

JAERI-M

9 2 4 7

高レベル廃棄物の処分岩体および処分
地層としての岩石の熱特性

1980年12月

下岡謙司・石崎寛治郎*・岡本雅道**
熊田政弘・荒木邦夫・天野 恕

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

高レベル廃棄物の処分岩体および処分地層と
しての岩石の熱特性

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部
下岡謙司・石崎寛治郎*・岡本雅道**
熊田政弘・荒木邦夫・天野 恕†

(1980年12月2日受理)

高レベル放射性廃棄物の地層処分において、廃棄物から発生する崩壊熱の岩石に及ぼす影響を考慮し、岩石の耐熱性の観点から廃棄物固化体の処分条件を設定することを目標に岩石の熱特性について検討した。

我が国の地層・岩体を構成している岩石である珪藻土、流紋岩、変朽安山岩、砂岩、石灰岩、玄武岩、花崗岩、ゼオライト質岩、安山岩および凝灰岩に関して、比熱、熱伝導率、熱膨張率、一軸圧縮強度および示差熱分析等の熱物性を測定し、これらの結果に基づき処分地層としての岩石の耐熱性について考慮を試みた。

凝灰岩 (>1450°C)、安山岩 (1300°C)、ゼオライト質岩 (1250°C)、花崗岩 (1200°C)、玄武岩 (1150°C) がかつこ内に示した融点まで比較的安定した耐熱性を有することがわかった。石灰岩は650°Cで脱炭酸を生じ、珪藻土、流紋岩、砂岩、および変朽安山岩はそれぞれ200°C、450°C、600°Cおよび500°Cの温度で分解が起こるので、これ以下の温度で工学的貯蔵をする必要がある。

† 安全性試験研究センター
* 外来研究員 秩父セメント㈱
** 外来研究員 ㈱日本製鋼所

Thermal characteristics of rocks for high-level waste repository

Kenji SHIMOOKA, Kanjiro ISHIZAKI*, Masamichi OKAMOTO**,
Masahiro KUMATA, Kunio ARAKI and Hiroshi AMANO +

Division of Environmental Safety Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received December 2, 1980)

Heat released by the radioactive decay of high-level waste in an underground repository causes a long term thermal disturbance in the surrounding rock mass.

Several rocks constituting geological formations in Japan were gathered and specific heat, thermal conductivity, thermal expansion coefficient and compressive strength were measured.

Thermal analysis and chemical analysis were also carried out.

It was found that volcanic rocks, i.e. Andesite and Basalt had the most favorable thermal characteristics up to around 1000 °C and plutonic rock, i.e. Granite had also favorable characteristics under 573 °C, transition temperature of quartz.

Other igneous rocks, i.e. Rhyolite and Propylite had a problem of decomposition at around 500 °C.

Sedimentary rocks, i.e. Zeolite, Tuff, Sandstone and Diatomite were less favorable because of their decomposition, low thermal conductivity and large thermal expansion coefficient.

Keywords; Repository, High-level Waste, Andesite, Basalt, Granite, Rhyolite, Propylite, Limestone, Zeolite, Tuff, Sandstone, Diatomite, Specific Heat, Thermal Conductivity, Thermal Expansion Coefficient, Compressive Strength, Thermal Analysis.

+ Reactor Safety Research Center, JAERI

* On leave from Chichibu Cement Co. Ltd.

** On leave from The Japan Steel Works Ltd.

目 次

1. 序論	1
2. 実験方法	2
2.1 比熱	2
2.2 熱伝導率	2
2.3 熱膨張率	2
2.4 一軸圧縮強度	2
2.5 示差熱分析	2
3. 供試岩石の種類と化学成分	3
4. 結果と考察	7
4.1 岩石の比熱と熱伝導率	7
4.2 岩石の熱膨張率と強度	7
4.3 岩石の示差熱分析	8
4.4 岩石の耐熱性	9
5. まとめ	22
6. 結論	24
謝辞	25
引用文献	25
資料 岩石の細孔径分布	26

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	2
2.1 Specific heat	2
2.2 Thermal conductivity	2
2.3 Co-efficient of thermal expansion	2
2.4 Uniaxial compressive strength	2
2.5 Thermal analysis	2
3. Specification and chemical composition of the sample rocks...	3
4. Results and Discussion	7
4.1 Specific heat and thermal conductivity	7
4.2 Co-efficient of the thermal expansion and strength	7
4.3 Differential thermal analysis	8
4.4 Thermal characteristics	9
5. Summary	22
6. Conclusion	24
Acknowledgement	25
References	25
Appendix	26

1. 序 論

核燃料サイクルにおいて、使用済み核燃料の再処理工程から発生する高レベル廃棄物の安全かつ経済的な処理処分技術の確立は不可欠である。先進諸国は再処理と、高レベル廃棄物の処理処分の研究に関しては経験と歴史を有している¹⁾。我が国における再処理を含む核燃料サイクルのバックエンドについては、今日国内での再処理の稼動開始ということと、国外委託再処理に伴う高レベル廃棄物の返還の可能性が高まったことで、高レベル廃棄物の自国内処分法に関する技術開発と安全性確保の研究に対する緊急度が大きくなった。

昭和51年10月に、原子力委員会は高レベル放射性廃棄物対策について「高レベル放射性廃棄物は環境汚染を防止する見地から、半永久的に生活圏から隔離し、安全に管理することが必要である。処分については、当面地層処分に重点をおき、我が国の社会的、地理的条件に見合った処分方法の調査研究を早急に進め、今後3～5年のうちに処分方法の方向付けを行うことを目標とする。」という指針を示した²⁾。

高レベル廃棄物の処分地の選択にあたって、諸外国では乾燥しているという点から主として岩塩層が選ばれ研究が進められてきた¹⁾が、地下水が浸入してきたときの問題、容器の廃食性の問題が指摘され、他の岩体・地層、例えば火成岩や堆積岩等も見直されてきている。一方我が国においては岩塩地層が存在しないので、火成岩、変成岩、堆積岩を対象にし研究をすすめる必要がある。

高レベル廃棄物の処分において長期間の安全性評価のための要因はいくつかあるが、その一つとして処分固化体中の放射性廃棄物核種の壊変過程に際して発生する崩壊熱が、周囲の岩体、地層に及ぼす影響がある。この崩壊熱が岩石の物性を変えバリアーとしての性状を変化させることについて安全性の評価をしなければならない。岩石の物性に関する報告は多数あるが³⁾⁴⁾⁵⁾⁶⁾⁷⁾⁸⁾、地層処分の観点から各種岩石について種々の物性を系統的に測定評価されたことは無い。

本報告は岩石の熱的特性を明らかにし、使用限界温度についての考察をし、あわせて他の物性にもふれたものである。すなわち我が国の岩体・地層を構成する岩石である珪藻土、流紋岩、変朽安山岩、砂岩、石灰岩、玄武岩、花崗岩、ゼオライト質岩、安山岩、凝灰岩についての、岩石の熱特性を中心とする試験結果、比熱、熱伝導率、熱膨張率、一軸圧縮強度、示差熱分析、組成化学分析の結果に基づき、処分岩体・地層としての岩石の耐熱性についての考察を試みたものである。あわせて構造材として一般に広く用いられているコンクリートとの比較も試みた。

2. 実験方法

2.1 比熱

各岩石試料を粒径1 mm程度に破碎して縮分した後、約20gを採取し、200メッシュ(74 μ m)に粉碎した。この粉末試料を恒温槽内にて105 $^{\circ}$ C、24時間保持した後、ただちにデシケーターに入れ自然冷却したものを比熱測定用の試料とした。

装置は理学電気工業株式会社製の示差走査熱量計を用い、標準物質として α - Al_2O_3 を使用した。試料10~40mg程度を白金容器に均一に充填し、昇温速度10 $^{\circ}$ C/minで加熱し、加熱により生じる標準物質との熱起電力の差を記録した。測定は65~80 $^{\circ}$ Cの温度範囲で行ない、各々の試料について3回の平均値をもって各試料の比熱の値とした。

2.2 熱伝導率

熱伝導率測定のために各岩石を10 \times 20 \times 5cmの寸法に切断し、測定のための面を平滑に研削した後、恒温槽内にて105 $^{\circ}$ C、96時間保持し、デシケーター内で自然冷却した。

装置は京都電子工業株式会社製の非定常熱流法による熱伝導率測定装置TC-22型を使用した。発熱体には熱電対を兼ねたクロメル-コンスタンタンを用いた。

2.3 熱膨張率

各岩石を5 \times 5 \times 20mmの直方体に成形し、表面を研磨仕上げを行った後、恒温槽内にて105 $^{\circ}$ C、24時間保持し、デシケーター内で自然冷却した後測定を行なった。真空理工社製DL-1500-H型熱膨張計を用い、アルゴン雰囲気中で昇温速度を5 $^{\circ}$ C/minとし、1000 $^{\circ}$ Cまで昇温して測定を行なった。

2.4 一軸圧縮強度

各岩石を30 ϕ \times 60mmの円柱形に切断し、円柱の両端面が平行かつ平滑になるように研削後、さらに200メッシュのカーボンランダムを用いて加圧面を研磨仕上げし、測定に供した。装置は明石製作所の50t圧縮試験機と、新興通信工業社製ストレン・メータを用い、約4kg/cm²/secの加圧速度で、応力と歪の関係を測定した。

2.5 示差熱分析

供試体は岩石を破碎し、メノウ乳鉢で約200メッシュに粉碎して用いた。測定装置は理学

電機株式会社製高温型示差熱分析装置を使用した。実験は空気雰囲気中で、標準物質として α - Al_2O_3 を用い、試験温度は白金-白金13%ロジウム熱電対により測定した。測定は白金容器に約30mgの試料と標準物質を充填して、熱天秤にのせ、加熱と同時に生じる熱起電力の差と重量変化を自動記録させたものである。昇温速度は20°C/minとし、最高1450°Cまで測定した。

3. 供試岩石の種類と化学成分

本実験に用いた岩石の種類と岩質、組織・構造および地質年代をTable 1に示す。湿式分析法により行なった各岩石の化学組成をTable 2に示す。

各岩石試料を1000°Cで加熱した時の強熱減量 (ig. loss) は、石灰岩が36.6%と最高の値を示し、珪藻土、ゼオライト質岩、凝灰岩が10%以上の値を示している。砂岩、流紋岩、変朽安山岩では3~5%の強熱減量を示し、花崗岩、安山岩では0.3%の減量にとどまり、玄武岩では0.1%の増量を示した。

