



高レベル放射性廃棄物の
地層処分研究開発特号

地層処分研究

2. 性能評価研究

2-2 ニアフィールド研究

(3) ガラス固化体からの核種溶解に関する研究

東海事業所 環境技術開発部
環境技術開発推進本部

資料番号：85-7

Research on Geological Disposal

2. Performance Assessment

2-2 Near-Field Study

(3) Study on Leaching Behavior of Radioactive Nuclide
from Waste Glass

(Waste Technology Development Division, Tokai Works,
Radioactive Waste Management Project)

ガラス固化体からの核種の溶解挙動と難溶性元素の溶解度は、核種の放出率を評価する上で基礎となるものである。ここでは、ガラス固化体の浸出試験、ナチュラアナログ研究およびアクチニド元素の溶解度測定についてこれまでに得られている知見を紹介する。

1. はじめに

ガラス固化体からの核種放出率を決定する機構として、ガラスマトリクスの不可逆的な溶解反応とガラス表面層における水和物や析出物の可逆的な溶解反応が考えられる。浸出成分によって溶解機構の異なる可能性があり、これは浸出条件によっても左右されると考えられる。よって、ガラス固化体の長期浸出挙動を評価するためには、処分環境を模擬した条件下で浸出挙動に関する従来の知見の整理やデータの取得と現象のモデル化等を行う必要がある。また、難溶性元素については、ガラス表面における溶解度が、ガラス固化体からの核種の放出率を決定する重要なパラメータとなる。

2. ガラス固化体の長期的性能に関する検討

本項では、ガラス固化体の地層処分環境下における長期的性能について、動燃事業団の研究を中心に関連する従来の知見を整理するとともに、それを用いてガラス固化体の長期的挙動と核種の閉じ込め性に関する予備的な評価を行った。

現在進めているより詳細なモデルの開発や試験研究にそれらの概念の基礎となる情報を提供するという観点から動燃事業団がこれまでに取得してきたガラス固化体の基礎的な浸出データのうち、特に地層

処分環境下での評価に関連があると思われる実験データを諸外国の研究結果との比較を交えながら整理し、固化体の長期的な性能について、簡便なモデルを用いて固化体の長期挙動に関する予備的な評価を行ったのでその結果を示す。

また、簡便なモデルに基づいた予備的な確認試験として、人工バリア材を含めた複合系でのガラス固化体浸出試験を実施したので併せてその概要についても示す。

本検討に供した動燃事業団の実験項目は、温度、浸出液pH等による影響を考慮したもので、ガラス固化体の基礎的な化学的耐久性を評価するためにやってきたもの¹⁾を中心とした。

(1) ガラス固化体の浸出機構に関する知見の整理

弱酸性から弱アルカリ性溶液 (pH 4-11) における廃棄物ガラスの浸出機構を、諸外国や従来行ってきた浸出機構に関する研究成果に基づき整理すると、以下のようにまとめられる。

- ① ガラスの網目構造を構成する SiO_2 、 B_2O_3 、 Al_2O_3 等が、水和反応を経て溶液中に溶解する。
- ② 網目の空隙に配位していた修飾元素が、①によって浸出した水と反応 (イオン交換や水和) する。このとき、アルカリ金属元素は H_3O^+ と

のイオン交換により溶脱し、水への溶解度も大きいので容易に溶液中に溶解する。一方、Fe、Zn、希土類元素、アクチニド元素等は水への溶解度が著しく小さいため、水和反応は進行するが、液相中にはごくわずかしき溶出せず、ガラス表面に大部分が残存する。

- ③ ①および②の反応の進行に伴い、ガラス表面には溶け残ったガラス成分 (Si、Fe、Zn、希土類、アクチニド元素等) の水和層からなる変質層が形成される。

ガラス固化体の溶解プロセスは、この変質層とガラス母相との界面で各成分の水和やイオン交換による溶出が進行し、変質層の先端でそれらの液相への溶解が進む。図1にこれらの反応を模式的に示した。

上記①の反応は、ガラス構造の骨格をなす SiO_2 (非品質) の水への溶解度によって制限される。また、②の反応のうち溶解度の比較的大きいアルカリ金属元素等の溶解は、遅い反応である①同様、 SiO_2 の水への溶解に支配される。

