研究論文

1197. セメント共存下でのスラグの溶解挙動

前田 敏克^{1,*}, 馬場 恒孝¹, 堀田 克敏², 水野 大¹, 小澤 達也¹*Dissolution Behavior of Slag in the Presence of Cement*Toshikatsu MAEDA, Tsunetaka BANBA, Katsutoshi HOTTA,
Tsuyoshi MIZUNO and Tatsuya OZAWA

Melting-solidified waste form is expected to act as an engineered barrier due to the stabilization of radionuclides and hazardous elements. Solidified products are categorized to metal and slag, which originate from metallic and non-metallic components, respectively. Static leach tests were performed for $\text{SiO}_2\text{-CaO-Al}_2\text{O}_3$ slag specimens in the presence of cement at 90°C to investigate the dissolution behavior of the slag under repository conditions. The dissolution rate of slag was constant during the leaching up to 144 days. Dissolution of slag was followed by precipitation of calcium silicate hydrates, which is expected to depress the concentration of Si dissolved silica in solution and to maintain the solution conditions far from the saturation with the slag. The far-from-saturation state is likely to be a cause of the constant dissolution rate.

KEYWORDS: slag, leach test, dissolution rate, cement, calcium silicate hydrates

I. はじめに

熔融固化による廃棄物の処理は、減容効果のみならず物理化学的安定性が得られることから¹⁾, 有害金属を含む焼却灰などの有効な処理方法のひとつとして一般廃棄物分野において利用されている。原子力分野においても熔融固化処理への期待は大きい。特に, TRU 廃棄物や研究所廃棄物のように種々雑多な成分が含まれる場合²⁾, 一般的には放射性核種の濃度評価が困難であるが, 熔融固化処理を施すことにより均質性の高い固化体となり, より簡易な方法によって放射性核種の定量が可能となる。さらに, 固化体が均質であることから, 廃棄物に含まれる放射性核種の閉じ込め性能, つまり溶解挙動を評価することが容易となる。長期における固化体の溶解速度を定量的に評価できれば, 処分におけるソースタームから移行する核種量が精度よく推算できることになり, 廃棄物処分に関する安全評価の信頼性向上につながる。

コンクリートや焼却灰, フィルタなどの非金属廃棄物を熔融固化処理してできる固化体は, 基本的には $\text{SiO}_2\text{-CaO-Al}_2\text{O}_3$ 3 成分系の非晶質構造をとる固化体(以下, 「スラグ」という)であり, これはガラスと同様もしくは類似の構造をもつため³⁾, スラグの溶解挙動については, 一般のガラスや高レベル放射性廃棄物ガラス固化体に関する従来の研究成果が参考となる。

しかしながら, 固化体の溶解挙動を評価するためには,

固化体が定置される処分環境特有の因子についての検討も必要となる。具体的には, 充填材や構造材として用いられる大量のセメント材を起因とするアルカリ環境下における溶解挙動の解明が求められる。高レベル放射性廃棄物の処分場設計において, ガラス固化体はオーバーバックやベントナイトにより覆われることから, セメント材を起因とするアルカリ性溶液が固化体に直接接触することは想定しにくく, セメント系材料の存在する溶液環境における固化体の溶解挙動に関する研究例は少ない。

本報では, 実際の処分場で想定されるセメント系材料の存在環境下でのスラグの溶解挙動について調べるために, 固体状のセメントを共存させたスラグ-セメント-水の 3 元系でのスラグの浸出試験を行った。

II. 試験方法

1. 試料

コンクリートや焼却灰等の主要構成成分である SiO_2 , CaO および Al_2O_3 を酸化物成分とするスラグ試料を準備した。この組成は, シリカ-カルシア-アルミナ 3 元系の相図において特に融点の低くなるポイントであり⁴⁾, 実際の熔融固化処理に際しては, 廃棄物の組合せ等によって目標とすべき配合比条件のひとつである。これらスラグ成分の原材料としては, 二酸化ケイ素, 炭酸カルシウム, アルミナおよびホウ酸を用いた。また, ガラスの浸出試験でよく用いられる手法を参考に^{5,6)}, スラグ溶解の指標元素として少量のホウ素(B)を添加した。一般的に, B は溶液中で易溶性であり再析出を生じないため, ガラスやスラグの溶解の程度を示す便利な元素である。原材料を混合したものをアルミナ製ルツボにいれ, 電気炉を用いて空気雰囲気中にて熔融固化した。温度条件は, 1,600°Cにて0.5時間保