流紋岩、珪藻土、花崗岩はシリカ成分に富み、70wt%以上の SiO_2 を含有していた。これに対し石灰岩は14.4 wt%の SiO_2 を含有していたにすぎなかった。また、流紋岩と珪藻土には硫黄成分が含有されており、 $Na_2O \cdot K_2O$ などのアルカリ成分は、花崗岩、玄武岩、変朽安山岩、安山岩、砂岩に特徴的に見られ、その値も5.2~7.3 wt%と高い値を示した。

なお、各供試岩石の物理的性質をTable 3に示す。

Table 1 Specification of the sample rocks

Sample	Period (Epoch)	Rock type	Grain size (mm)	Texture, Structure
Diatomite	Tertiary (Miocene)	Diatomite	—	clay, aggregate rich.
Rhyolite	Tertiary (Miocene)	Altered Rhyolite	—	silicification, argillization, pyritization. Phenocryst includes quartz, altered feldspar, mafic minerals.
Propylite	Tertiary (Miocene)	Propylite	—	carbonatization, chloritization, sericitization.
Sandstone	Cretaceous	Arkose sandstone IZUMI	0.1~1.5	bad classification, weak argillization, limonitization.
Limestone	Permian	Crystalline limestone	Calcite 0.5 ~ 3 Quartz 0.1 ~ 0.3	equigranular texture
Basalt	Quaternary	Alkali olivine basalt	phenocryst 0.1~1	porphyritic, holocrystalline, flow structure.
Granite	Permian	Biotite granite INADA	1 ~ 3	equigranular, accessory minerals { muscovite, apatite, zircon, allanite.
Zeolite	Tertiary (Miocene)	Acidic tuff	fine granular	consists of zeolite, cryptocrystalline felsic minerals.
Andesite	Quaternary	Two pyroxine andesite	phenocryst 0.1~1	porphyritic texture, limonite impregnation.
Tuff	Tertiary (Miocene)	Crystalline vitric tuff ITAYA	0.1~1.5	quartz, feldspar grain. glass: partially argillation.

Table 2 Chemical composition of rocks

Rock	ig.loss*	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	Na ₂ O	K ₂ O
Diatomite	13.8	77.5	5.2	1.0	0.4	0.4	1.7	0.8	0.5
Rhyolite	3.7	78.7	10.0	3.9	0.3	0.6	4.1	0.1	2.4
Propylite	5.7	56.2	17.7	6.6	4.3	3.6	0	3.8	2.3
Sandstone	3.4	68.7	14.0	3.6	3.0	1.1	0	3.5	2.1
Limestone	36.6	14.4	0.3	0.1	47.7	0.3	0	0.7	0.3
Basalt	+0.1	50.6	21.8	9.8	8.5	4.4	0	4.4	1.9
Granite	0.3	73.6	14.9	1.4	2.0	0.2	0	3.3	4.0
Zeolite	11.3	69.2	11.9	0.9	2.4	0.6	0	1.4	2.5
Andesite	0.3	59.8	19.4	6.7	8.8	1.0	0	3.6	1.6
Tuff	10.3	69.5	12.6	1.1	2.0	0.6	0	2.0	2.3

* Ignition loss at 1000° C

(wt. %)

Table 3 Physical properties of rocks

	Compressive strength	Tensile strength	Static elastic coefficient	Density	Water absorption	Water content	Effective porosity	Specific heat	Co-efficient of thermal expansion (at 500°C)	Thermal conductivity
	圧縮強度 (kg/cm ²)	引張強度 (kg/cm ²)	静弾性係数 (kg/cm ²) ×10 ⁵	密度 (g/cm ³)	吸水率 (%)	含水率 (%)	有効間隙率 (%)	比熱 (cal/g °C)	熱膨張率 (mm/°C) ×10 ⁻⁶	熱伝導率 (cal/cm·s·°C)
Diatomite 珪藻土	123	17.5	0.084	1.34	82.84	57.50	63.79	0.240	0.00	0.753
Rhyolite 流紋岩	315	10.5	3.476	2.36	6.32	2.90	14.69	0.197	21.87	5.219
Propylite 変朽安山岩	1333	48.8	2.998	2.53	2.12	1.36	5.35	0.210	14.82	5.073
Sandstone 砂岩	1161	70.2	3.350	2.58	1.20	1.29	3.08	0.203	16.89	5.299
Limestone 石灰岩	526	16.9	2.843	2.68	0.19	0.14	0.51	0.206	32.55	7.134
Basalt 玄武岩	1751	48.0	2.789	2.68	1.95	1.51	5.20	0.201	9.71	3.264
Granite 花崗岩	1745	43.7	4.616	2.62	0.27	0.20	0.72	0.193	20.06	5.299
Zeolite ゼオライト質岩	258	10.8	0.506	1.59	21.86	6.98	32.75	0.225	2.30	1.961
Andesite 安山岩	1054	28.9	1.839	2.55	1.51	0.98	3.84	0.193	13.13	3.726
Tuff 凝灰岩	173	7.8	0.358	1.27	27.43	4.99	33.33	0.233	3.21	1.526

4. 結果と考察

4.1 岩石の比熱と熱伝導率

岩石の比熱と熱伝導率の関係を Fig.1 に示す。岩石の比熱はおよそ $0.2 \text{ cal/g}\cdot\text{C}$ であり、岩塩を形成している NaCl ⁹⁾ 及びコンクリート¹⁰⁾ の値 $0.2 \text{ cal/g}\cdot\text{C}$ とほぼ同等である。

熱伝導率は珪藻土が $0.75 \times 10^{-3} \text{ (cal/cm}\cdot\text{s}\cdot\text{C)}$ と最も低く、凝灰岩とゼオライト質岩が $2.0 \times 10^{-3} \text{ (cal/cm}\cdot\text{s}\cdot\text{C)}$ で次いでおり、石灰岩の $7.0 \times 10^{-3} \text{ (cal/cm}\cdot\text{s}\cdot\text{C)}$ が最高で、珪藻土の約9倍の値を示した。花崗岩、流紋岩、変朽安山岩、砂岩もおおよそ $5.0 \times 10^{-3} \text{ (cal/cm}\cdot\text{s}\cdot\text{C)}$ と比較的高い熱伝導率を示した。ちなみにコンクリート⁹⁾¹⁰⁾ 及び岩塩⁹⁾ の熱伝導率は、それぞれ $1.1 \sim 2.2 \times 10^{-3} \text{ (cal/cm}\cdot\text{s}\cdot\text{C)}$ 、 $1.667 \times 10^{-3} \text{ (cal/cm}\cdot\text{s}\cdot\text{C)}$ であり、供試岩石の熱伝導率はこれら両者の中間に位置している。

4.2 岩石の熱膨張率と強度

各岩石の熱膨張率と温度との関係を Fig.2 に示す。

Fig.2より供試岩石の熱膨張率の温度依存性は4つに大別できる。すなわち、(1)一定温度まで膨張し、以後収縮する石灰岩、流紋岩、変朽安山岩、砂岩、(2)およそ 300°C まで膨張し、それより高温では変化が少なくなる玄武岩、安山岩、(3)約 600°C まで膨張し崩壊する花崗岩及び、(4)膨張・収縮を繰り返す、結果として変化の少ない凝灰岩、珪藻土、ゼオライト質岩の四つである。

コンクリートの熱膨張率はおおよそ $10 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ であり、石灰岩、流紋岩、花崗岩、変朽安山岩および砂岩のそれはコンクリートより大きく、安山岩および玄武岩のそれはコンクリートとほぼ等しく、凝灰岩、珪藻土、ゼオライト質岩のそれは、コンクリートより小さい。

石灰岩が 800°C 以上で収縮している原因は、Fig.9の示差熱分析図に示すように 650°C 付近から開始する炭酸カルシウムの脱炭酸反応¹¹⁾ に起因している。また花崗岩が 600°C 以上で崩壊した原因は、石英が 573°C で α -quartz から β -quartz へ転移する際に生ずる急激な体積変化のためと考えられる⁷⁾¹²⁾。

本実験に供した岩石は、どれも少なからず正の熱膨張率を有しており、処分場を設計する際には廃棄物からの崩壊熱により加熱される領域とその温度および岩石の熱膨張率を考慮した工学的な設計を行なうことが肝要である。

Fig.3に掲げた、熱膨張係数と熱伝導率との関係図では、両者の間に正の相関々係があるように思われる。

供試岩石の一軸圧縮強度を Fig.4 に示す。普通コンクリートのそれはおよそ $300 \sim 600 \text{ kg/cm}^2$ であり、これを同時に示す。珪藻土と凝灰岩の両者はコンクリートの一軸圧縮強度より低い値を示したが、他の岩石はみなコンクリートと同等かそれ以上であることが判明した。

特に玄武岩と花崗岩では 1700 kg/cm^2 以上の値を示し、これはポリマー含浸コンクリートの一軸圧縮強度 ($1500 \sim 2000 \text{ kg/cm}^2$) に匹敵するものである。

岩石は加熱によって強度変化をするがその温度依存性は、処分場の設計を行うための重要な要因の一つとなる。外尾、高島⁷⁾は花崗岩や石灰岩のように結晶質の岩石は、加熱温度の上昇とともに圧縮強度が減少し、非晶質の岩石では、加熱温度の上昇とともに、砂岩のように圧縮強度の増減の変化のあまりないものと、安山岩や凝灰岩のように相当上昇するものがあることを報告している。その理由として、強度の低下は岩石の組織構成が変化することを挙げている。たとえば花崗岩では数十%含有されている石英が 573°C 付近で転移する時に体積膨張を生じて部分的に亀裂を発生して崩壊するためであり、凝灰岩のように強度の上昇する岩石は、造岩鉱物中に存在する粘土質部分をその他の粒間の介在物が加熱により焼成されて粒子間の結合が強化されるためとしている。

なお、強度の低下する花崗岩の場合でも石英の $\alpha \rightarrow \beta$ 転移温度以下であれば著しい強度低下は見られないので工学的な対策を講ずれば処分地層として問題ないといえる。同様に石灰岩に対しても分解温度以下で使用する限りにおいては処分地層として不適ではないと思われる。

4.3 岩石の示差熱分析

各岩石およびセメントモルタルの示差熱分析図を Fig.5~15 に示す。示差熱分析により得られる知見は加熱による岩石の状態変化、すなわち脱水、分解、転位、溶融などである。一般に、岩石は単一化学組成物でないためこれらの状態変化が複合して現われる。たとえば、溶融点は示差熱分析図からだけでは決定できないので、本研究では注目する温度付近で加熱を中止し、試料ホルダー中の試料を目視により確認して決定した。図中で示差熱分析図は DTA、熱重量変化図は TG、熱重量変化の微分値を DTG 曲線で示し、加熱温度は横軸と温度と昇曲線として掲げてある。また試料の測定条件は図の右上に示した。