一方、 SiO_2 (非品質) よりも十分に溶解度が小さい希土類元素やアクチニド元素等は、それぞれの溶解度によって溶出が制限される。

ガラス固化体中の SiO_2 の溶解は、



による一次反応をガラス母相の溶解または変質 (水和) の律速過程として溶解速度がモデル化されている^{2),3)}。このとき、ガラス固化体の溶解・変質速度は次式で与えられる。

$$J_G = K_+ (1 - C_{\text{Si}}/C_{\text{Si}}^*) \quad \text{.....(2)}$$

ここで、 K_+ : 反応定数 (forward reaction rate)

C_{Si} : 溶液中のSi成分濃度

C_{Si}^* : 溶液中のSi成分の溶解度

$C_{\text{Si}} = C_{\text{Si}}^*$ のとき $J_G = 0$ となるので、ガラス固化体の溶解は止まるはずであるが、(2)の反応は不可逆反応なので実際には $J_G = 0$ とはならず、ガラス固化体の

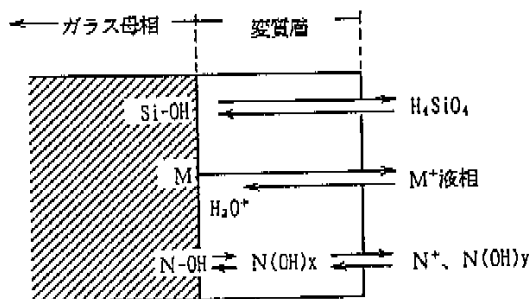


図1 ガラス固化体の水への溶解プロセスの模式図

水和は進行するものと考えられている。そこで、

$$J_G = K_+ (1 - C_{\text{Si}}/C_{\text{Si}}^*) + K_r \quad \text{.....(3)}$$

として K_r (residual reaction rate) によって SiO_2 の溶解が溶解度に達した後のガラス固化体の水和速度を表わす^{4),5),7)}。固化体の水和に伴って放出される成分は、 K_r によってその浸出速度が決まる。 K_r は SiO_2 の溶出が溶解度に達した以降の可溶性成分 (Li、Na、Mo、B) の溶出速度から求められた例⁴⁾があるが、実際には人工バリア中の物質移動が K_r に関与することも考えられるので、 K_r の正確な評価は今後の課題と考えられる。

- (2) ガラス固化体の長期的性能の浸出試験データに基づく試算

動燃事業団や諸外国の研究機関が行ったガラス固化体の浸出データをもとに、その処分条件下における長期的性能を簡単なモデルを用いて評価した¹⁾。

ここでの評価の目的は、システムの安全性を評価することではなく、ある条件設定のもとでのガラス固化体性能を検討すること、すなわち、ガラス固化体の浸出データから固化体の長期性能を分析することである。

評価において、用いた基本的条件は、以下のとおりである。

- ・人工バリアシステムの構成は、ガラス固化体/キャニスタ/オーバーバック/緩衝材 (圧縮ベトナイト) とするが、評価上はキャニスタ/オーバーバックとそれらの腐食生成物の化学的効果は無視して考える。ただし、処分後1,000年間は、地下水と固化体との接触は妨げられるものとする。

- ・緩衝材中の物質移行は、分子拡散のみによるものとし、地下水の移流による効果はないものとする。

- ・緩衝材外側の地下水流速は、十分に速い場合を想定して、緩衝材中の拡散評価に係わる外側の濃度 C は $C = 0$ とする。

- ・核種の崩壊およびその連鎖は考慮しない。

- ・ガラス固化体の変質・溶解速度は固化体中の SiO_2 の溶解に支配され、各成分の組成比に応じた溶解または変質が起こるものとする。

① モデルおよびデータ

浸出率律速におけるガラス固化体の溶解・変質割合を評価するために、表面積の経時変化が考慮できるよう固化体の形状を球形近似する。このとき、固化体重量 (W) と表面積 (S) を等価とすると、半径 R_0 の n 個の球が得られる。表面積としては、ガラス固化体の幾何学的表面積 (S) およびその10倍の表面積の2ケースで検討し