¹ 日本原子力研究開発機構(Japan At. Energy Agency)

² 放射線利用振興協会(Radiat. Appl. Develop. Assoc.)
(2005年 7月4日 受理; 2005年 10月3日 査読通過)

* 著者連絡先: Tel. 029-282-5845, Fax. 029-282-5934,
E-mail: maeda.toshikatsu@jaea.go.jp

Table 1 Chemical composition of slag used for the leach tests

Oxides	wt%
SiO ₂	59
CaO	23
Al ₂ O ₃	13
B ₂ O ₃	5.0

Fig. 1 X-ray diffraction patterns of slag specimen

The specimen shows a broad halo peak, characteristic of amorphous phase.

持した後、1時間で1,000℃まで冷却し、その後は200℃/hで除冷した。スラグ試料の配合組成を酸化物換算したものを **Table 1** に示す。

このスラグ試料は透明なガラス状の外観を示し、しかも **Fig. 1** の X 線回折(XRD)プロファイルが非晶質物質特有の低角度側のゆるやかな単一ピーク(ハロー)のみを表すことから、ガラスと同類の非晶質な物質であるものと判断できる。

2. 浸出試験

スラグ試料を乳鉢で粉碎し、ふるいを用いて粒径 75~150 μm に整粒した。整粒した試料をエタノール中で超音波洗浄し、付着した微細な粉末を取り除いた後、40℃の恒温器内で乾燥させ試験用試料とした。試料の比表面積は窒素ガスをを用いた BET 1 点法によって測定し、0.11 m²/g の値を得た。

浸出試験は以下の手順で実施した。(財)セメント協会の研究用セメントと強度試験用標準砂および脱イオン水を重量比 2 : 2 : 1 の割合で混練し、室温で約 1 ヶ月間養生したモルタルを直径 2 mm 程度以下まで粉碎した。粉碎したモルタル 10 g と脱イオン水 100 ml を 120 ml 用テフロン製容器に入れ、室温にて静置し、セメント共存溶液に pH 変化のないことを確認した。その後、スラグ試料 1.0 g をフタの開いた 7 ml 用テフロン製容器に入れた状態で、セメント共存溶液中に静かに浸漬させた。セメント共存溶液を公称孔径 0.45 μm のメンブレンフィルタで濾過した溶液中の元素濃度組成を **Table 2** に示す。pH は 12.5 であった。

スラグ試料を浸漬させたテフロン製容器を密封し、大気

Table 2 Concentrations of major elements in cement effluent

Element	Concentration	
	(mg/l)	(mol/l)
Ca	350	8.8×10^{-3}
Na	850	3.7×10^{-2}
K	70	1.8×10^{-3}
Si	0.24	8.7×10^{-6}
B	0.78	7.4×10^{-5}

Fig. 2 Scheme of leach tests

雰囲気にて最大144日間の静的浸出試験を実施した。試験温度は、スラグと溶液との反応速度をなるべく大きくして、試験期間中における固相と液相の変化を観察しやすくするために90℃とした。なお、浸出試験は同一条件のものを多数用意し、サンプリング日ごとに一つずつ取り出す方式とした。テフロン容器は、Materials Characterization Center の標準浸出試験法(MCC 法)⁷⁾に従って洗浄した。浸出試験の概観を **Fig. 2** に示す。なお、比較として脱イオン水中、ならびに 0.01 mol/l の NaOH 溶液中でも同様の浸出試験を行った。

3. 分析方法および分析装置

所定の時間ごとに恒温器から取り出した試験容器を密封したまま室温まで自然放冷した。まず浸出液の pH を pH メータによって測定した。その後、浸出液を孔径 0.45 μm のフィルタで濾過し、濾液を 1.0% 硝酸溶液に調整して元素濃度測定用試料とした。pH 測定の際の校正には、6.86 および 9.18 (ともに 20℃での値) の pH 標準液を用いた。

元素濃度の定量には、誘導結合プラズマ発光分析装置(ICP-AES)を使用した。また、セメント共存下で浸出させたスラグ試料については、洗浄、乾燥して粉末試料としたものを X 線回折装置(XRD)を用いて分析した。XRD 測定には Co 管球を用い、管電圧 40 kV、管電流 20 mA、スキャン速度は 1.0 deg/min とした。