本研究に用いた岩石の内、分解型の岩石は Fig.5~9 に示す 5 種の岩石で、発熱型の分解は珪藻土と流紋岩、吸熱型は変朽安山岩、砂岩、石灰岩であった。また、花崗岩 Fig.11 では前述の α 石英から β 石英への転移が DTA 曲線上の 575°C 付近で鋭い吸熱ピークとして観察された。他の 4 種の岩石に関しては脱水以外の分解、転移は認められない。なお、セメントモルタルは Fig.15 に示すようにセメントクリンカーの水和物と未水和物および骨材の混合物のため、岩石より複雑な DTA 曲線を示した。

岩石の溶融は吸熱反応である。溶融開始温度 (M.P.) は Fig.7 の変朽安山岩、Fig.8 の砂岩、Fig.10 の玄武岩、Fig.11 の花崗岩のように吸熱ピークに向う変曲点に存在するのが最も典型的なものである。流紋岩・Fig.5 はドリフトするベースライン上でわずかに吸熱する形で認められ、セオライト・Fig.12 と安山岩・Fig.13 は吸熱ピークに向う曲線上で確認された。 1450°C までに溶融しない岩石は凝灰岩と珪藻土および脱炭酸して生石灰化した石灰岩の 3 種類であった。

4.4 岩石の耐熱性

示差熱分析結果より求めた供試岩石の各温度域での重量減少に関する20~100℃と100~300℃での変化をFig.16, 300~600℃, 1000~1400℃での変化をFig.17に掲げてある。20~100℃での重量減少は附着水の揮散, 100~300℃での重量減少は主に吸着水と結晶水の揮散によると考えられる。

20~100℃で重量減少の大きい岩石はゼオライト質岩と珪藻土で3%以上の減量が認められた。100~300℃の加熱による重量減少の大きい岩石はゼオライト質岩, 珪藻土, 凝灰岩で, いずれも5.5%以上の高い減量値を得たが, 他の岩石は1%以下であった。

脱水後, 第一段階の分解が終了する300~600℃, 第二段階の分解が終了する600~1000℃, 1000~1400℃の高温域での減量はFig.11のとおりである。300~600℃で減量の大きい岩石は珪藻土, 流紋岩, 変朽安山岩, 砂岩, ゼオライト質岩, 凝灰岩である。これらの内, 珪藻土, 流紋岩および変朽安山岩は示差熱分析図から分解により減量しているが, 他の3種については低温域から継続した減量によっている。発熱型の分解反応を示した流紋岩と珪藻土は, Table2に示すごとく硫黄分を含有した岩石である。このため発熱は硫黄分の酸化反応による発熱と推定された。1000℃で減量の大きい岩石は石灰岩, 変朽安山岩で, 珪藻土, 流紋岩が1%程度の減量値を示した。また安山岩と玄武岩はわずかに増量する傾向が認められた。1000~1400℃の高温域での減量は, 花崗岩, 砂岩, ゼオライト質岩, 玄武岩が1%以上の減量値を示し, 他の岩石も全て多少減量した。これは主として, 溶融温度より高い温度域でアルカリ成分を揮散したためと推定される。

以上の結果を20~100℃, 100~300℃と300~1400℃の3領域にまとめてFig.18に棒グラフとして示す。300℃までの減量は主に脱水による減量と考えられるが, 減量の著しく大きい岩石はゼオライト質岩, 珪藻土および凝灰岩であり, 他の岩石はいずれも1.5%以下の値を得た。全減量は石灰岩が最も高く3.7%以上に達し, 脱水量の高い岩石と分解型の岩石が高い減量値を得た。減量の少ない岩石は安山岩, 玄武岩, 花崗岩で3%以下であった。示差熱分析法で求めた減量値は1000℃での灼熱減量値(Table2のig. loss欄)と比較して, 高温まで加熱しているため多少高い値を得ているが, 大きな差異はなくほぼ同様の傾向を示した。ところで, 仮りに1m³の岩石が加熱されて1%の水が水蒸気になるとすると, 岩石の比重はおよそ2.7であるから, 2.7tの岩石から1500モルの水が水蒸気になるので, およそ336m³の水蒸気が発生することになる。従って, 処分場の設計に当っては水蒸気の工学的対策が重要な安全対策要因の一つとなる。

Fig.19は示差熱分析結果より得た各岩石の溶融, 分解および転移温度を棒グラフにより示したものである。供試岩石の溶融は, 1450℃までに溶融しなかった珪藻土, 凝灰岩, 石灰岩以外はいずれも1180~1300℃で観察された。また, 分解・転移に関しては, 珪藻土がおよそ200℃と低温で分解した他は480~660℃の温度範囲で生じているが, 花崗岩や石灰岩は分解または転移点までは非常に安定な岩石であることも判明した。

我が国の高レベル放射性廃棄物の地層処分候補地は必ずしも全ての面で理想的な条件で選定できると思われぬ。耐熱性の観点からは高レベル廃棄物を処分したことによって生じる

発熱量を候補地の岩質に相応した分解・転移温度以下に押さえれば良いことになる。従って、処分場の設計に当っては予め岩質を調査し、上昇温度および加熱される岩石量を予想して貯蔵処分する際の工学的な設計を行った上で、発生する水蒸気量、ガス量を推定して工学的な対策を講じれば原則としていかなる岩層でも設置可能である。ただし、水蒸気・ガスの発生による岩層中での透過、膨張作用および水熱作用等は慎重に検討しなければならない。

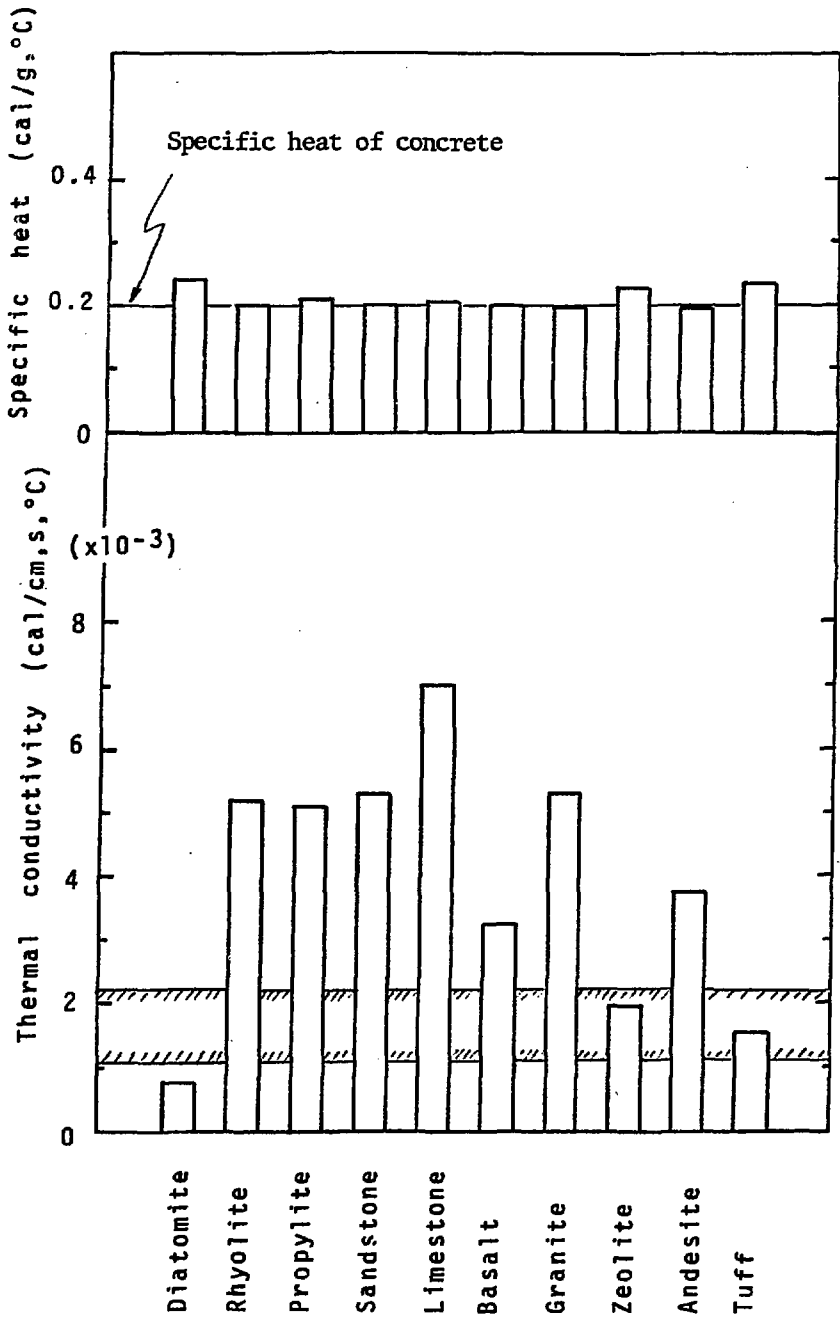


Fig. 1 The thermal conductivity and specific heat of the rocks

Thermal conductivity of concrete

(三菱金属委託)

