

ガラス固化体の溶解に及ぼす Mg イオンの影響

Effects of Magnesium ion on Dissolution of Nuclear Waste Glass

*岩田 孟¹, 関根 伸行², 三ツ井 誠一郎¹

¹ 日本原子力研究開発機構, ² NESI

MgCl₂ 溶液及び脱イオン水を用い、90°C, 大気雰囲気下で、模擬ガラス固化体の静的浸出試験を実施した。その結果、脱イオン水条件では溶解速度が経時的に減少する一般的な傾向を示すのに対し、MgCl₂ 溶液条件では、長期（91 日～）の試験期間において溶解速度の増加が観察された。このような MgCl₂ 溶液条件での特異な溶解挙動は、ガラス表面に析出する Mg 含有鉱物種の変化に関係している可能性が考えられる。

キーワード: ガラス固化体, ガラスの溶解・変質, 保護効果, Mg ケイ酸塩, ハイドロタルサイト

1. 緒言 既往の Mg イオン共存下での高 S/V（ガラス表面積/溶液量）条件でのガラス浸出試験（例えば[1]）からは、Mg イオンとの相互作用により、ガラス固化体の溶解が長期的に促進される可能性が示されている。一方、MgCl₂ 溶液を用いた流水条件のガラス溶解試験では、溶解速度が時間とともに低下することが確認されており[2][3]、このうち平野ら[2]は、ガラス表面に析出したハイドロタルサイトが保護膜として機能したことが速度低下の要因と推定している。これらの知見は、Mg の影響がガラスの溶解ステージ[4]によって異なることを示唆する。そのため本研究では、対象となるガラスの溶解ステージが高 S/V 条件と流水条件の中間に位置づけられる低 S/V 条件において、MgCl₂ 溶液（以下、MgW）と脱イオン水（以下、DIW）を用いた静的浸出試験を実施し、溶解挙動を比較した。

2. 実験 模擬廃棄物ガラス（P0797）を使用し、MCC-1 タイプの静的浸出試験を大気雰囲気下で実施した。平板状のガラス（10×10×1 mm）を 4.8 mL の試験溶液（Mg 濃度 1300 mg/L の MgW 又は DIW）に浸漬し、温度 90°C, S/V = 50 m⁻¹ の条件で所定の期間反応させた。試験後に、試験溶液中の元素濃度の分析を行い、ガラス中のホウ素及びナトリウムの重量分率に基づいて算出したガラスの規格化浸出量（以下、NL）を求めるとともに、SEM/EDX 分析及び XRD 分析により、変質層厚の計測及びガラス表面の二次鉱物の同定を行った。

3. 結果・考察 図 1 に各溶液条件におけるホウ素及びナトリウムの NL（NL_B, NL_{Na}）の経時変化を示す。溶解速度（NL 変化の傾き）について、DIW 条件では経時的な減少を示すのに対し、MgW 条件では 91 日以降に大きく増加している。SEM/EDX 分析で測定した各試料表面の変質層の厚さも、図 1 と同様の傾向で増加することが確認された。XRD 分析では、MgW 条件のガラス試料表面にハイドロタルサイト、タルク、サポナイトが検出されており、平野ら[2]の報告を踏まえると、91 日までに観察された低い溶解速度は、この期間ハイドロタルサイトが保護膜として機能した可能性を示唆するが、今後より詳細な検討が必要である。一方、182 日での Si 濃度は MgW 条件で 40 mg/L, DIW 条件で 75 mg/L であり、MgW 条件は DIW 条件の 1/2 程度となった。このことから、MgW 条件で観察された 91 日以降の溶解速度の増加は、Mg ケイ酸塩鉱物の析出により、溶液中の Si が低く維持されたことに起因すると考えることができる。Crovisier らは海水条件での玄武岩質ガラスの浸出試験において、ハイドロタルサイトが長期的には溶解し、サポナイトに変化したことを報告しており[5]、MgW 条件の特異な溶解挙動は、Mg 含有鉱物種の変化に関係していると考えられる。

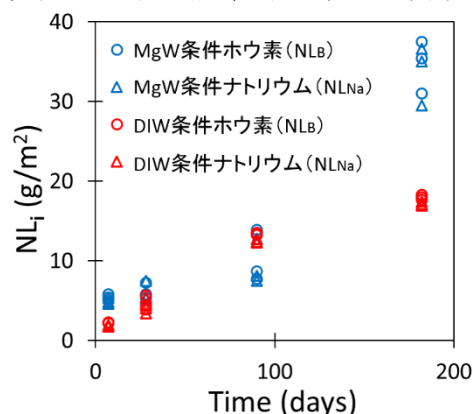


図 1 規格化浸出量の経時変化

参考文献

[1] Maeda et al., Int. J. Corros., 2011, 796457, (2011), [2] 平野ら, 2016 年秋の大会, 3D04, [3] Icenhower et al., ACerS GOMD Annual Meeting 2017, GOMD-S4-024-2017, [4] Gin et al., Mater. Today 16, 243–248 (2013), [5] Crovisier et al., Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 50, 273–280, (1985).

※ 本報告の一部は、経済産業省委託事業「平成 28 年度処分システム評価確証技術開発」の成果である。

*Hajime Iwata¹, Nobuyuki Sekine² and Seiichiro Mitsui¹, ¹Japan Atomic Energy Agency, ²NESI