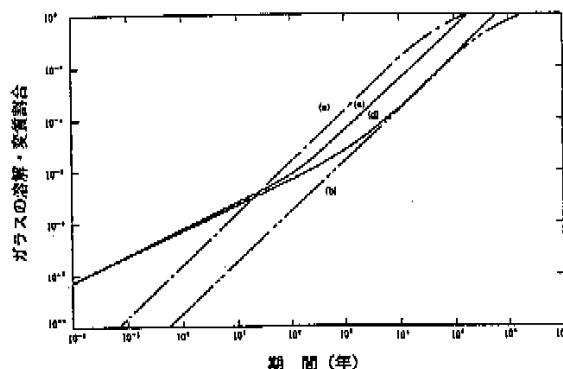


図2 ガラス固化体の累積的な溶解・変質割合の時間変化

- (a): 浸出率律速 (R_0 2.65 cm) (b): 浸出率律速 (R_0 26.5 cm)
 (c): SiO_2 溶解度・拡散支配 (緩衝材厚さ 0.3 m)
 (d): SiO_2 溶解度・拡散支配 (緩衝材厚さ 1 m)

た。なお、ガラス固化体の重量および形状等のパラメータはCOGEMA仕様⁴⁾のものを用いた。

球形ガラスの浸出速度の解析的な評価は、Hartley⁶⁾が実施しており、今回の評価もそれに習って実施した。

② 評価結果

図2にガラス固化体の累積的な溶解・変質量の時間変化を、ガラス全量に対する割合として示した。図2中(a)、(b)は球形近似したガラス固化体の反応に相当するが、(a)はガラス固化体一体当たりの幾何学的表面積の10倍の表面積、(b)では幾何学的表面積と等価な表面積を仮定している。また、ガラスの平均的な溶解・変質速度としては、 $10^{-3} \text{ g/m}^2 \cdot \text{d}$ の値を用いている¹⁾。図2中(c)、(d)は SiO_2 の溶解度律速に基づくもので、緩衝材の厚みの設定が(c)、(d)それぞれ0.3 m、1 mの場合に対応している。ガラス固化体は 10^5 年から 10^6 年かけて地下水と緩慢に反応することがこの図2から推定される。このような傾向は、Hartley⁶⁾やWerme⁴⁾の評価結果ともほぼ一致している。

(3) ガラス固化体-圧縮ベントナイト複合系浸出試験

一次溶解反応とPHREEQE、RELEASEにより、実ガラス固化体から圧縮ベントナイトへの核種の移行を浸出、拡散、収着データから説明するために実施した。試験条件を表1に、試験方法を図3に示す。

試験後、切断したベントナイト片を硝酸溶液に入れ、室温で1週間浸漬させ、ベントナイト中の核種を洗い出した。洗浄液を限外ろ過フィルタ(分面分

表1 ガラス固化体-圧縮ベントナイト複合系浸出試験条件

ガラス試料	実高レベルガラス固化体
試料形状	$\phi 19.7 \text{ mm} \times 2.6 \text{ mm}$ (約50GBq/g)
ベントナイト	クニピアF(Na-モンモリロナイト95wt.%以上)
密度	1.0g/cm ³
試験期間	165日
試験温度	90°C
試験容器	拡散試験用カラム

子量10000)でろ過し、ろ液中の核種の濃度を測定した。分析値から、単位ベントナイト(間隙水を含む)体積当たりの核種の濃度を求め、核種のベントナイトに対する分配係数から間隙水中における核種の濃度を算出した。

解析は、圧縮ベントナイト間隙水組成をPHREEQEにより算出し、その組成における各元素の溶解度を再びPHREEQEにより算出した。次に、圧縮ベントナイト間隙水中の核種の濃度分布をRELEASEにより算出した。以上の計算値を試験による実測値と比較した。比較した結果を図4に示す。CsおよびPuについては、計算値と実験値は、ほぼ一致した。Amについては、計算値のほうが実測値よりも1~2桁高い結果となったが、濃度プロファイルの傾きを比べると計算値と実測値は同じ傾向であった。

(4) まとめ

① ガラス固化体の浸出挙動に関する実験的知見の整理

- ガラス固化体の浸出は、固化体中の SiO_2 の溶液によって律速されるというモデル(一次反応モデル)が有力である。このとき、アルカリ金属元素、Mo等の易溶性の成分の溶出は、 SiO_2 の溶解速度に支配され、希土類元素、アクチニ

