地層処分におけるガラス固化体性能評価の信頼性向上に向けた取り組み
（2）模擬ガラス固化体 P0798 の溶解速度評価：溶存 Si 濃度及び pH の影響

Study for improvement in reliability of performance assessment of vitrified waste in geological disposal
(2) Evaluation of dissolution rate for simulated waste glass P0798
: Effect of solution concentration of Si and pH

*江上 立樹 [1], 稲垣 八穂広 [1], 横山 礼幸 [1], 来海 寿宏 [1], 出光 一哉 [1], 有馬 立身 [1], 松原 竜太 [2]
[1] 九州大学, [2]NUMO

ガラス固化体の溶解挙動は環境条件(溶液組成, pH, 温度, 時間等)によって複雑に変化する。本研究では、ガラス試料として日本の標準模擬ガラス固化体 P0798、反応溶液として Si-29 濃縮シリカ溶液を用い、マイクロチャネル流水試験を実施して、反応溶液の溶存 Si 濃度及び pH がガラス溶解速度に与える影響を評価した。

キーワード： ガラス固化体、溶解速度、溶存 Si 濃度、Si 同位体、マイクロチャネル流水試験

1. 緒言

地層処分の性能評価の信頼向上において、ガラス固化体の溶解速度評価の信頼性向上は重要な因子となる。ガラスの溶解・変質挙動は環境条件によって複雑に変化するため、様々な環境条件におけるガラス溶解挙動の速度論的・体系的な評価が必要である。本研究では日本の標準模擬ガラス固化体 P0798 について液性一定条件での測定が可能なマイクロチャネル流水試験法を用い、反応溶液に Si-29 同位体を用いることで、溶存 Si 濃度と pH をパラメータとしてガラス溶解速度を測定・評価した。

2. 実験

ガラス試料はクーポン状の P0798、反応溶液は Si-29 濃縮シリカによって溶存 Si 濃度を調整した溶液を用い、マイクロチャネル流水試験法により温度 70℃の液性一定条件で溶解試験を行った。溶液 pH は 4, 7, 9 に、溶存 Si 濃度は 0 - 50 ppm 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各元素濃度(Si については Si-28,29)を ICP−MS により測定することでガラス溶解速度を算出した。

3. 結果

各 pH におけるガラス溶解速度(Si 規格化溶解速度 NR_{Si})の溶存 Si 濃度依存性を右図に示す。図より pH7,9 では溶存 Si 濃度増加に伴ってガラス溶解速度が低下するのに対し、pH4 では逆にガラス溶解速度が上昇する挙動を示した。これは、ガラス溶解速度が、溶存 Si 濃度とともに低下する化学親和力だけではなく、ガラス表面に形成される変質層の形成過程に支配される可能性を示唆している。pH4 では反応後溶液中の Si-29 濃度が反応前に比べ僅かに低下した事から、Si を消費する表面変質層の形成過程がガラス溶解速度を支配する可能性が示唆される。一方、pH7,9 の場合も Si を消費する表面変質層が生成すると考えられるが、その生成速度は遅く、また、表面変質層が物質移行を抑制する保護膜としての機能を発現する事でガラス溶解速度が低下する可能性が考えられる。pH は表面変質層の種類・特性・形成過程に影響を及ぼし、ガラス溶解機構及び溶解速度に大きな影響を及ぼす因子であると考えられる。

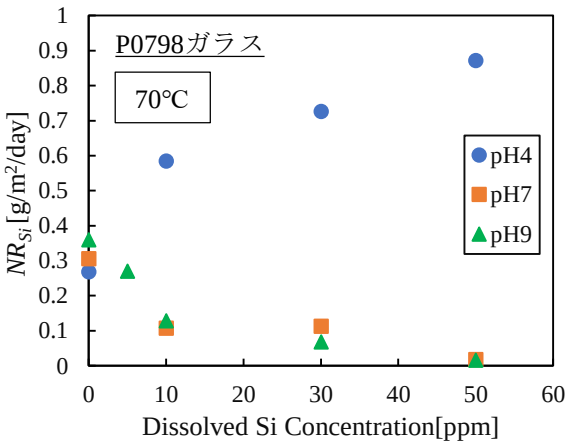

図　ガラス溶解速度の溶存 Si 濃度依存性

*Ritsuki Egami[1], Yaohiro Inagaki[1], Noriyuki Yokoyama[1], Kimachi Toshihiro[1], Tatsumi Arima[1], Kazuya Idemitsu[1], Ryuta Matsubara[2] :[1]Kyushu University, [2]NUMO