4. スラグ溶解量の算出方法

前述したように、スラグ全体の溶解量は少量添加した B の浸出量で評価した。

一般的に、B は溶液中で易溶性であり再析出を生じないため、ガラスやスラグの浸出試験においては、液中 B 濃度を測定することにより浸出量を算出することが可能である。しかしながら、本報では事前に実施した確認試験にお

いて、B がセメント試料(モルタル粒子)に収着する傾向が認められたため、セメント共存下での試験については、溶存 B 量とセメント試料に収着した B 量の総和を浸出した全 B 量とした。セメント試料に収着した B は、浸出試験後のセメント試料全量を 1.0 mol/l 硝酸溶液を用いて 90°C で 1 日間脱離して回収し、脱離液中 B 濃度を測定することにより求めた。この際、セメント試料に含まれる B の影響を補正するために、ブランクの脱離試験を実施した。

B の浸出量は、(1)式で定義される規格化質量損失 (Normalized Elemental Mass Loss, 以下「NL」という)によって整理した。これは、各元素の浸出量を固化体中の元素含有率と表面積で除した値であり^{5,6)}、試料が均一に溶解し、溶液中で再析出等を生じなければ、すべての元素についてこの NL が同じ値となる。

$$NL(i) \text{ (kg/m}^2\text{)} = m_i / f_i / S_A \quad (1)$$

ここで、 m_i : 浸出した元素 i の質量(kg)

f_i : スラグ試料中の元素 i の質量分率

S_A : スラグ試料の表面積(m²)

III. 結果と考察

1. 浸出液 pH および元素浸出量の時間変化

試験期間中における pH の時間変化を Fig. 3 に示す。約 60 日目までは pH は約 12.5 付近を示し変動はきわめて少ないが、60 日目以降で約 12 へ若干低下していることがわかる。

浸出液中の Si, Al および Ca 濃度の時間変化を Fig. 4 にそれぞれ示す。浸出液中 Si 濃度は、約 60 日目までは時間変化が認められないが、60 日目以降は約 1 桁高い値となっている。Al 濃度については時間の経過とともに減少傾向を示し、144 日目で検出限界値以下となった。一方、Ca 濃度は 60 日目まではほぼ一定の値に保持され、その後は約 1/3 の値に低下している。

Fig. 3 でみられる試験開始後約 60 日における浸出液 pH の変化および Fig. 4 でみられる浸出液組成の変化と、セメント起源の固相の推移との関連について考察する。従来のセメント間隙水に関する研究⁸⁾によると、ポルトランドイト (Ca(OH)₂) の溶解によって間隙水 pH が約 12.5 に維持され、その後、Ca(OH)₂ が消失すると、カルシウムシリケート水和物(以下、「C-S-H」という)が間隙水 pH を支配する主な固相となる。C-S-H はセメントの水和によって生成する結晶性の低い相で、Ca および Si の組成比(以下、「C/S 比」という)の異なる相として生成し、その組成比によって溶解度や平衡となる溶液 pH が異なる。

Fig. 4 に Greenberg ら⁹⁾によって報告されている pH 12.5 と pH 12 の溶液条件におけるセメント間隙水中の Ca, Si 濃度を鎖線と実線で示す。彼らはこれらの値をそれぞれ Ca(OH)₂ と C/S 比約 1 の C-S-H の溶解度により支配された結果であると推察しており、本試験で測定された pH 12.5 および pH 12 での Ca, Si 濃度とよく一致して

Fig. 3 Variations of pH of leachates during leach tests

Fig. 4 Concentrations of Si, Ca and Al in the leachate during leach tests at 90°C

Circles, triangles and square represent concentrations of Si, Ca and Al in the leachate, respectively. Solid lines and dotted lines represent concentrations of Si and Ca by Greenberg and Chang.