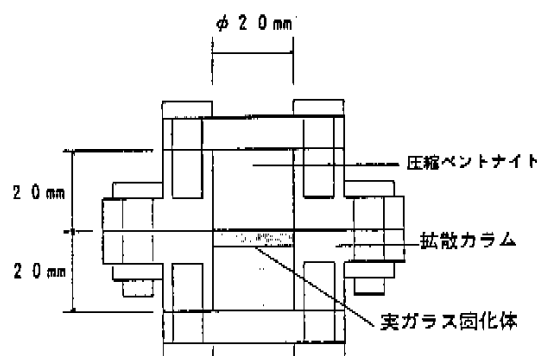


図3 ガラス固化体-圧縮ベントナイト複合系浸出試験の概略図

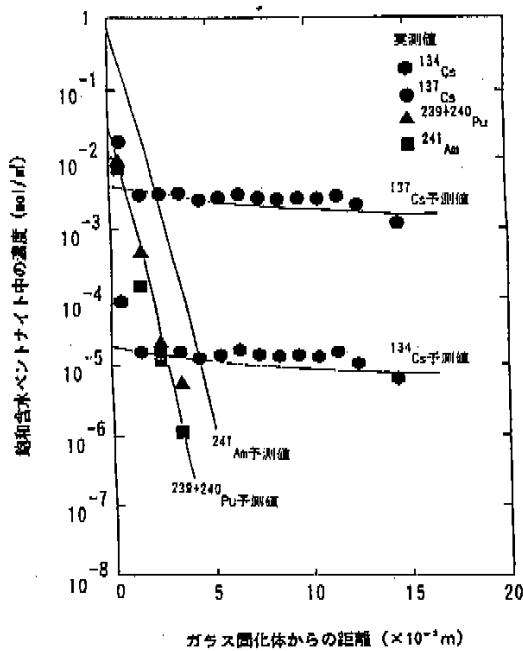


図4 ガラス固化体-圧縮ペントナイト複合系浸出試験結果およびRELEASEによる予測値の比較

ド元素等の溶解度の低い成分はそれぞれの溶解度によって溶解が進行・制限されるものと考えられている。

- 溶液中の SiO_2 濃度が飽和に達しても、ガラス固化体の水和反応は進行するので、そのとき溶解度に達していない成分の溶出は続行するものと考えられている。そのときの固化体の溶解・変質速度 K_r は、静的浸出試験より求められた例があり、 $10^{-3} \text{ g/m}^2 \cdot \text{d}$ のオーダーの値が得られているが、さらに正確な評価が必要である。

② ガラス固化体の長期的性能の検討

- 緩衝材中のガラス固化体は、比較的早期に SiO_2 の溶出が飽和に達し、それ以降の固化体の溶解・変質速度は、緩衝材中のSi成分の拡散あるいは長期的なガラスの変質速度(K_r)によって支配されるものと推定される。
- 実験データをもとに評価すると、0.3～1 mの緩衝材中のガラス固化体と地下水との反応は、 $10^3 \sim 10^6$ 年にわたる緩慢なものであることが予想される。

3. ガラスのナチュラアナログ研究

廃棄物ガラスの超長期の溶解挙動を評価するため、天然に存在する火山ガラスの変質事例を調査し

ている。対象とした火山ガラスは、廃棄物ガラスと SiO_2 含有量が類似している玄武岩質の火山ガラスである。調査を行った地域は、水／ガラス系のアナログとして伊豆大島、伊豆半島高塚山、富士山の3地域と、水／ペントナイト／ガラス系のアナログとして房総半島の鴨川である。また、廃棄物ガラスとの溶解挙動の差を把握するため、天然の火山ガラス組成を模擬した合成火山ガラスを作製し、浸出比較試験を行った。本研究の概要と成果を以下に示す。

(1) 水／ガラス系のアナログ研究

調査した火山ガラスは、噴火の際にマグマが空中で急冷されてできる多孔質のスコリア(scoria)と呼ばれる火山噴出物を構成しているものである。降下したスコリアは地表でスコリア層を形成する。ここでは、スコリア層に浸透した降水によるガラスの変質事例を水／ガラス系のアナログとして示す。

