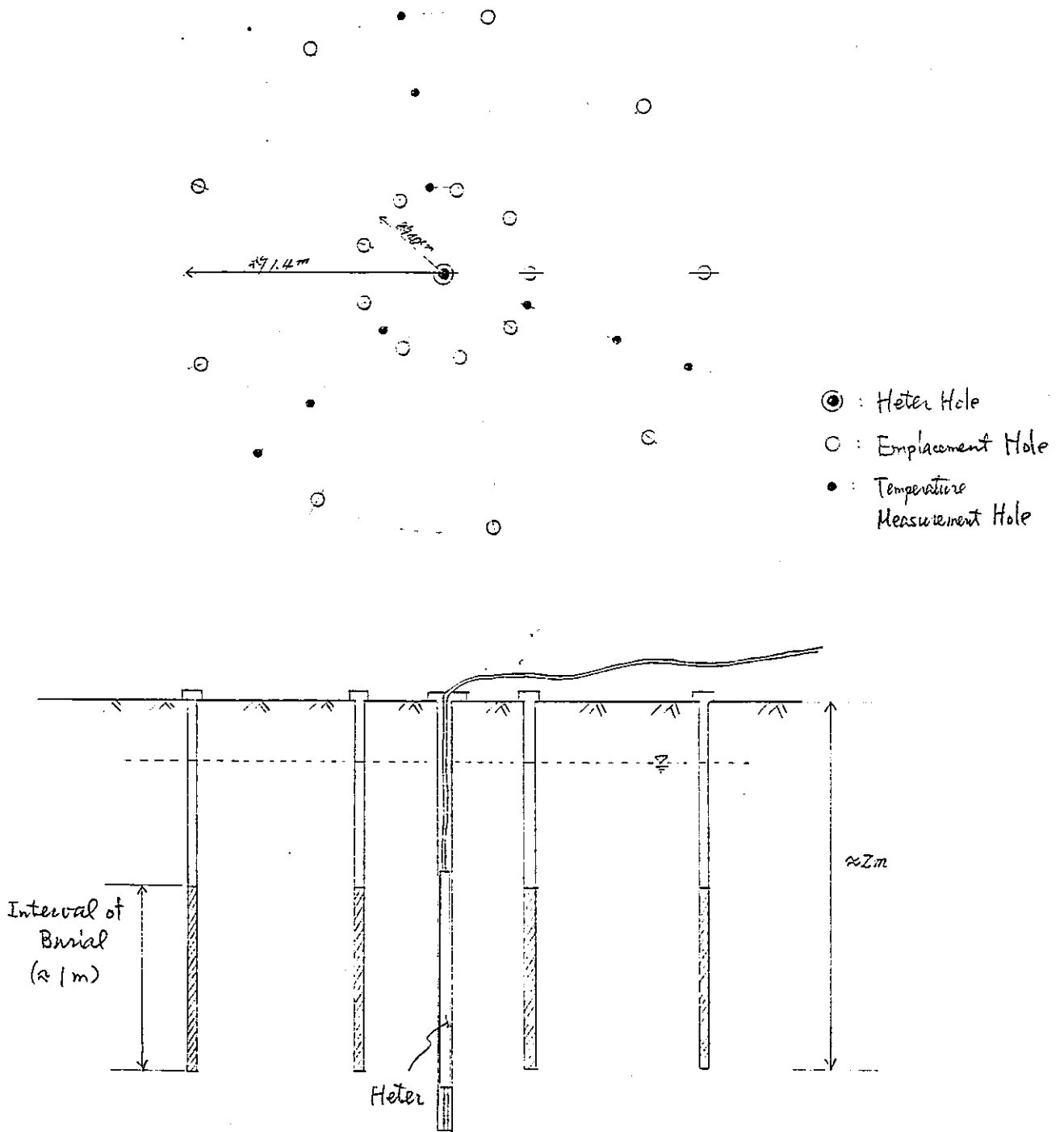


Fig. 6-6 Conceptual Layout of Boreholes.