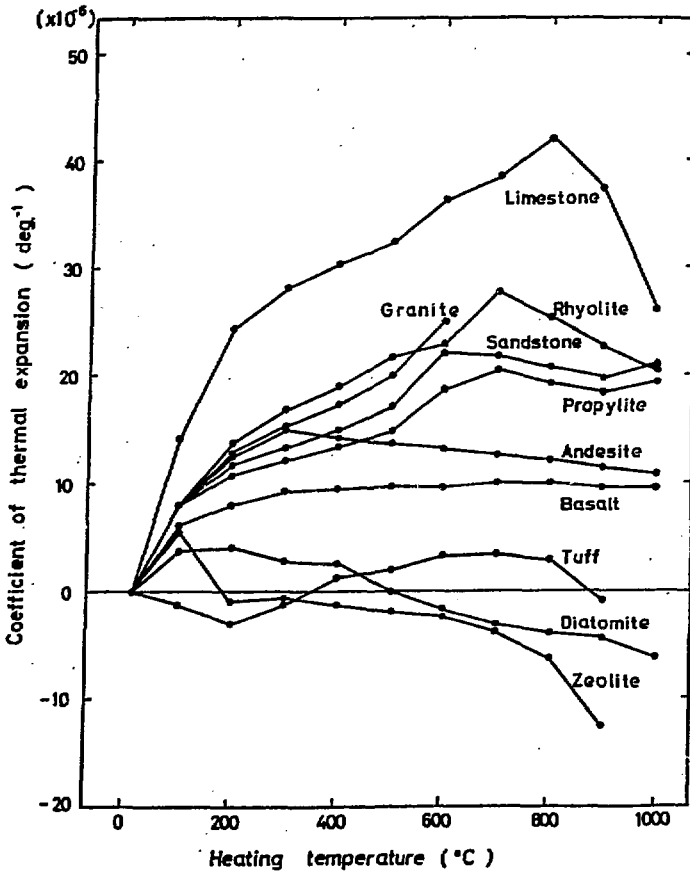


Fig.2 Thermal expansion coefficient of rocks at elevated temperatures

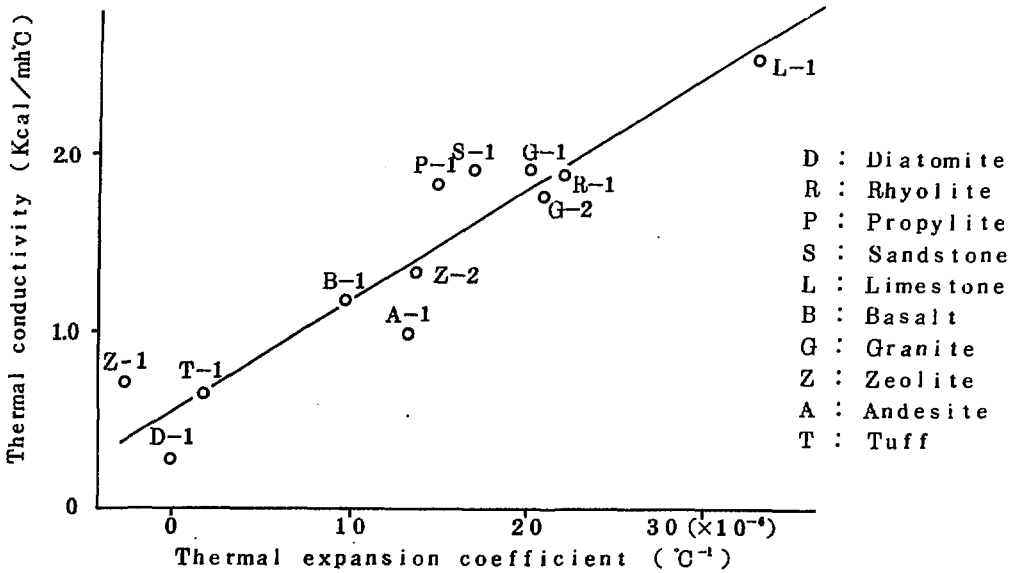


Fig.3 Relationship between Thermal conductivity and Thermal expansion co-efficient.

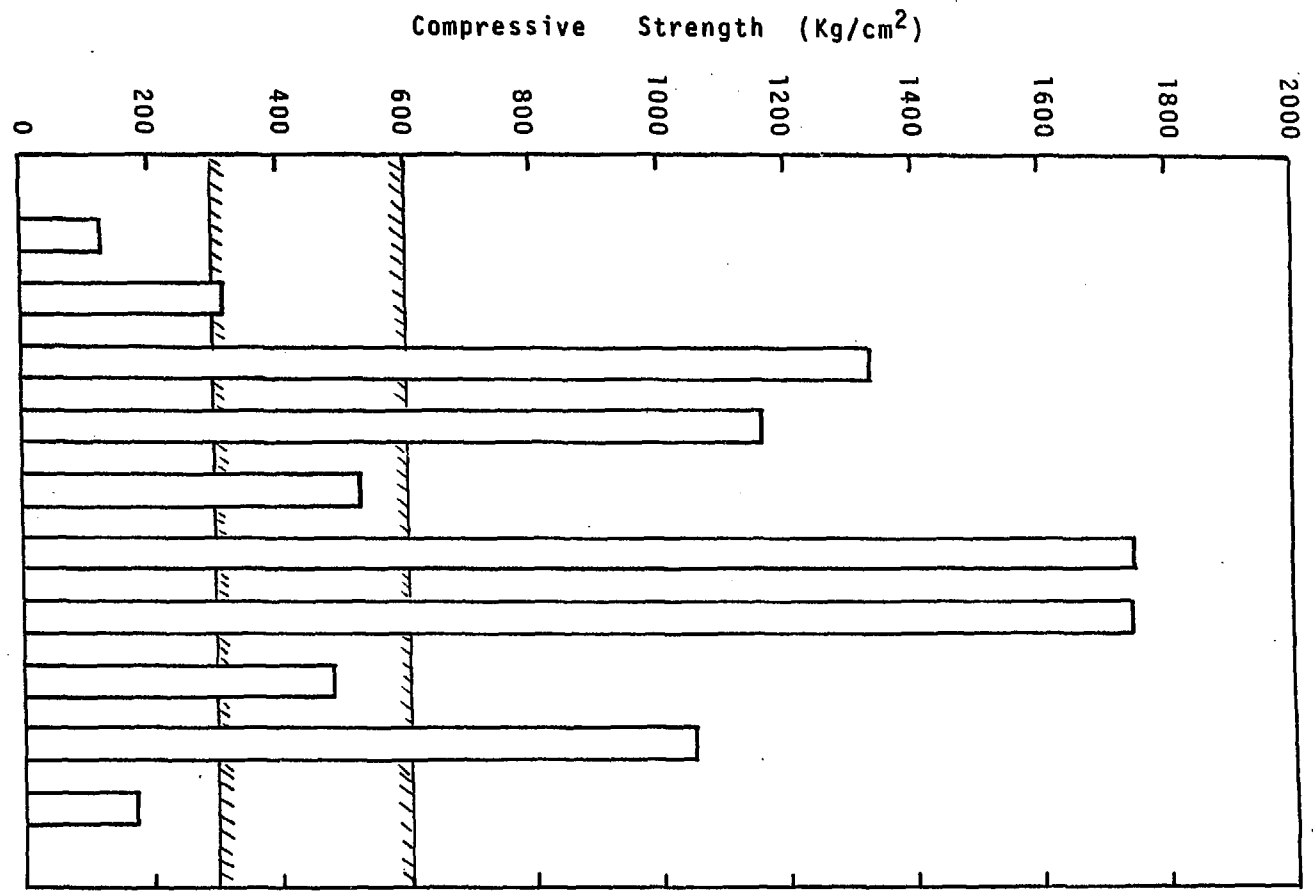


Fig. 4 The uniaxial compressive strength of the rocks
Strength of concrete

Sample : Diatomite

Sample weight	31.04	mg
TG full scale	5	mg
DTA full scale	±50	μV
Derivative sensitivity	0.5	
Heating rate	20	°C/min
Temperature range	20	mV
Chart speed	5	mm/min

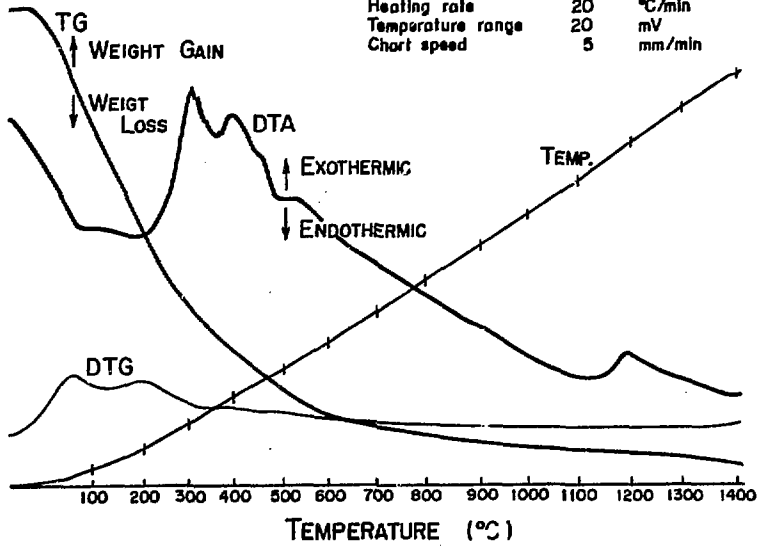


Fig. 5 Differential thermal analysis of diatomite

Sample : Rhyolite

Sample weight	2.99	mg
TG full scale	20	mg
DTA full scale	±100	μV
Derivative sensitivity	0.5	
Heating rate	20	°C/min
Temperature range	20	mV
Chart speed	5	mm/min

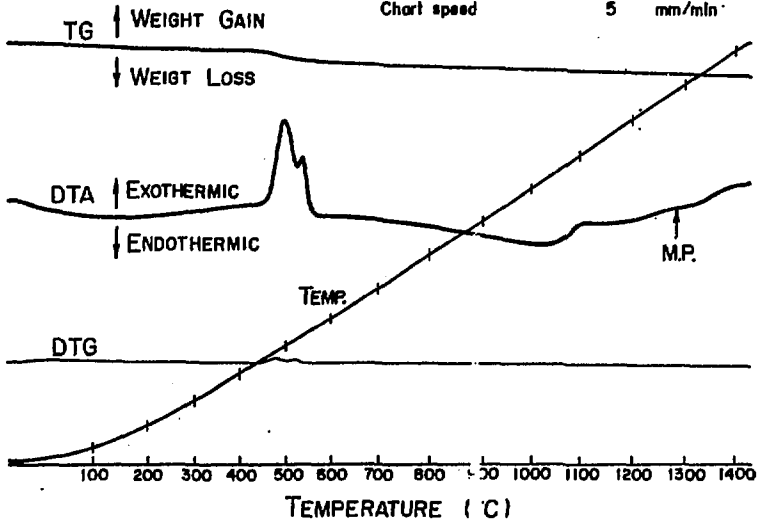


Fig. 6 Differential thermal analysis of rhyolite

Sample : Propylite

Sample weight	24.14	mg
TG full scale	10	mg
DTA full scale	±100	μV
Derivative sensitivity	0.5	
Heating rate	20	°C/min
Temperature range	20	mV
Chart speed	5	mm/min