いる。これらのことから、本試験において、共存させたセメント試料に含まれる Ca(OH)₂ 成分は、そのケイ砂成分や溶液中のスラグとの反応によって C-S-H を生成することにより徐々に減少し、約 60 日で消失したと考えられる。すなわち、浸出試験の約 60 日目まではセメント試料に含まれる Ca(OH)₂ の溶解が液性を支配し、その後は C-S-H の溶解・析出反応が液性を支配しているものと解釈できる。

セメントの変質に伴う Ca(OH)₂ や C-S-H の溶解反応によって支配されるセメント間隙水組成は、それぞれ Region II および Region III とよばれ¹⁰⁾、セメントが共存する処分場の長期間にわたる化学環境条件と類似したものであると予想されている¹¹⁾。本試験で観察された浸出液組成の変化は、このようなセメント変質にともなう長期的な間隙水組成の変化を再現しているといえる。

2. スラグ固相の分析

浸出後のスラグ固相の状態を調べるために、試験期間 144 日のスラグ試料について XRD による分析を行った。Fig. 5 にその結果を示す。Fig. 5 より、C-S-H とトバモライトの生成が認められる。このうち、トバモライトは

Fig. 5 The X-ray diffraction patterns of slag specimen after 144 days of leach test

Fig. 6 (a) Normalized elemental mass loss (NL) of B and Si during leach tests for the slag specimens in the presence of mortar at 90°C. Solid circles and open circles represent NL of B and Si, respectively. NL of Si were calculated by concentration in solution. (b) Normalized elemental mass loss (NL) of B and Si during leach tests for the slag specimens in DIW and in 0.01 M NaOH solution at 90°C.

Solid triangles and open triangles represent NL of B and Si in DIW, respectively. Solid diamonds and open diamonds represent NL of B and Si in NaOH solutions, respectively.

C-S-H と同様にセメントの水和によって生成し、Ca および Si から構成される層状構造を有する鉱物である¹²⁾。トバモライトは層間距離が 9 Å, 11 Å および 14 Å のものが知られており¹²⁾、Fig. 5 の回折ピークはこれらのうち、層間距離 11 Å のトバモライトであることを示している。Atkins らの報告¹³⁾によると、まず低結晶性の C-S-H が 60 °C 以上で結晶化し始め、85 °C において 11 Å トバモライトに変化するとしている。また、別の研究者ら¹⁴⁾の 80 °C で行った岩石カラム中への模擬セメント溶出液の通水試験においても、11 Å トバモライトの生成が認められたと報告している。これら既存の研究例を参考にすると、本試験条件においてスラグ表面に生成した 2 次相のひとつが 11 Å トバモライトであるとの判断は妥当である。

このように、スラグ表面に 2 次相として確認された 2 種類の鉱物は、いずれも Si を成分としていることから、スラグの溶解に伴い放出される Si はこれらの鉱物生成の過程で固相中に取り込まれるものと考えられる。

3. セメント共存下でのスラグの溶解機構

セメント共存下での B と Si の NL を時間の関係として Fig. 6(a) に示す。約 150 日間の試験期間をとおして B の NL は単調に増加しており、スラグの溶解が継続していることがわかる。また、B に比べて Si の NL は 2~3 桁小さい値で推移していることから、スラグは均一に溶解するのではなく、Si の大部分が固相中に留まっていることがわかる。スラグ固相の分析の結果、生成が確認できた C-S-H やトバモライトに取り込まれ、留まっていることが推察できる。一方、比較として実施した脱イオン水中、ならびに 0.01 mol/l の NaOH 溶液中での B と Si の NL の時間変化を Fig. 6(b) に示す。いずれも試験開始後 7 日目以降で B の NL の増加が認められないことから、これらの溶液中ではセメント共存下に比べて、短期間でスラグの溶解が終息していることがわかる。また、いずれの溶液中においても B の NL は Si の NL とほぼ同じ値で推移していることから、セメント共存下とは異なり、スラグ表面における Si の残存や Si を含む 2 次相の析出などはほとんど生じ

Fig. 7 Normalized elemental mass loss (NL) of B during leach tests for the slag specimens at 90°C

ないと考えられる。

Fig. 7 にみられるとおり、セメント共存下での B の NL は時間に対してよい直線性を示す。これは、スラグがこの期間一定の速度で溶解していることを示している。これらの結果を総合すると、セメント共存下でのスラグの溶解機構は以下のように表現される。

前述したように、本試験で調製したスラグは Si を主成分とするガラスであることから、その溶解挙動はガラス固化体マトリックスの溶解として提案されている考え方^{15,16)}を適用することができると考えられる。これはガラスをシリカとみなし、次の式で表される反応によって溶解が進むという考え方である。