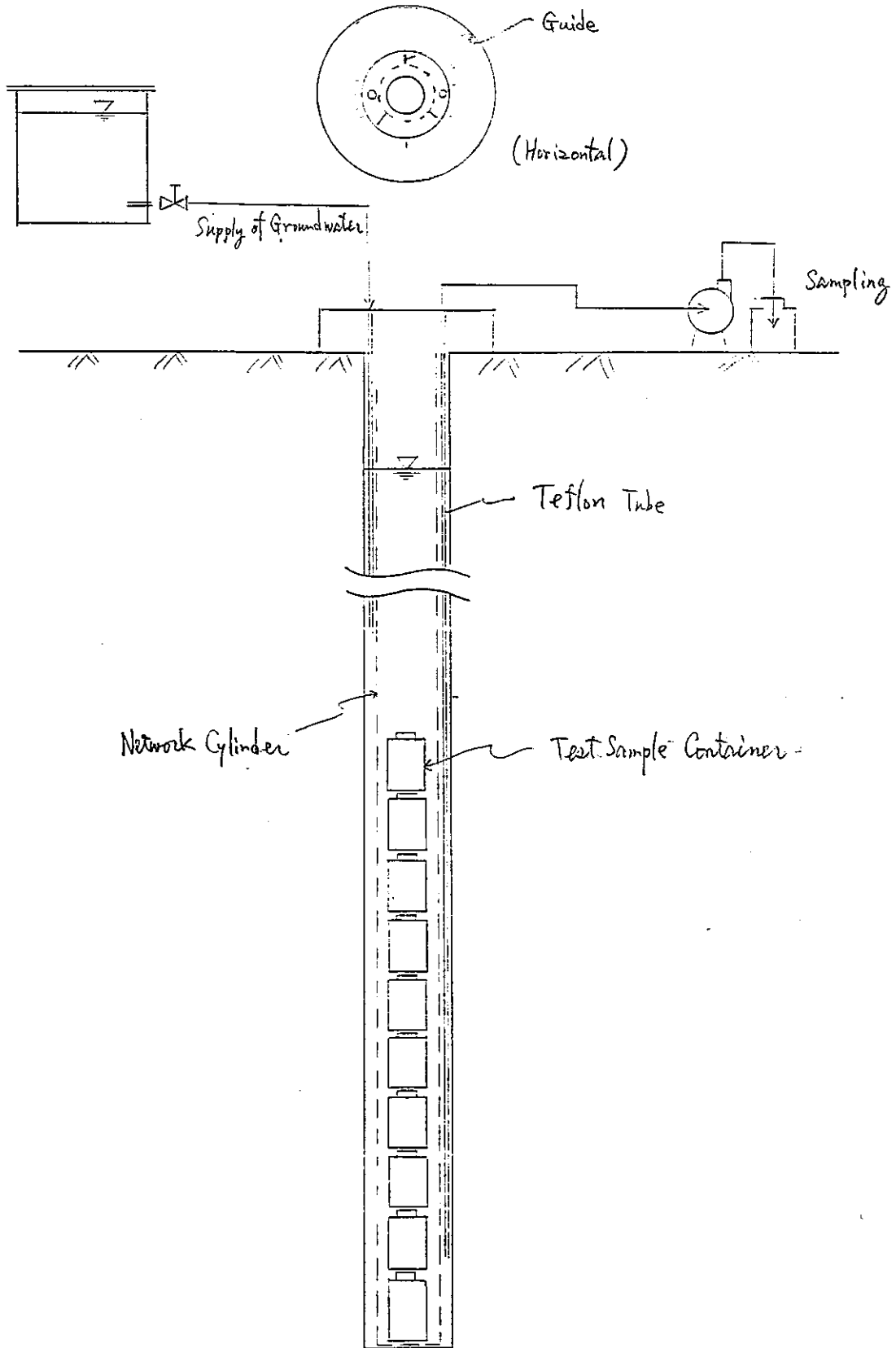


Fig 6 - 7 Experimental Set up of Corrosion Test in Test Hole.