1) 変質速度の評価

スコリアの破断面(針先等で破断)をSEM(走査型電子顕微鏡)で撮影し、変質層の平均的な厚さを変質期間(ガラスの形成時から現在までの時間)で割ることにより変質速度を算出した。また、スコリア層の間隙水の組成を分析し、その SiO_2 濃度と変質速度を比較した(図5)。

ガラスの溶解反応について、 $\text{SiO}_2(\text{am})$ がその溶解度に達するまでガラス中の SiO_2 の溶解一次反応律速で溶解し、 $\text{SiO}_2(\text{am})$ の溶解度に達したあとは一定の残存溶解速度で溶解すると仮定した場合、ガラスの溶解速度 J_g は(3)式で示されている。

天然の変質事例において、液相の SiO_2 濃度が飽

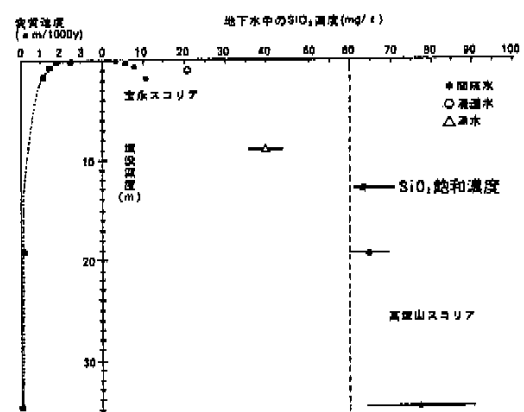


図5 埋設深度の増加に伴う、地下水中の SiO_2 濃度と変質速度の関係(寶永宝永スコリアと、伊豆高塚山スコリア)

和濃度の60 mg/l (Tardy (1986)⁸⁾およびDrever (1988)⁹⁾のデータから算出)に近づくにしたがって変質速度が減少し、飽和濃度近傍においても非常に小さい速度で変質が進行する傾向が認められる(図5)。このことは、上記の式の超長期における妥当性を示唆する。

2) 変質層構成物質の同定

ガラスの表面変質層が溶解の際に拡散層として作用するか否か、また計算コードによる変質過程のモデル化の妥当性を評価するために、実験や天然での変質作用によって生成した変質層の構造を明らかにする必要がある。TEM(透過型電子顕微鏡)によるスコリアの表面変質層の観察によると、地表付近のスコリアでは変質層が外側からゲーサイト、非晶質相の順に構成されるのに対し、埋没深度が3 m以深のスコリアの変質層はス멕タイト、ゲーサイト(認められない場合もある)、非晶質相の順に構成されることが確認された。

(2) 水/ペントナイト/ガラス系のアナログ研究

ペントナイトに包まれた場合の廃棄物ガラスの超長期溶解挙動を予測するため、数百万年間泥質岩中に埋没していた火山ガラスの変質事例を調査している。調査を行った房総半島鴨川地域では、海底に堆積した、第三紀から第四紀の泥質岩とスコリア層が分布している。スコリア層を構成するスコリアと、泥質岩中に単独で含まれるスコリアの両者について、埋没後2百万、3百万、6百万年経過した合計6試料を対象とした。鴨川地域の火山ガラスの変質に関して、以下の調査を行った。

ガラスに関しては、

- ① 廃棄物ガラスの組成(特にSiO₂含有量)と比較するため、EPMAによりスコリアを構成するガラスの化学組成を調べた。
- ② ガラスの変質速度については、前述したようにガラス変質層のSEM観察の結果から推定した。

また、ガラスの変質環境条件については、

- ③ 統成作用による自生鉱物の種類や現在の鉱泉水の深度方向の温度変化から推定した地温勾配と、地質データに基づく地層の埋没履歴から、ガラスが受けた温度履歴を推定した。
- ④ 鉱泉水組成や泥質岩の間隙水組成の実測値から水質を推定した。
- ⑤ スコリアを含む泥質岩の鉱物組成をXRDで調べるとともに、透水係数を測定し、おのおの圧縮ペントナイトと比較した。