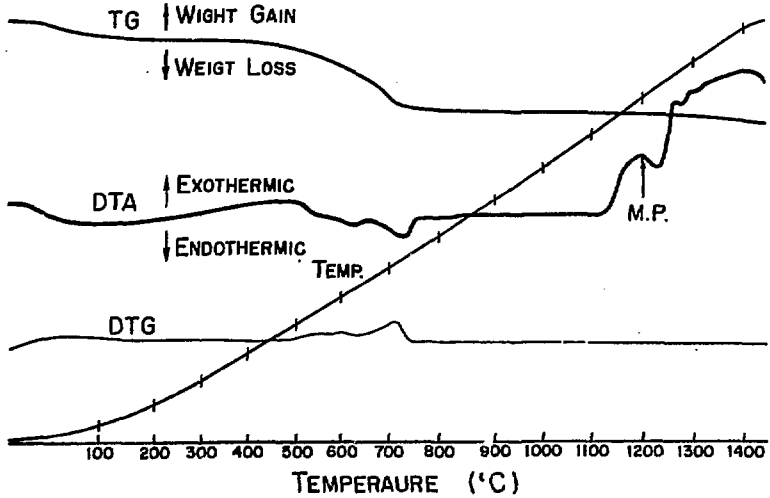


Fig. 7 Differential thermal analysis of propylite

Sample : Sandstone

Sample weight	30.29	mg
TG full scale	5	mg
DTA full scale	±100	μV
Derivative sensitivity	0.5	
Heating rate	20	°C/min
Temperature range	20	mV
Chart speed	5	mm/min

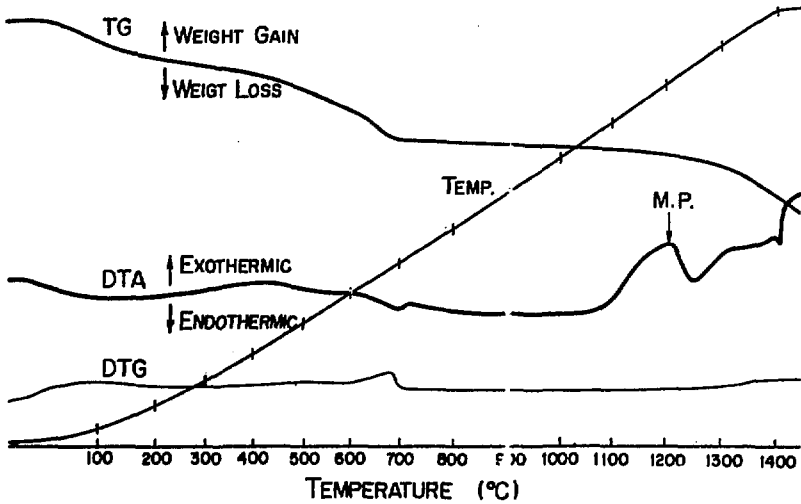


Fig. 8 Differential thermal analysis of sandstone

Sample : Limestone

Sample weight	32.47	mg
TG full scale	20	mg
DTA full scale	±100	μV
Derivative sensitivity	0.5	
Heating rate	20	°C/min
Temperature range	20	mV
Chart speed	5	mm/min

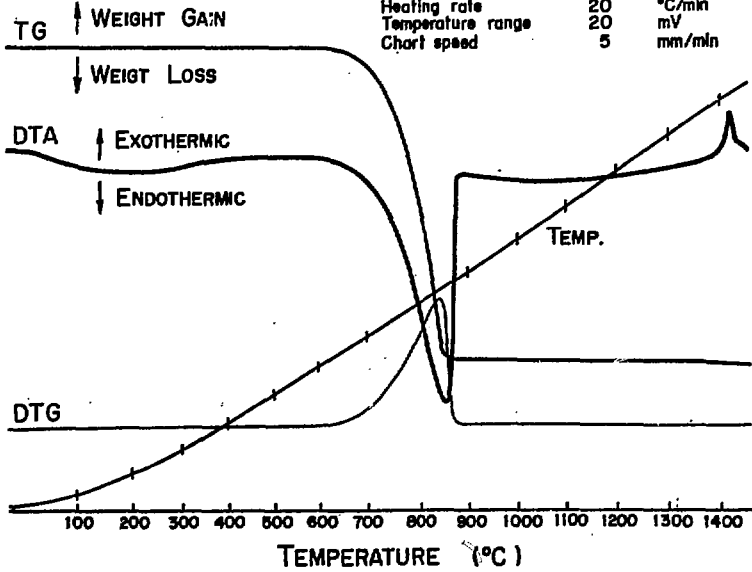


Fig. 9 Differential thermal analysis of limestone

Sample : Basalt

Sample weight	34.25	mg
TG full scale	5	mg
DTA full scale	±100	μV
Derivative sensitivity	0.5	
Heating rate	20	°C/min
Temperature range	20	mV
Chart speed	5	mm/min

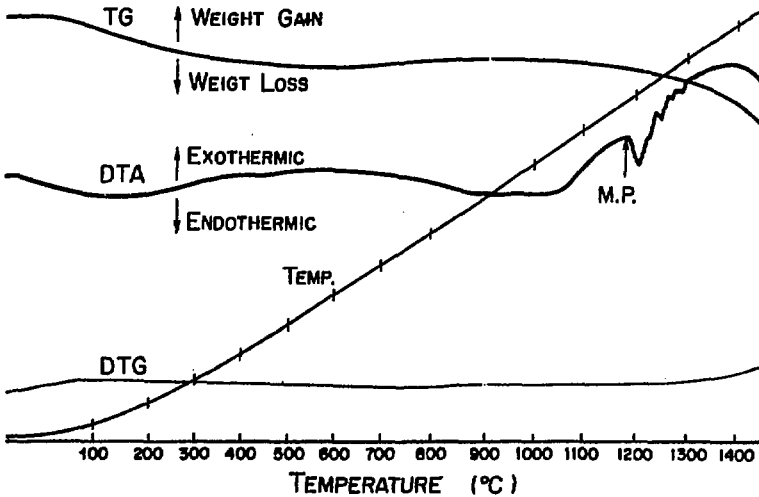


Fig. 10 Differential thermal analysis of basalt

Sample : Granite

Sample weight	31.12	mg
TG full scale	5	mg
DTA full scale	±100	μV
Derivative sensitivity	0.5	
Heating rate	20	°C/min
Temperature range	20	mV
Chart speed	5	mm/min

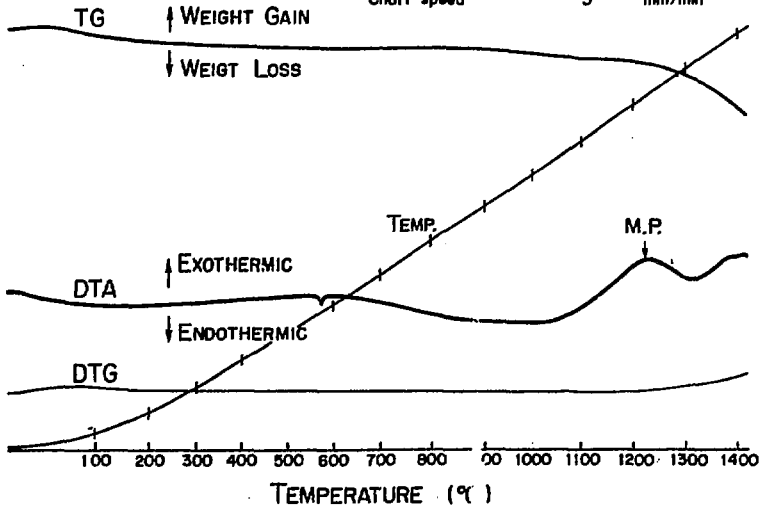


Fig. 11 Differential thermal analysis of granite

Sample : Zeolite

Sample weight	23.75	mg
TG full scale	10	mg
DTA full scale	±50	μV
Derivative sensitivity	0.5	
Heating rate	20	°C/min
Temperature range	20	mV
Chart speed	5	mm/min

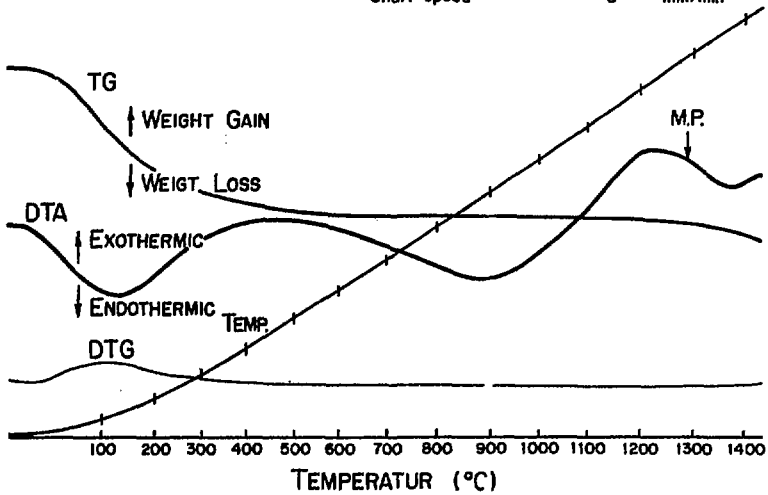


Fig. 12 Differential thermal analysis of zeolite

Sample : Andesite

Sample weight	68.03	mg
TG full scale	5	mg
DTA full scale	±100	μV
Derivative sensitivity	0.5	
Heating rate	20	°C/min
Temperature range	20	mV
Chart speed	5	mm/min

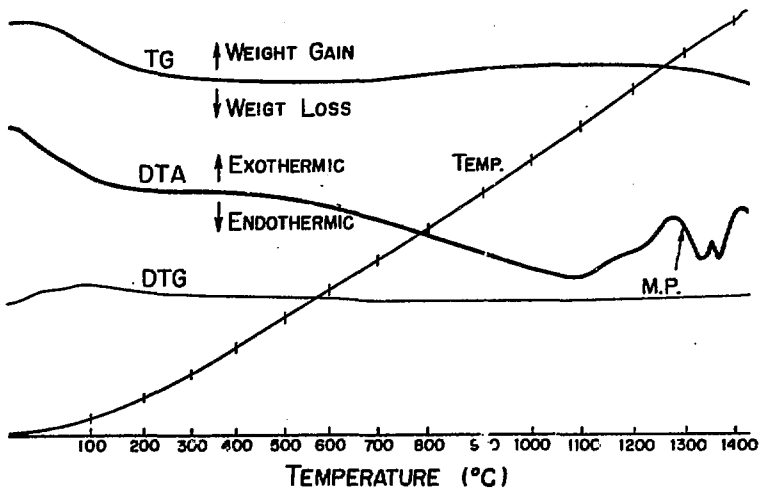


Fig. 13 Differential thermal analysis of andesite

Sample : Tuff

Sample weight	26.68	mg
TG full scale	10	mg
DTA full scale	±100	μV
Derivative sensitivity	0.5	
Heating rate	20	°C/min
Temperature range	20	mV
Chart speed	5	mm/min

