

炭素鋼片および模擬ガラス片の相互作用がガラス溶解挙動に及ぼす影響

Effect of interaction between carbon steel and simulated glass on glass dissolution behavior

*後藤 考裕¹, 松原 竜太¹, 浜本 貴史¹, 藤崎 淳¹, 三ツ井 誠一郎², 谷口 直樹²

¹原子力発電環境整備機構, ²日本原子力研究開発機構

ガラスの長期溶解モデルに反映することを目的として、炭素鋼片および模擬ガラス片の共存条件で浸漬試験を実施した。浸漬終了後、液相分析および固相分析を実施し、ガラスの規格化浸出速度を算出するとともに、炭素鋼片表面生成固相を同定し、炭素鋼によるガラスの変質への影響について議論した。

キーワード: HLW, ガラス固化体, オーバーパック, ガラス溶解挙動, 鉄ケイ酸塩鉱物

1. 緒言

近年、炭素鋼オーバーパック等のガラス固化体周辺に存在する人工バリア材料との相互作用を含む複数のプロセスがガラス固化体の長期溶解挙動に影響する可能性を示す研究結果が報告されている（例えば de Combarieu ほか[1]）。しかしながら、ガラス固化体の長期溶解挙動の評価に必要なと考えられる知見については、オーバーパック内側の炭素鋼腐食速度およびガラス変質層の保護効果の有無、これらに關係する腐食生成物や鉄ケイ酸塩鉱物の種類（Fe/Si 比）等に不確実性を有している。これまでに実施した感度解析的評価[2]では、鉄—ガラス相互作用に關係するパラメータ（オーバーパック内側の炭素鋼腐食速度など）の設定の違いによって、ガラス固化体の寿命（ガラス固化体が溶けきるのに要する期間）が約 4 千年程度から十万年超の範囲で変化することが示されている。そこで、長期溶解モデルの不確実性低減を目的として、炭素鋼片と模擬ガラス片を共存させた浸漬試験を実施し、ガラスの規格化浸出速度の算出、生成固相の同定等を行った。

2. 試験方法

1 cm×1 cm×0.1 cm の炭素鋼片を支持具の中央に挿入し、さらに炭素鋼片の両側に 1 cm×1 cm×0.1 cm の模擬ガラス（P0797）片を挿入した状態で 10 ml の脱イオン水に浸漬させた（図 1）。試験片間には 0.5 mm の隙間を設け、試験温度は 50℃および 80℃、浸漬期間は 131 日（約 4 カ月）、雰囲気は窒素雰囲気、同一条件繰り返し数（N）は 4 とした。比較のため、炭素鋼片または模擬ガラス片が 1 枚の条件でも実施した。浸漬終了後、pH 測定、ICP-AES による液相分析、および X 線回折法（XRD）ならびに走査型電子顕微鏡（SEM）等による固相分析を実施した。また、ガラスの規格化浸出速度は、液相のホウ素（B）の濃度、ガラス中の B の重量分率に基づいて算出した。

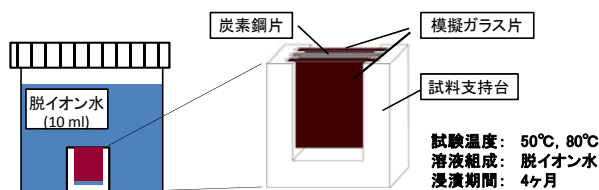


図 1 試験体系および試験条件

3. 試験結果・考察

ガラスの規格化浸出速度（平均値）は、炭素鋼共存条件では 50℃で 2.0×10^{-2} g/m²/d、80℃で 5.6×10^{-2} g/m²/d となった。模擬ガラス片のみの条件では、50℃で 1.1×10^{-2} g/m²/d、80℃で 3.4×10^{-2} g/m²/d が得られており、炭素鋼共存による規格化浸出速度の増加は約 2 倍となった。また、炭素鋼片の表面を XRD で分析したところ、図 2 に示すように、50℃および 80℃のいずれの試料においても磁鉄鉱等の腐食生成物は検出されず、80℃の条件で鉄ケイ酸塩鉱物と推測されるピークが検出された。これは、液相条件での熱力学データに基づく固相の推定結果や炭素鋼共存系での既往研究の結果[3]と一致する。以上の結果は、炭素鋼が鉄ケイ酸塩鉱物の生成を介してガラスの溶解挙動に影響を及ぼすことを示唆するとともに鉄ケイ酸塩鉱物の種類に関する不確実性の低減に寄与すると期待できるが、生成条件や時間依存性を含めて更なる検討が必要である。

参考文献

[1] de Combarieu et al. (2011): Appl. Geochem., 26, pp. 65-79, [2] Goto et al. (2016): MRS Advances 1, pp.4239-4245, [3] Carriere et al. (2017): Corros. Eng. Sci. Technol., 2017, 52, pp.166-172, S1.

*Takahiro Goto¹, Ryuta Matsubara¹, Takafumi Hamamoto¹, Kiyoshi Fujisaki¹, Seiichiro Mitsui² and Naoki Taniguchi²

¹Nuclear Waste Management Organization in Japan (NUMO), ²Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

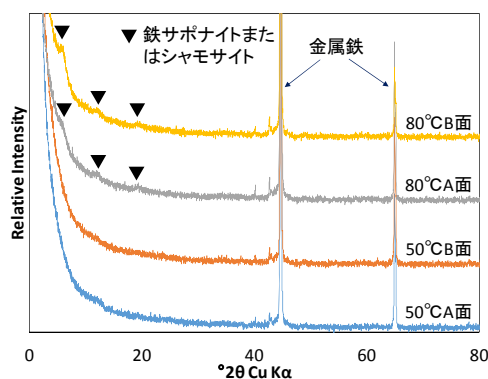


図 2 炭素鋼片表面の XRD 分析結果
（炭素鋼片-模擬ガラス片共存条件）