

バックエンド部会セッション

「ガラス固化体の実力は？—地層処分におけるガラス固化体性能評価の現状—」

(3) ガラス固化体の実力は？—基礎科学の観点から—

(3) In an aspect of scientific fundamentals

*大窪 貴洋¹¹千葉大院 (工)

1. はじめに

ガラス固化体の長期溶解挙動を精密に予測するためには、ガラス溶解に関連する素反応を明らかにし、溶解挙動に影響を与える化学反応や物質移動をガラス溶解モデルに組み込む必要がある。ガラス溶解に強い影響を与える現象としてガラス表面に生成される表面変質層が知られている。表面変質層は、生成過程やその中の物質移動に関連する現象理解が進んでいないため現行のガラス溶解モデルに組み込まれていない。しかし、基礎科学の進展に伴う分析技術やシミュレーション技法の向上により変質層の化学構造やその中の核種挙動が明らかになりつつある。本報告では、それらの結果について説明する。

2. 変質層の構造解析

実験室レベルで行われるガラス溶解試験の期間で生成するガラス表面の変質層は、マイクロメートルのスケールであり、変質層の生成速度、構造、化学的性質を精密に分析することが難しい。検出感度が高く深さ方向の分析が可能な二次イオン質量分析(SIMS)によってガラス表面に生成した表面変質層の Si、B、Na および H の深さ方向プロファイルを解析した結果が報告されている。また溶液組成やガラス組成、温度等をパラメータとしたガラス溶解試験を行い、SIMS により表面状態を観察することでガラスの溶解特性に影響を与える表面変質層の生成プロセスが観察されている。表面に生じる変質層は、B や Na の溶出したゲル相と B 濃度に勾配のある拡散層の 2 つの層で存在することが認識されている。深さ方向の元素分布に加えて、変質層の化学構造を求めることを目的に分光法による構造解析が行われている。固体 NMR 法は、ガラス表面に生成する変質層の Si や B の化学構造を選択的に検出することが可能で、変質相のシリケート構造は、溶液中に滲出した Si の再結合により架橋が進展することが報告されている。

3. 変質層中の物質移動

水と接触したガラス表面の微小な領域で起こる物質移動を実験的に取得することは難しいが、SIMS から得られる元素の濃度プロファイルから拡散係数を評価する試みがなされている。ガラス表面の変質層は、未変質ガラスから放出される放射性核種のバッファとして働きガラス溶解の保護層として働くと考えられるが、現状では精密な物質移行を予測できるモデルの構築に至っていない。変質層による核種移行の保護的役割を解明することができれば、現行モデルのガラス固化体の寿命をより長く設定した核種移行解析が可能となると考えられる。また実際の処分環境ではガラス固化体は水と接触していることから、変質層と水の界面で起こる素反応を明らかにすることで新しい溶解モデルの進展につながると考えられる。本報告では、変質層中で起こる物質移動の反応を明らかにするために分子動力学計算によるガラス変質層中のシミュレーションを試みたので紹介する (図 1)。

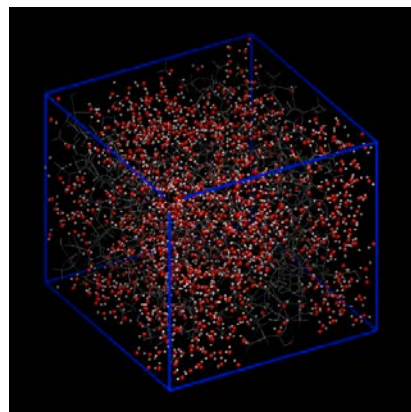


図 1: 変質層の構造。赤白は水分子、灰色はシリケート

* Takahiro Ohkubo¹, ¹ Chiba University