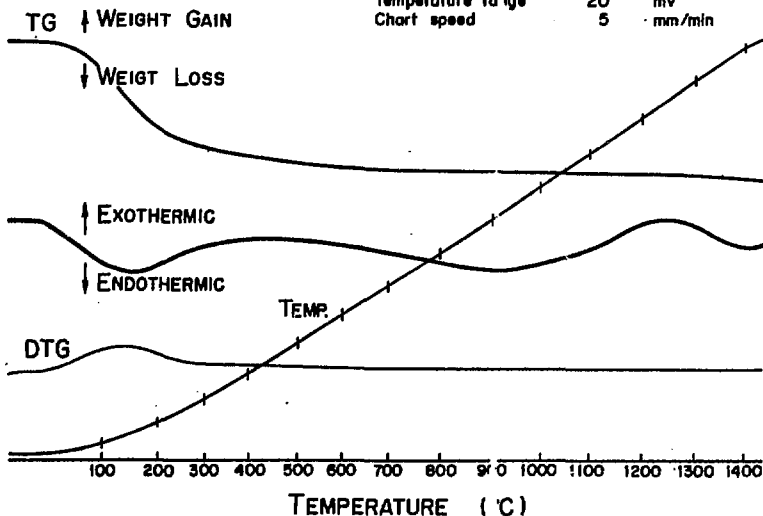


Fig. 14 Differential thermal analysis of tuff

Sample : Cement mortar

Sample weight	32.15	mg
TG full scale	10	mg
DTA full scale	±100	μV
Derivative sensitivity	0.5	
Heating rate	20	°C/min
Temperature range	20	mV
Chart speed	5	mm/min

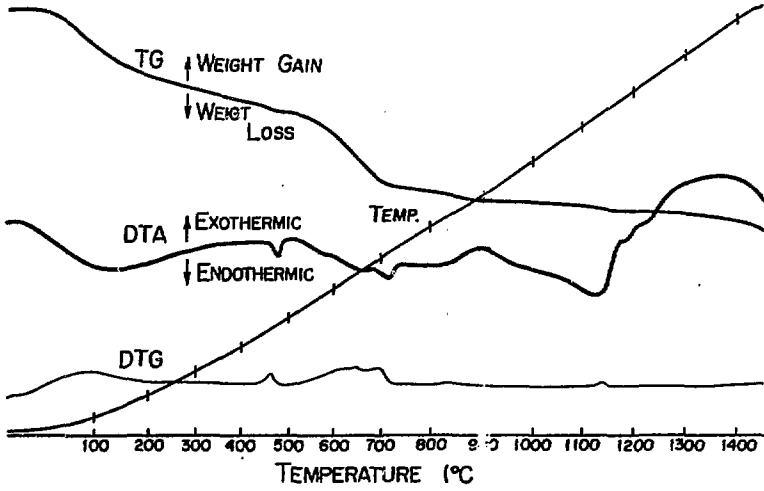


Fig. 15 Differential thermal analysis of cement mortar

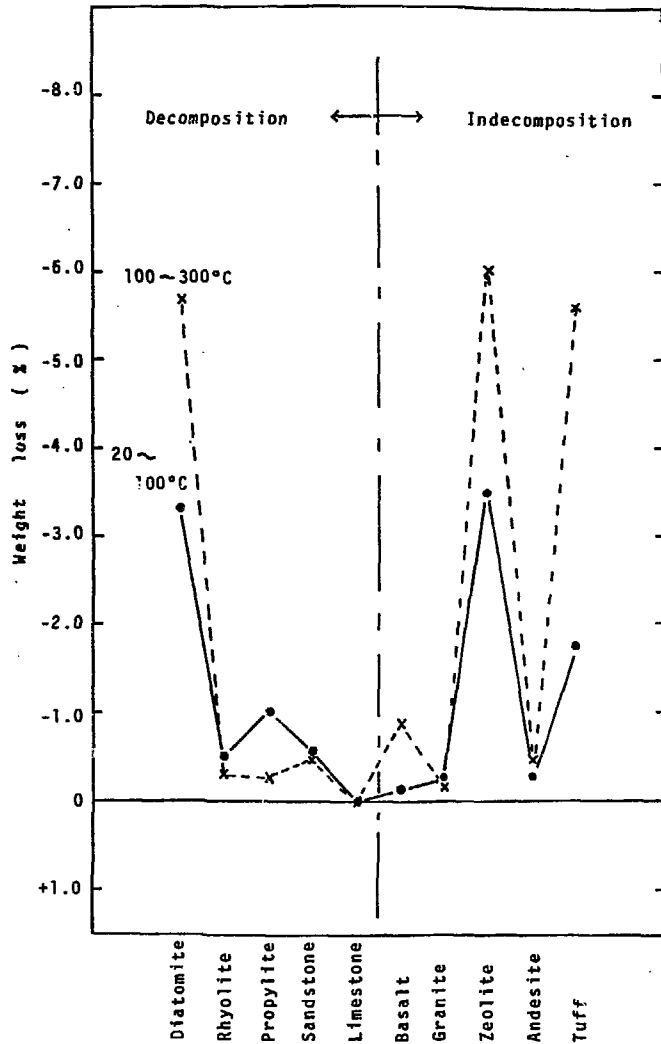


Fig. 16 Variation of weight loss for the rocks at 20 to 100°C and 100 to 300°C

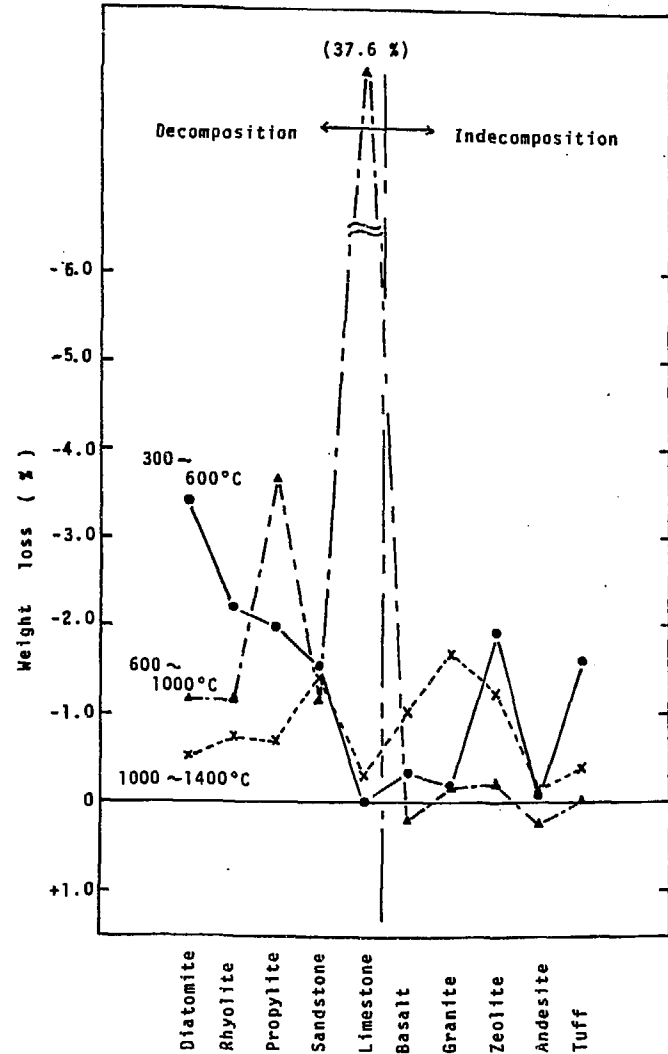


Fig. 17 Variation of weight loss for the rocks at 300 to 600°C, 600 to 1000°C and 1000 to 1400°C

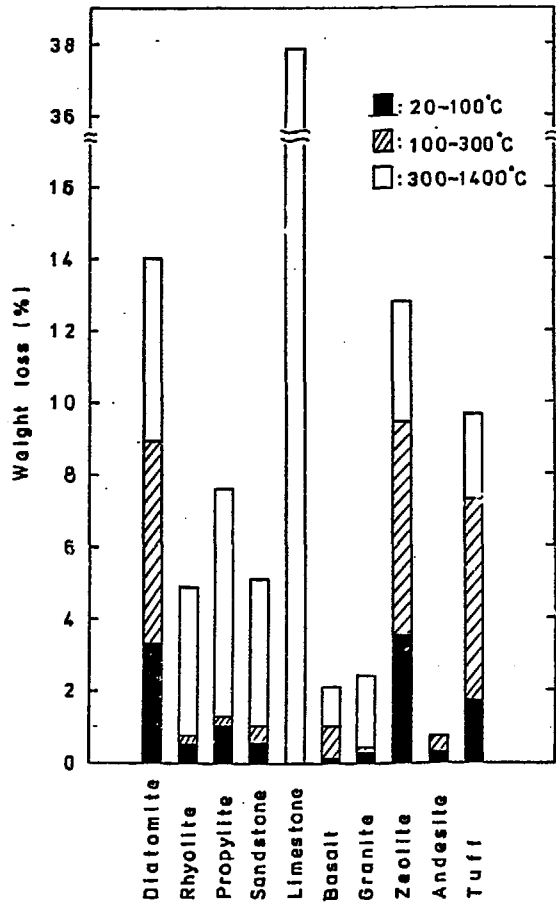


Fig. 18 Variation of weight loss for the rocks at 20 to 100°C, 100 to 300°C and 300 to 1400°C