これらの調査により以下の結果が得られ、調査結果を表2にまとめた。

表2 泥質岩に埋没していた火山ガラスの変質温度と環境条件

試料	0.8 Ma		An 68 B*		Am 98 B*	
	A*	B*	A*	B*	A*	B*
期 間	2 百万年		3 百万年		6 百万年	
ガラスの組成(SiO ₂ wt %)	60		61		56	
埋 没 深 度(m)	1350		2300		3600	
最 高 温 度(°C)	28		45		68	
泥質岩間=水の水質	初期 Na-Cl型、50万年前以降 Na-HCO ₃ 型					
泥質岩の鉱物組成	石英・斜長石・ス멕タクト・方解石・緑泥石・アイライト・黄鉄鉱					
泥質岩の透水係数(m/s)	8.4×10 ⁻¹¹		7.7×10 ⁻¹¹		7.4×10 ⁻¹²	
変質層の厚さ(μm)	0	0	5~10	0	10~20	10
変質速度(nm/1000y)	0	0	1.7~3.3	0	1.7~3.3	1.7

* A: スコリア層を構成するスコリア, B: 泥質岩に単独で埋没しているスコリア

① 火山ガラスのSiO₂含有量は56~60wt%であり、富士、伊豆大島、高塚山の火山ガラスと同様であった。

② スコリア層中のスコリアを構成する火山ガラスは3×10⁶年以前の試料では変質層が認められた。また、泥質岩中のスコリアを構成する火山ガラスは、6×10⁶年の試料について変質層が認められた。変質層厚から算出した変質速度は1.7~3.3nm/1000yの範囲であった。

③ ガラスの変質における最高温度は、2百万年の試料で28℃、3百万年の試料で45℃、6百万年の試料で69℃程度と推定された。

④ ガラスの変質に関与した水質は、海底に埋没していた時期は海水、つまりNa-Cl型であり、その後Na-HCO₃型に変化したと推定された。

⑤ 泥質岩の鉱物組成や透水係数は圧縮ペントナイトと類似していた。このことから、泥質岩中のスコリアは圧縮ペントナイト中の廃棄物ガラスのアナログとみなすことができることがわかった。

(3) 合成火山ガラスと模擬廃棄物ガラスの比較試験
天然での火山ガラスの変質と、想定される処分環境下での廃棄物ガラスの溶解では、ガラスの組成や環境条件に違いがある(表3)。天然の火山ガラスの変質調査の成果を廃棄物ガラスの長期溶解予測に反映させるため、環境条件のうち温度、水質、雰囲気(とくに酸素濃度)をパラメータとした浸出挙動比較試験を行った(試験条件を表4に示す)。

試験に用いたガラスは模擬廃棄物ガラス(P0798)¹⁾および合成火山ガラスである。溶解の程度を表す指標として重量減少量に着目した。

試験結果をまとめると次のようになる。

表3 ナチュラルアナログの環境と処分環境の条件の相違

	ガラス組成 (SiO ₂ wt %)	温度	水質	雰囲気
ナチュラルアナログにおけるガラスの浸出	火山ガラス (52-58)	約15°C	希薄溶液 (蒸留水類似)	大気平衡
処分環境におけるガラスの浸出	廃棄物ガラス (46, 6)	40-90°C	陸水系低pH 陸水系高pH 海水系低pH 海水系高pH	還元雰囲気

- ① 約1年間の試験の結果、模擬廃棄物ガラスと合成火山ガラスの重量減少量には、水質による違いが認められ、Na-HCO₃溶液>蒸留水>人工海水の順に重量減少量は大きかった。
- ② いずれの水質条件下でも、ガラスの重量減少量は、模擬廃棄物ガラスの方が合成火山ガラスより大きくなったが、その差は1桁以内であった。
- ③ 蒸留水系における28日までの模擬廃棄物ガラスと合成火山ガラスの重量減少量の差は、ガラスの化学組成に基づく水和自由エネルギーの差で説明された。
- ④ 模擬廃棄物ガラスと合成火山ガラスの浸出における温度依存性は、ほぼ同様の挙動を示し、溶解の活性化エネルギーがほぼ同じであることがわかった。
- ⑤ 模擬廃棄物ガラスおよび合成火山ガラスの溶解において雰囲気（大気雰囲気と低酸素雰囲気）による影響については、顕著な違いは認められなかった（図6）。

4. アクチニド元素の溶解度の測定

処分環境下における放射性核種の浸出挙動を地球化学的に評価するためには、浸出液中の核種の濃度を予測するための熱力学的データが必要である。特定の固相と平衡状態にある水溶性化学種の濃度は、固相の結晶構造・組成・溶液のpH・温度・錯体の配位子濃度等に依存する。これらの因子の重要度を決めるためには、核種の水溶性化学種と固相に関し