このようなシリカの溶解においては、試料表面での反応が律速過程となり、その溶解速度は溶存ケイ酸 $\text{H}_4\text{SiO}_4(\text{aq})$ の活量 $a_{\text{H}_4\text{SiO}_4}$ と飽和における活量 $a_{\text{H}_4\text{SiO}_4, \text{sat}}$ に関する 1 次溶解反応式として、(3) 式のように表される^{15,16)}。

$$r_m = k^+ (1 - a_{\text{H}_4\text{SiO}_4} / a_{\text{H}_4\text{SiO}_4, \text{sat}}) \quad (3)$$

ここで、 k^+ は溶液組成、スラグの組成および温度に依存する速度定数である。この式からわかるように、スラグの溶解速度は溶液中の溶存ケイ酸活量が増加し、飽和に近づくとき小さくなる。

本研究で検討したセメント共存条件では、III-1 節の Fig. 4 に関する説明で記述したように、溶液中での Si 濃度は試験期間 60 日目まではセメント含有のポルトランドイトの溶解によってその系での pH や Ca 濃度と釣合う値となり、その後は C-S-H の溶解度で制限されることで、試験期間をとおして低い濃度が保たれる。このため、(3) 式で $a_{\text{H}_4\text{SiO}_4}$ の小さい条件での溶解が継続し、Fig. 7 に示すようなスラグの直線的な溶解に至ることになる。これを定量的に考察すると以下ようになる。

$a_{\text{H}_4\text{SiO}_4, \text{sat}}$ はシリカの形態により決まる値であり、スラグに類似する非晶質シリカの場合は約 $2.0 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$ となる¹⁷⁾。一方、セメント共存下での液中 Si 濃度は $1.0 \times$

$10^{-5} \sim 1.0 \times 10^{-4} \text{ mol/l}$ であり、本試験条件のような pH 12 のアルカリ性溶液中では、 $\text{H}_4\text{SiO}_4(\text{aq})$ は H_3SiO_4^- や $\text{H}_2\text{SiO}_4^{2-}$ といった化学種に解離するので¹⁷⁾、 $a_{\text{H}_4\text{SiO}_4}$ は液中 Si 濃度の約 2 桁低い値となる。したがって、(3) 式の $a_{\text{H}_4\text{SiO}_4} / a_{\text{H}_4\text{SiO}_4, \text{sat}}$ は、約 60 日目までは約 5.0×10^{-5} 、それ以降は約 5.0×10^{-4} となり、飽和の影響項 $(1 - a_{\text{H}_4\text{SiO}_4} / a_{\text{H}_4\text{SiO}_4, \text{sat}})$ は試験期間をとおしてほぼ 1、すなわち溶解速度 $r_m \approx k^+$ となる。さらに、溶解速度 r_m は Fig. 7 に示した B の NL の傾きから求めることができ、本試験で実施したセメント共存条件下におけるスラグ溶解の速度定数 k^+ は、約 $9.9 \times 10^{-11} \text{ kg/m}^2/\text{s}$ と算出される。この値は、90°C の脱イオン水中で得られたガラス固化体の k^+ ; $3.0 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^2/\text{s}$ ¹⁵⁾ と比較すると約 1 桁小さい値である。

また、セメント共存条件では、溶存 Si 濃度の抑制とともにスラグ表面における保護膜形成が阻害される可能性も挙げられる。保護膜とは、ガラス固化体の場合、その表面の水和に伴い形成される変質層が成長し、ケイ酸イオンや水分子の移行に対する物理的障壁となったものであり、ガラスから溶解した成分等によって変質層内に高密度な領域のことが原因とされている¹⁸⁻²⁰⁾。セメントが共存するスラグの溶解の場合、スラグから溶出した成分が C-S-H の生成や共存するセメント表面への析出に消費されるため、スラグ表面で保護膜となり得る変質層の形成が阻害されるものと推察される。こうした現象も、本試験結果で認められた初期溶解速度の継続の要因と考えられる。

このようなセメント共存下でのスラグの溶解機構を考えると、セメント材料が共存して C-S-H やトバモライトの形成が継続し、溶存 Si 濃度が抑制されるかぎり、さらに、スラグ表面析出層の形成とその保護膜効果が抑制されるかぎり、スラグの溶解が初期の速度で進むこととなる。

IV. まとめ

SiO_2 、CaO および Al_2O_3 を主成分とするスラグ試料を用いて、セメント共存下における静的浸出試験を 90°C で行い、処分環境として想定されるセメント環境でのスラグの溶解挙動を調べた。その結果、スラグはセメントが共存する溶液中において一定の速度で溶解することがわかった。これは、スラグの主成分である Si がカルシウムシリケート水和物に取り込まれることによって液中 Si 濃度の低い状態が保たれ、初期における溶解反応速度が継続したためと推察された。

本報の作成において、ご助言をいただいた日本原子力研究開発機構の中山真一博士に感謝いたします。

— 参考文献 —

- 1) 足立和郎, 天川正士, 安井晋示, 低レベル放射性廃棄物のプラズマ熔融技術の開発(その 3). 電力中央研究所報告, W92043, (1993).