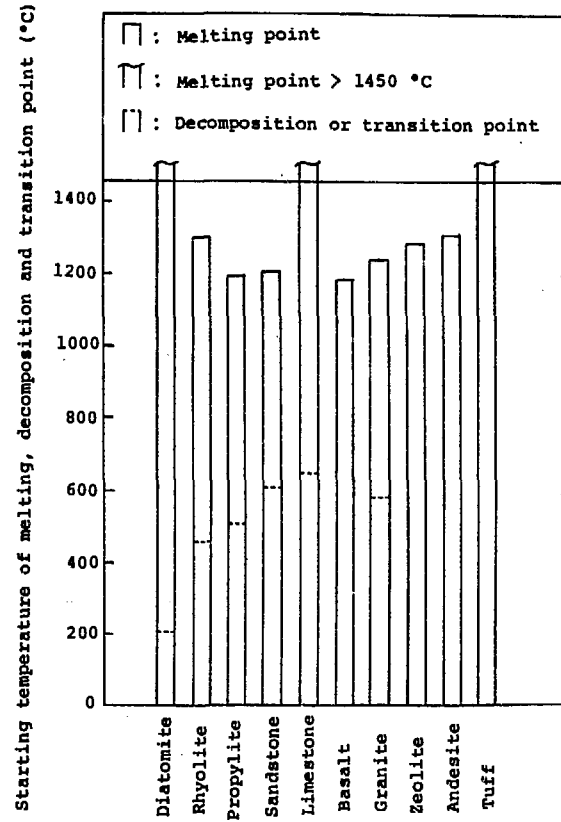


Fig. 19 Starting temperature of melting, decomposition and transition temperature for the rocks

5. ま と め

以上の試験結果をまとめると下記のとおりである。

- (1) 岩石の比熱はほぼ $0.2 \text{ Cal/g} \cdot ^\circ\text{C}$ である。
 - (2) 岩石の熱伝導率 ($\text{Cal/cm} \cdot \text{s} \cdot ^\circ\text{C}$) は下記の順に高い。
石灰岩 (7.1) > 花崗岩, 流紋岩, 変朽安山岩, 砂岩 (5.3 ~ 5.1) > 安山岩, 玄武岩 (3.7 ~ 3.3) > ゼオライト質岩, 凝灰岩, 珪藻土 (2.8 ~ 0.8)
 - (3) 岩石の一軸圧縮強度は珪藻土と凝灰岩以外はセメントコンクリートと同等かそれ以上の強度を有している。特に, 花崗岩と玄武岩は $1,700 \text{ kg/cm}^2$ 以上の高強度値を示した。
 - (4) 熱膨張係数 ($\times 10^{-6}/^\circ\text{C}$) に関しては下記のように分類できる。
 - 1) 分解温度まで膨張し以後収縮: 石灰岩, 流紋岩, 砂岩, 変朽安山岩
 - 2) 転位温度 (573°C) まで膨張し以後崩壊: 花崗岩
 - 3) 300°C 程度まで膨張し以後変化が少ない: 玄武岩, 安山岩
 - 4) 脱水, 分解等により膨張・収縮が少ない: 凝灰岩, 珪藻土, ゼオライト質岩
 - (5) 加熱による岩石の安定性
 - 1) 分解, 転移
 - 分解しなかった岩石: 玄武岩, ゼオライト質岩, 安山岩, 凝灰岩
 - 分解あるいは転移した岩石: 珪藻土, 流紋岩, 変朽安山岩, 砂岩, 石灰岩, 花崗岩
 - 2) 溶融温度
 - 溶融温度 $> 1450^\circ\text{C}$: 珪藻土, 凝灰岩 (石灰岩)
 - 溶融温度 $\approx 1300^\circ\text{C}$: 流紋岩, 安山岩, ゼオライト質岩
 - 溶融温度 $\approx 1200^\circ\text{C}$: 変朽安山岩, 砂岩, 花崗岩, 玄武岩
 - 3) 減量
 - 減量の小さい岩石: 安山岩, 玄武岩, 花崗岩
 - 減量の大きい岩石: 石灰岩, 珪藻土, ゼオライト質岩, 凝灰岩
 - 脱水量の大きい岩石: 珪藻土, ゼオライト質岩, 凝灰岩
- 上記項目をまとめて Table 4 に示す。

Table 4 Comparison of the various rocks

Items		Thermal conductivity	Thermal stability				Thermal expansion coefficient up to 600°C	Uniaxial compressive strength
			Weight loss	Ignition loss at 1000°C	Decomposition, transition temperature	Melting point		
Classification	○	>3 cal/cm·s·°C	<1% loss, up to 1400°C	<1%	>1000°C	>1200°C without decomposition	<1.5×10 ⁻⁵ /cm	>1000kg/cm ²
	△	1~2 cal/cm·s·°C	<1% loss, up to 300°C	1~10%	500~600°C	>1200°C after decomposition	1.5~2.5×10 ⁻⁵ /cm	300~500kg/cm ²
	×	<1 cal/cm·s·°C	6% loss, up to 300°C	>10%	<500°C	<1200°C	>25×10 ⁻⁵ /cm	<200kg/cm ²
Andesite		○	○	○	○	○	○	○
Basalt		○	○	○	○	○	○	○
Granite		○	○	○	△	△	△	○
Rhyolite		○	△	△	×	△	×	△
Propylite		○	△	△	△	△	△	○
Sandstone		○	△	△	△	△	△	○
Limestone		○	△	×	△	△	×	△
Zeolite		△	×	×	○	○	○	△
Tuff		△	×	×	○	○	○	×
Diatomite		×	×	×	×	△	○	×

6. 結 論

高レベル放射性廃棄物固化体を岩体あるいは地層中に埋設するといういわゆる地層処分法は、放射性核種の生物圏からの隔離を岩体あるいは地層が持っている障壁性を、長期間にわたって期待するものである。したがって長期間の障壁性を期待するのであれば、処分岩体あるいは地層の選定に際して、その岩体、地層が過去長期間安定であったということが考慮されるべきである。さらに将来の安定性を期待するには高レベル放射性廃棄物が多量の崩壊熱を発生することを考えると、処分岩体、地層の障壁性がこの熱によって変化しないことが望ましい。

したがって高レベル廃棄物を処分する岩体、地層として適当な岩石を熱的な特性から考えると、廃棄物固化体からの崩壊熱を蓄熱することなく発散させやすく、岩石自体の熱的安定性が高い方がよい。すなわち熱伝導率が大きく、分解温度、熔融温度が高く高温での重量減が少なくガス発生量が少ない岩石で、かつ岩盤の亀裂発生原因になる熱膨張、収縮の小さい岩石が望ましい。又地下施設の建設及びその健全性の面から考えると、岩石強度は常温においても又高温にさらされても大きい岩石の方が望ましい。

均質な岩石試料に基づく熔融開始温度及びその他の熱的特性から考えると、安山岩および玄武岩といった火山岩が比較的高融点で分解もせず、熱伝導率も比較的大きく、熱膨張率は小さいので処分岩体としては好ましいといえる。この観点からのみ、使用限界温度を設定するならば約1000°C位といえる。ただしこれらの岩石は熔岩として火山地域に見られるものであり、処分施設が火山活動の影響を直接あるいは間接的に受ける可能性がある。また一般的に節理がよく発達していることがあり、この節理が水みちになって廃棄物核種が人間環境へ移行してくる可能性があるという問題点がある。

次に深成岩である花崗岩が好ましい熱的特性を持っているが、構成鉱物である石英の573°Cでおこる $\alpha \rightarrow \beta$ 転移に起因する熱膨張率の大きな変化があり、これ以上の温度では岩石が破壊しやすい。産状から考えると、花崗岩は一般に広大な貫入岩体すなわち底盤として産するので処分施設建設用地は見つけやすいという面もある。

その他の火成岩である流紋岩、変朽安山岩は比較的良好な熱的特性を持っているが、約500°Cにおける分解が問題になる可能性がある。

最後に堆積岩である砂岩、石灰岩、セオライト質岩、凝灰岩および珪藻土は、分解がみられ、かつ、加熱減量が大きい、また、熱伝導率が小さい、それに熱膨張率変化が大きいといったような問題があり、一般的に熱的特性は好ましくない。

以上、処分場として岩体、地層を選定する際には、安全評価要因の一つとして岩石の熱的特性、すなわち①岩石からの脱水と分解、②発生ガスの岩体、地層中における挙動、③岩石の分解、転移、熔融、熱膨張量および加熱による岩石の強度低下等の熱的安定性、④高温状態での熱水作用等を、岩石学的に考慮し、さらに地質学的にも考慮することが肝要である。

謝 辞

本研究の遂行に当って、示差熱分析装置はRI事業部利用開発室のものを借用した。富永洋室長代理及び室員の方々に深く感謝致します。また、岩石の化学分析は秩父セメント株式会社中央研究所で実施していただいた。同所須藤儀一研究部長、古谷田武満研究員に厚くお礼申し上げます。

なお、本報告書の一部データは昭和52年度委託調査（三菱金属株式会社）において得られたものである。

引 用 文 献

- 1) IAEA NEA ; MANAGEMENT OF RADIOACTIVE WASTES FROM THE NUCLEAR FUEL CYCLE (1976)
- 2) 原子力委員会 ; “放射性廃棄物対策について” (1976)
- 3) 鈴木 ; 岩盤力学と計測, 内田老鶴園新社 (1973)
- 4) 堀部 ; 日本鉱業会誌, Vol.73, No827, P271 (1957)
- 5) 林 ; 日本鉱業会誌, Vol.79, No906, P1012 (1963)
- 6) 西原, 平松 ; 日本鉱業会誌, Vol.80, No908, P90 (1963)
- 7) 外尾, 高島 ; 日本鉱業会誌, Vol.84, No964, P1071 (1968)
- 8) 山口 ; 日本鉱業会誌, Vol.86, No986, P346 (1970)
- 9) John A Dean ; Lange's Handbook of Chemistry, Twelfth edition, McGAN-HILL Book Company, P9-51, P10-119 (1979)
- 10) 化学工学協会編 ; 化学工学便覧, 丸善, P1330 (1972)
- 11) 吉木 ; 鉱物工学, 技報堂, P227 (1959)
- 12) 坪井 ; 岩石力学 I, 岩波書店, P161 (1951)
- 13) 石崎, 深谷, 他 ; セメント技術年報, Vol.28, P382 (1974)
- 14) 荒木, 須藤, 他 ; セメント技術年報, Vol.31, P316 (1977)
- 15) 日本化学会編 ; 化学便覧, 基礎編 I, 丸善, P84 (1975)