表4 浸出挙動比較試験条件

※ HCO₃⁻を10,000ppmに調整したもの

ガラス試料 (SiO ₂ wt %)	模擬廃棄物ガラス (46, 6)	合成火山ガラス (56)
雰囲気	大気中	低酸素中 (1ppm以下)
浸漬液	蒸留水 Na-HCO ₃ 溶液 (陸水系高pH) 人工海水 (海水系高pH)	蒸留水
試験温度(°C)	40, 90	90
試験期間(日)	7-354	7-192
SA/V(cm ⁻¹)	0.1	0.5

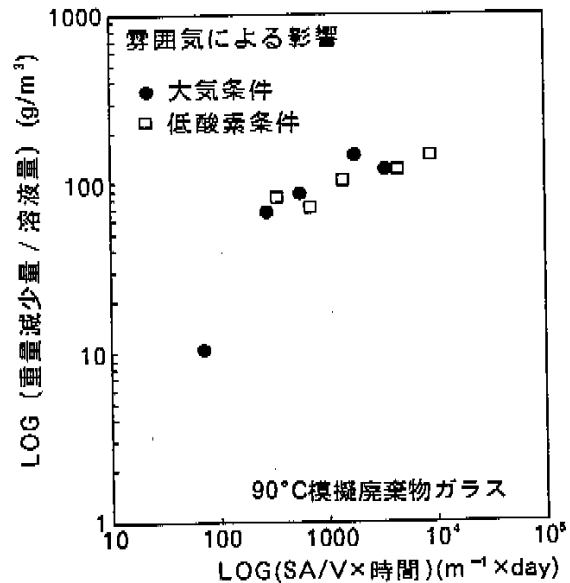


図6 大気雰囲気および低酸素雰囲気における浸出の差

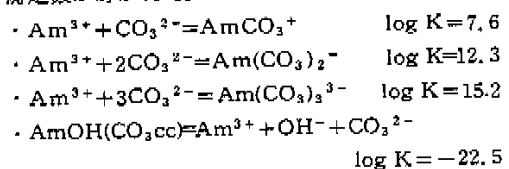
て信頼性の高い熱力学データが必要となる。しかし、性能評価上重要なアクチニド元素に関する錯体の形成反応や溶解度を求めるための熱力学データは現在不足していることから、雰囲気制御下におけるアクチニド元素の信頼すべき熱力学データの取得を行っている。

1) Amの溶解度の測定

アクチニド元素(III)の溶解度を測定するために、Amの炭酸塩系についての溶解度測定試験を実施した。CO₂濃度を10⁻³気圧に制御したグローブボックス内でAmの炭酸塩の溶解度を測定した。

双方の溶液中で平衡になった固相は、AmOHCO₃(c)であることが確認された。図7に溶解度測定結果を示す。

pH 7-8.5において、AmOHCO₃(c)の溶解度は10⁻⁸ mol/l以下という結果が得られた。この値は溶解度制限固相として報告されているAm(OH)₃(am)の溶解度よりも4桁以上低く、炭酸イオンを含む地下水中のAmの溶解度を規定するものである。また、図7の溶解度のpH依存性等から、次の平衡定数が導かれた。