- 2) 坂井章浩, 吉森道郎, 阿部昌義, 研究所廃棄物の埋設処分における安全評価上重要核種の選定(その1)—主要放射性廃棄物発生施設別の核種組成比の評価. JAERI-Tech 2000-012, (2000).
- 3) 前田敏克, 馬場恒孝, 水野 大, “溶融固化スラグの溶解速度と溶液 pH 及びスラグ塩基度の関係,” 廃棄物学会論文誌, **15**, 45~51 (2004).
- 4) Verlag Stahleisen GmbH, SLAG ATLAS 2nd Ed., Germany, p. 105 (1995).
- 5) E. Vernaz, S. Gin, C. Jegou, I. Ribet, “Present understanding of R7T7 glass alteration kinetics and their impact on long-term behavior modeling,” *J. Nucl. Mater.*, **298**, 27~36 (2001).
- 6) B. Kienzler, B. Luckscheiter, S. Wilhelm, “Waste form corrosion modeling: comparison with experimental results,” *Wastes Manage.*, **21**, 741~752 (2001).
- 7) Materials Characterization Center, *Nuclear Waste Materials Handbook*. DOE/TIC-11400, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, (1985).
- 8) A. Atkinson, N. M. Everit, R. M. Guppy, “Evolution of pH in a radwaste repository; Experimental simulation of cement leaching,” AERER 12594, United Kingdom Atomic Energy Authority, (1987).
- 9) S. A. Greenberg, T. N. Chang, “Investigation of the colloidal hydrated calcium silicates. II. Solubility relationships in the calcium oxite-silica-water system at 25°C,” *J. Phys. Chem.*, **69**, 182~188 (1965).
- 10) M. H. Bradbury, F. A. Sarott, *Sorption Database for the Cementitious Near-field of a L/ILW Repository for Performance Assessment*, PSI report, PSI Bericht Nr. 95-06, (1995).
- 11) 核燃料サイクル開発機構, 電気事業連合会, TRU 廃棄物処分概念検討書. 第4章, p. 56 (2000).
- 12) 荒井康夫, セメントの材料化学, 大日本図書, p. 140 (1984).
- 13) M. Atkins, F. P. Glasser, L. P. Moroni, “The long-term properties of cement and concrete,” *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, **212**, p. 373~386 (1991).
- 14) 加藤大生, 佐藤光吉, 大和田 仁, 三原守弘, 大井貴夫, セメント系材料の浸出液の地質媒体への影響評価—大型カラム試験設備を用いた項 pH ブルームの岩盤への影響試験. JNC TN8430 2000-008, (2000).
- 15) B. Grambow, “A general rate equation for nuclear waste glass corrosion,” *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, **44**, 15~27 (1985).
- 16) B. Grambow, *Nuclear Waste Glass Dissolution: Mechanism, Model and Application*, Technical Report-JSS Project Phase IV 87-02, (1987).
- 17) J. I. Drever, *The Geochemistry of Natural Waters*, 3rd ed., Prentice Hall, p. 197~198 (1997).
- 18) C. Jegou, S. Gin, F. Larche, “Alteration kinetics of a simplified nuclear glass in an aqueous medium: Effects of solution chemistry and of protective gel properties on diminishing the alteration rate,” *J. Nucl. Mater.*, **280**, 216~229 (2000).
- 19) S. Gin, J. P. Mestre, “SON 68 nuclear glass alteration kinetics between pH 7 and pH 11.5,” *J. Nucl. Mater.*, **295**, 83~96 (2001).
- 20) E. Vernaz, S. Gin, C. Jegou, I. Ribet, “Present understanding of R7T7 glass alteration kinetics and their impact on long-term behavior modeling,” *J. Nucl. Mater.*, **298**, 27~36 (2001).