資料：岩石の細孔径分布

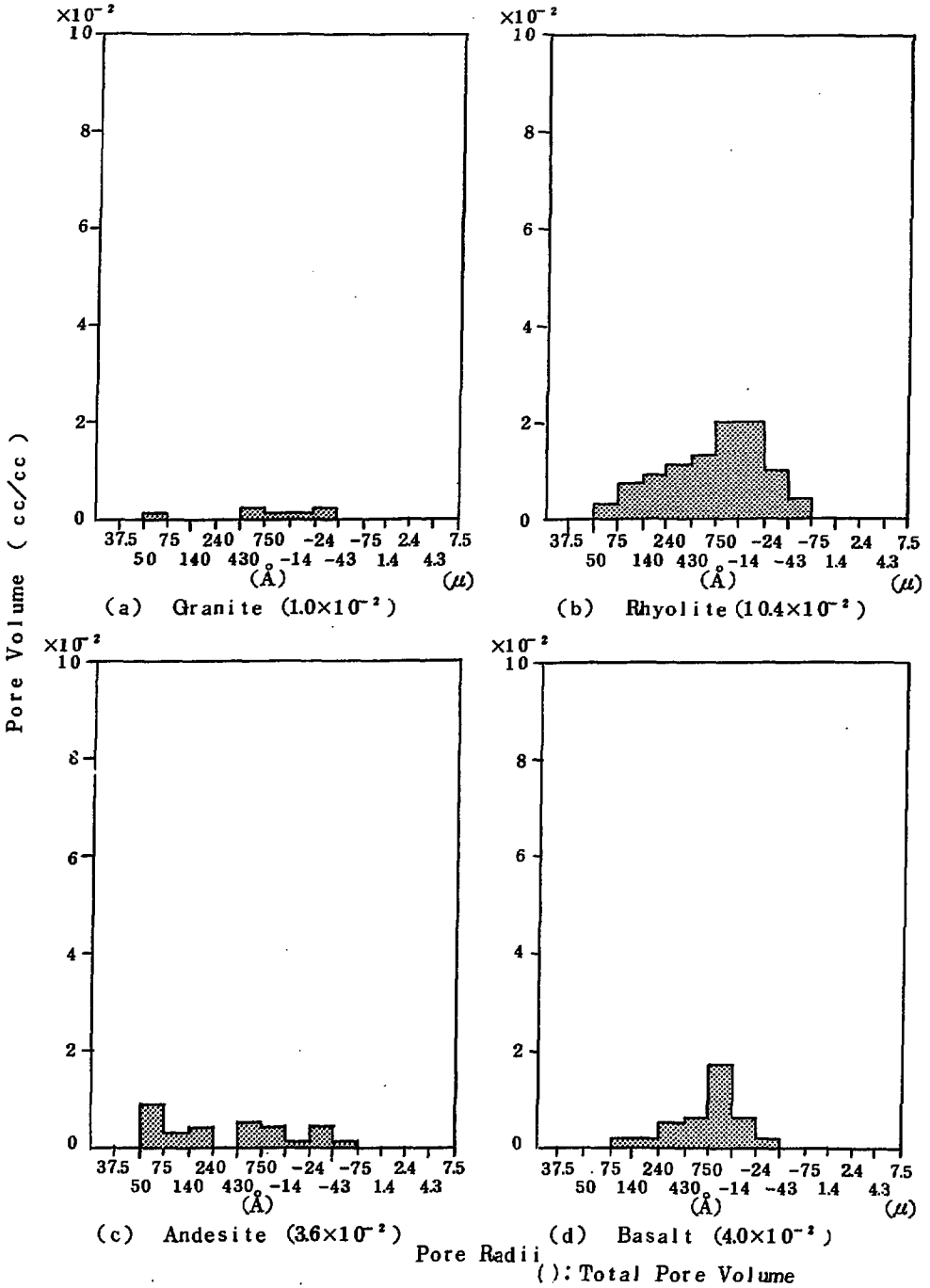
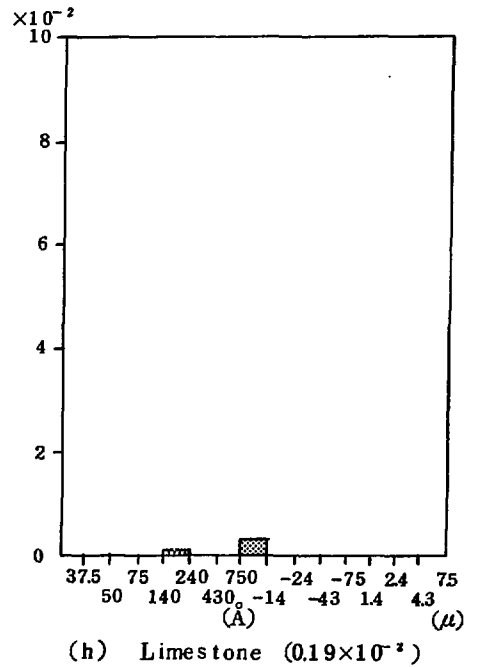
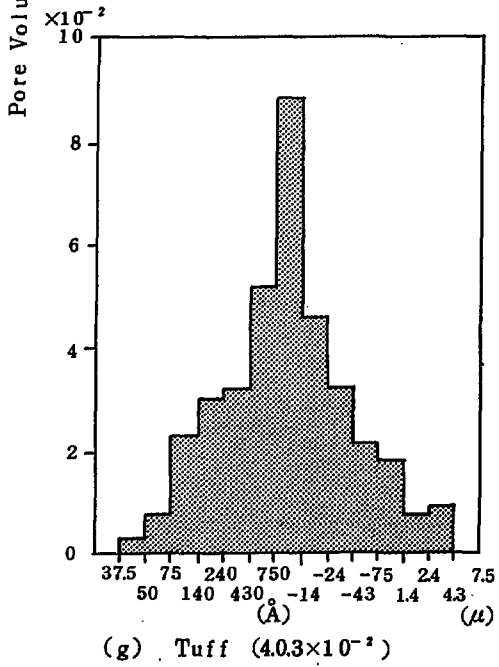
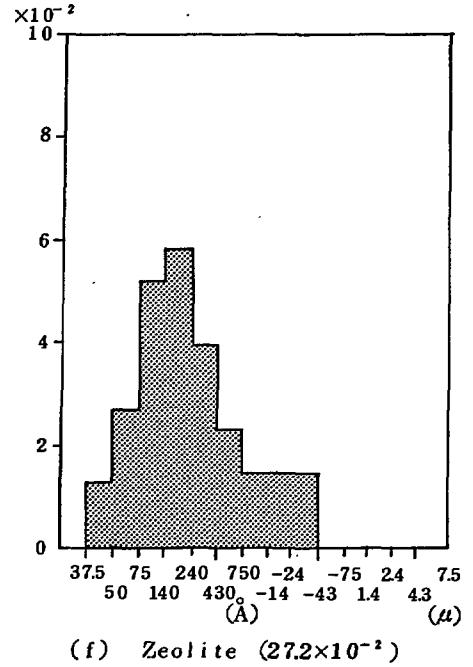
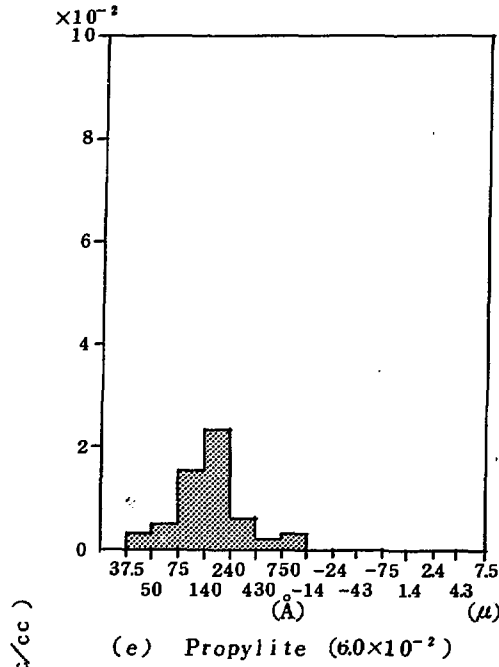
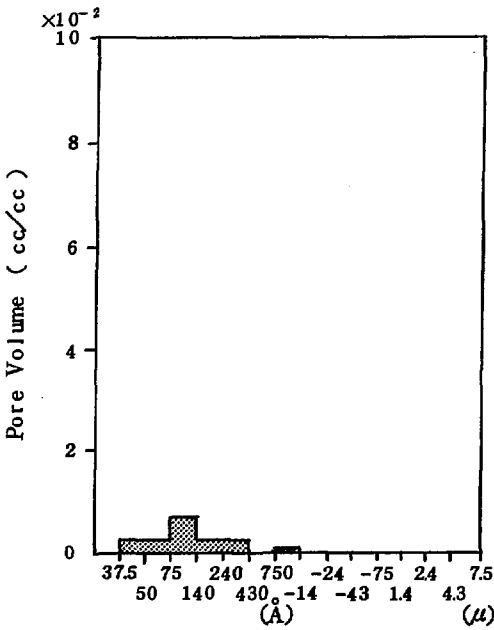


Fig. A1 Pore volume distribution.

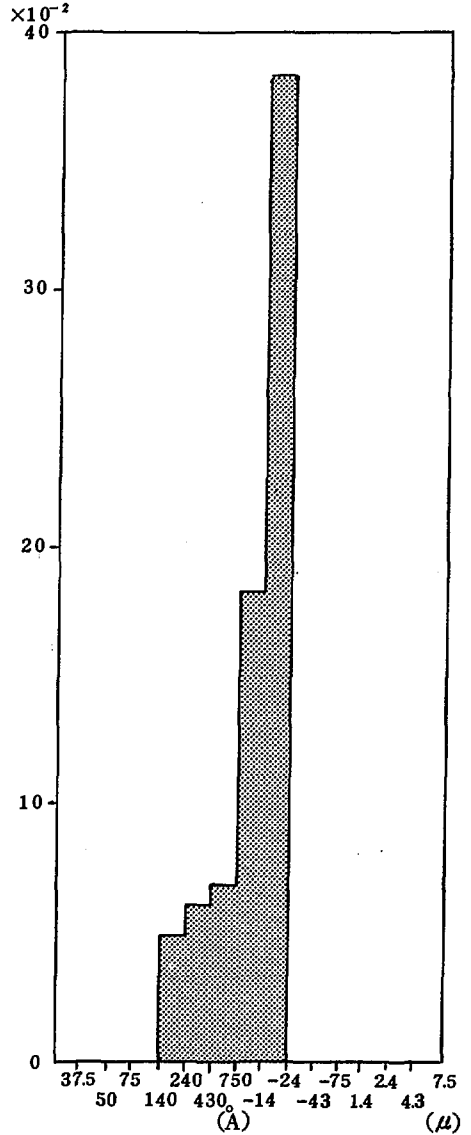


Pore Radii

() : Total Pore Volume



(i) Sandstone (20×10^{-2})



(j) Diatomite (99.2×10^{-2})

Pore Radii

() : Total Pore Volume