

# ナトリウムケイ酸塩ガラスの化学的耐久性に及ぼすアルミナ添加の影響

Influence of alumina addition on chemical durability of sodium silicate glasses

\*助永壮平<sup>1</sup>, 柴田浩幸<sup>1</sup>, 立花孝洋<sup>2</sup>, 柿原敏明<sup>2</sup>, 福井寿樹<sup>2</sup>

<sup>1</sup>東北大学, <sup>2</sup>株式会社 IHI

ナトリウムケイ酸塩ガラスの耐水性向上のためには、ガラス中ナトリウムイオンの局所構造制御が不可欠である。本研究では、第一段階としてナトリウムケイ酸塩( $\text{Na}_2\text{O-SiO}_2$ 系または $\text{Na}_2\text{O-CaO-SiO}_2$ 系)ガラス中のナトリウムの局所構造に及ぼすアルミナ添加の影響について調査を行った。

**キーワード**：低レベル放射性廃棄物, ナトリウムケイ酸塩ガラス, 化学的耐久性

## 1. 緒言

再処理施設等から排出される低レベル放射性廃棄物の一つとしてナトリウム系廃液が挙げられる。この廃棄物の安定化処理として、酸化物融体中に均一に溶解し、冷却することにより化学的に安定なガラス固化体に変換するプロセスが提案されている。このプロセスで得られるナトリウム含有酸化物ガラスの化学的耐久性(特に耐水性)は、ガラス中のナトリウムイオンの局所構造と相関関係があると推測される。一方で、ガラス中のナトリウムの局所構造について系統的に調査した例は少ない<sup>[1,2,3]</sup>。本研究では、 $\text{Na}_2\text{O-SiO}_2$ 系または $\text{Na}_2\text{O-CaO-SiO}_2$ 系ガラス中のナトリウム局所構造に及ぼすアルミナ添加の影響について調査を行った。

## 2. 実験方法

**2-1. ガラス作製**  $\text{Na}_2\text{O-SiO}_2$ 系( $\text{Na}_2\text{O}$ 濃度: 25 または 33 mol%)および $\text{Na}_2\text{O-CaO-SiO}_2$ 系ガラス( $\text{CaO}$ 濃度: 32 mol%,  $\text{Na}_2\text{O}$ 濃度: 25 または 11 mol%)に $\text{Al}_2\text{O}_3$ を 0, 13 または 20 mol%添加したガラスを熔融法(熔融温度: 1873 K, るつぼ: 白金、熔融回数: 2回)により作製し、NMR測定に用いた。

**2-2. ナトリウム-23( $^{23}\text{Na}$ ) NMR 測定** 作製したガラスをメノウ乳鉢により微粉碎し、得られたガラス粉末を試料とした。直径 3.2mm の $\text{ZrO}_2$ 製の試料管に試料粉末を充填し、静磁場強度 18.8T でナトリウム-23核を対象としたNMR測定を行った。化学シフトの校正用の標準試料として 1 M NaCl 水溶液を用いた。

## 3. 結果および考察

ケイ酸塩ガラス中の $^{23}\text{Na}$  NMR 信号の位置は、主に Na-O 間の距離と相関があることが報告されている<sup>[1,2]</sup>。一般的に Na-O 間の距離が短い場合ほど、信号が高い周波数側に現れる。いずれの $\text{Na}_2\text{O}$ 濃度の系においても $\text{Na}_2\text{O-SiO}_2$ に $\text{Al}_2\text{O}_3$ を添加することにより、 $^{23}\text{Na}$  NMR 信号の位置が低周波数側にシフトすることが明らかになった。これは、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ を添加することにより Na-O 間の距離の大きいサイトが増加することを示すと考えられる。今後、Na-O の距離と溶出挙動との相関関係について、調査を進めたい。

## 4. 結言

ケイ酸塩ガラス中のナトリウムイオンの局所構造について NMR 法により解析することができた。

## 謝辞

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁「平成 27 年度次世代再処理ガラス固化技術基盤研究事業」の成果の一部である。

## 参考文献

[1] Xue and Stebbins: Phys. Chem. Minerals, 20(1993), pp, 297-307. [2] Maekawa et al., Phys. Chem. Minerals, 24(1997), pp. 53-65. [3] Le Losq et al., Geochim. Cosmochim. Acta, 126 (2014), pp.495-517.

\*Sohei Sukenaga<sup>1</sup>, Hiroyuki Shibata<sup>1</sup>, Takahiro Tachibana<sup>2</sup>, Toshiaki Kakihara<sup>2</sup>, Toshiki Fukui<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Tohoku Univ., <sup>2</sup>IHI Corporation.