温度分布がどのようになるかを確認する必要がある。

6. 6. 4 サンプルング等

各孔内に定置された試験体は、所要の期間が経過した後、順次回収され分析等に供される。試験体は容器に封入されているので、埋設孔からそのまま容易に回収できる。最後の試験体を回収した後は、ガラス固化体から浸出したコールド核種の岩石内移行状況を把握するため、埋設孔をオーバーコアリングし、岩石内の核種濃度などの分析を行う。

埋設内へ導水する地下水の水質分析を行うが、本年度では実施しなかった溶存酸素量の測定を現地にて行うことも必要である。また、埋設期間を本年度の試験と同程度とすると、長期にわたり試験試料が地下水と接触するので、ガラス固化体やベントナイト成分が地下水に溶出することが予想される。溶出成分や地下水の化学的変化を把握するため、3～6ヶ月ごとに各孔内より地下水をサンプルングし、分析に供する。また、現地にて、各孔内の溶存酸素量、pH、Eh、温度の測定を行う

6. 7 まとめ

ガラス固化体及び容器の長期にわたる化学的耐久性、耐蝕性に関する現象を把握するため、細倉鉾山の坑道の側壁にガラス固化体、金属材料などを埋設した。埋設に際しては、埋設箇所の地質、地下水の状況を調査した。また、埋設後3ヶ月経過後、金属試験体を回収し、腐食に係わる分析・観察を行った。さらに、本年度の結果をふまえ、今後の埋設試験に係わる試験方法について検討した。

本調査・試験の結果をまとめると以下のとおりである。

- ① 埋設箇所には、石英安山岩質凝灰岩が分布する。割れ目としては、粘土を挟むもの、方解石脈を挟むもののほかに節理が存在する。粘土を挟む割れ目が坑道の天蓋と交叉する付近より多くの湧水が認められた。
- ② 3ヶ月経過後に回収した金属試験体の分析を行った結果、純チタン、軟鋼、無酸素鋼で腐食減量が認められた。その腐食速度は、それぞれ0.00026 mm/y、0.0280 mm/y、0.0030 mm/y 程度であった。ステンレス鋼 (SUS304) 及びハステロイ C-276 では腐食は認められなかった。また、ステンレス鋼 (SUS304)、純チタン及びハステロイ C-276のダブルUバンド試験体の観察では、応力腐食割れは認められなかつ

た。

- ③ 今後の試験条件として、加熱装置を用いて高温条件を設定すること、並びに、金属/ベントナイト/地下水共存下条件を設定することを提案し、その試験方法の一例を示した。

あ と が き

本年度の空洞開削により、「堆積岩に関する原位置試験フェーズⅡ」で当面の試験課題として計画されている試験項目のうちの「模擬パッケージ埋設試験」、「単一割れ目トレーサ試験」、「地下水浸透試験」を実施する空間が得られた。さらに、「加熱透水試験」、「原位置せん断試験」を行うための試験空洞を開削することが必要であり、次年度における早急の開削が望まれる。

また、フェーズⅡにおける試験においては、長期間にて地層環境の水理、化学、熱、力学の現象を計測し、それらの現象を明らかにする、あるいは把握する評価・試験方法を確立することに一つの主眼が置かれている。したがって、各試験項目とも実際の試験期間（加熱期間、透水期間、測定期間等）がなるべく長期になるよう、試験を早急に実施することが望ましい。

地下深部にて原位置試験を行うことが容易ならざる現状においては、細倉原位置試験場は将来の地層処分サイトの選定あるいはサイトの性能評価における評価・試験方法の確立に資する基礎資料の得ることのできるまたとない場所である。また、そのためにも同試験場での試験を今後とも鋭意進めていく必要がある。