

Si 同位体を用いた試験によるガラス固化体溶解速度の溶存シリカ濃度依存性評価

Experimental evaluation of HLW glass dissolution rate as a function of dissolved silica concentration by using Si isotopes

*嘉藤 良介¹, 稲垣 八穂広¹, 有馬 立身¹, 出光 一哉¹, 武藤 圭太¹, 澁谷 早苗²

¹九州大学工学研究院, ²NUMO

ガラス固化体の溶解挙動はガラス組成に加え、環境条件（温度, pH, 地下水組成, 反応時間等）によって複雑に変化する。本研究では、国際標準模擬ガラス固化体(ISG)について、反応溶液に Si-29 濃縮シリカ溶液を用いてマイクロチャネル流水試験を行い、ガラス溶解速度の溶存シリカ濃度依存性を測定・評価した。

キーワード：高レベル放射性廃棄物ガラス固化体、溶解速度、Si 同位体、マイクロチャネル流水試験法

1. 緒言

高レベルガラス固化体は処分後数千年経過すると地下水と接触し、溶解・変質により放射性核種をゆつくりと放出することが想定される。ガラスの溶解・変質挙動は様々な環境条件（温度, pH, 地下水組成, 反応時間等）によって複雑に変化するため、その溶解メカニズムにはまだ不明な点が多く、更なる理解が必要である。本研究では、ISG ガラスについてマイクロチャネル流水試験法を用いた液性一定条件での溶解試験を行い、溶存 Si 濃度および pH をパラメータとしてその溶解速度を測定・評価した。

2. 実験

ガラス試料はクーボン状の ISG ガラス、反応溶液は溶存 Si 濃度を調整した Si-29 濃縮シリカ溶液とし、マイクロチャネル流水試験法を用いて液性条件一定でガラス試料と反応溶液を接触させた。溶液 pH は 4, 7, 9 に、溶存 Si 濃度は各 pH における飽和濃度を基に 0 - 120ppm の範囲に設定した。反応後溶液を適時サンプリングし、ガラスから溶出した元素濃度（Si-28）の ICP-MS 測定よりガラス溶解速度を算出した。

3. 結果・まとめ

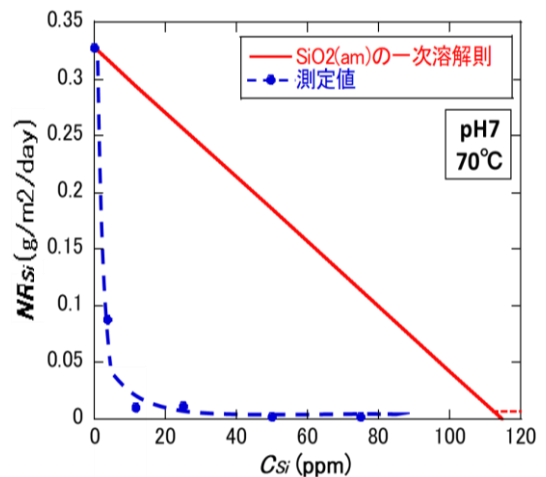
測定結果の一例として pH7 におけるガラス溶解速度（Si 溶解速度）の溶存 Si 濃度依存性を右図に示す。図より pH7 におけるガラス溶解速度は溶存 Si が飽和濃度に達するより前に急激に小さくなることから、現在考えられている SiO₂(am)の一次溶解則を基にした以下の単純な速度式には従わないことが分かった。

$$r \sim r_0(\text{pH}, T)[1 - (C_{\text{Si}}/C_{\text{sat}})] + r_{\text{residual}}$$

r_0 ：初期溶解速度, r_{residual} ：残存溶解速度

C_{Si} ：溶存 Si 濃度, C_{sat} ：飽和 Si 濃度

また、pH4, pH9 いずれの場合もガラス溶解速度は上記の速度式には従わず、加えて pH7 とは異なる溶解挙動を示した。



ガラス溶解速度の溶存シリカ濃度依存性

これらの結果から、ガラス溶解速度は SiO₂(am)の単純な溶解・析出反応に支配されていないことが分かる。ここで、ガラスからの Al の溶解速度が他元素に比べて明らかに小さかったことから、ガラスから溶解した Si の一部がアルミノ珪酸塩として析出し、これがガラス表面層を形成して保護膜となりガラス溶解反応を抑制するメカニズムが推察される。また、形成されるガラス表面層の性状が pH により変化し、ガラス溶解反応抑制効果も変化することが推測される。

*Ryosuke Kato¹, Yaohiro Inagaki¹, Tatsumi Arima¹, Kazuya Idemitsu¹, Keita Muto¹, Sanae Shibutani²

: ¹Kyushu University, ²NUMO