すなわち、pH 7以下におけるAmOHCO₃(c)の

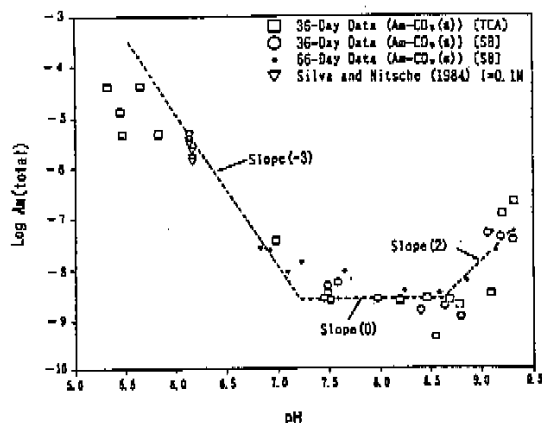


図7 Amの炭酸塩系の溶解度のpH依存値

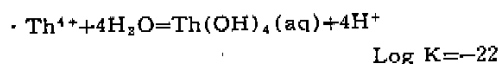
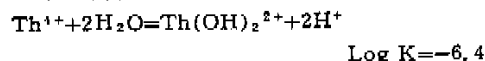
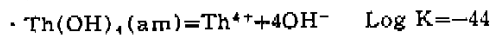
溶解度の急激な上昇は、 Am^{3+} イオンが溶解する結果である。またpH8.5以上では、 $\text{Am}^{3+}-\text{CO}_3^{2-}$ の錯体が溶解することによるものである。これらの溶解反応における平衡定数をPitzerらのイオン相互作用モデル¹⁰⁾に基づいて算出した結果は、他の研究報告とよく一致しており、数多く提案されている溶解反応の中で上式が主要な反応であることが確認された。

2) Thの溶解度の測定

アクチニド元素(IV)の溶解モデルを開発するため、 Th^{4+} の水酸塩系についても試験を行った。試験はイオン相互作用の影響を調べるため、 NaCl 0.6~3.0mol/lまたは Na_2SO_4 0.02~0.1mol/lの試験液に $\text{Th}(\text{OH})_4(\text{am})$ を入れた後、pH1~11に調整して溶解度を測定した。試験期間は8~372日であった。

その結果、 $\text{Th}(\text{OH})_4(\text{am})$ の溶解度は、pH4~7においてpHの上昇に伴って急激に減少したが、pH7以上ではpH依存性は認められなかった。また、pH4~7での溶解度はRyanら¹¹⁾のデータと比較して高い傾向を示した。それらのデータには、

$\text{Th}(\text{OH})_4(\text{am})$ より安定で溶解度の低い $\text{ThO}_2(\text{c})$ が共存している可能性が示唆された。また、溶解度測定の結果、 NaCl と Na_2SO_4 の共存イオン種による差および各濃度による差は認められなかったことから、 $\text{Th}(\text{OH})_4(\text{am})$ の溶解反応では本実験条件下ではイオン相互作用・イオン強度の影響は小さいものと判断された。以上の結果、 $\text{Th}(\text{OH})_4(\text{am})$ の溶解反応は次の反応が支配的であるものと結論された。



(東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室
油井三和、石黒勝彦、吉川英樹、芦田 敬、
三ツ井誠一郎、笹本 広、亀井玄人)
(環境技術開発推進本部 処分研究グループ
岡部一志)

参考文献

- 1) 石黒 勝彦, 地層処分条件下におけるガラス固化体の長期的性能に関する検討, PNC TN 4410 90-006 (1990).
- 2) B. Grambow, A Physical-Chemical Model for the Mechanism of Glass Corrosion with Particular Consideration of Simulated Radioactive Waste Glasses, DP-tr-78, (1989).
- 3) B. Grambow, A General Rate Equation for Nuclear Waste Glass Corrosion, Mat. Res. Soc. Symp., Vol. 44, pp. 15-27, (1985).
- 4) L. Werme et al., Chemical Corrosion of Highly Radioactive Boro-silicate Nuclear Waste Glass under Repository Conditions, J. Mater. Res., Vol. 5 No. 5, pp. 1130-1146, May (1990).
- 5) B. Grambow et al., Glass/Water Reaction with and without Benthite Present Experiment and Model, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 50, (1985), p. 187.
- 6) R. W. Hartley, Release of Radionuclides to the Geosphere from a Repository for High-Level Waste—Mathematical Model, Results, Nagra Technical Report 85-41 (1985).
- 7) Che, T. et al., "Analysis of High-level Waste Glass Performance by the Physical and Geochemical Simulation Code STRG 4", Waste Management, Vol. 11, pp. 191-203 (1991).
- 8) Tardy, Y., "Soil Mineral Weathering", (Ed. J. A. Kittrick), Van Nostrand Reinhold, p. 212 (1986).
- 9) Drever, J. I., "The Geochemistry of Natural Waters", Prentice-Hall (1988).
- 10) Pitzer, K. S., Activity Coefficients in Electrolyte Solutions, CRC Press, Boca Raton, Florida, (1979).
- 11) Ryan, J. L., Rai, D., Thorium(IV) Hydrated Oxide Solubility, Inorg. Chem., 26, 4140-4142, (1987).