京都大学	博士（　工　　学）	氏名	佐藤　淳也
論文題目	アルミノシリケート硬化体中における重金属および放射性核種の固定化機構に関する研究		

（論文内容の要旨）

本論文は、有害物質を含む放射性廃棄物の処理に向けたアルミノシリケート硬化体の適用性を評価するため、アルミノシリケート硬化体中の重金属や放射性核種の固定化機構について研究したものである。化学試薬から合成した純粋な原料を用いて、対象元素を固化したアルミノシリケート硬化体を作製し、添加量やマトリクスの骨格を担う主要元素であるSi及びAlの比率が対象元素の固定化に及ぼす影響を調査した成果をまとめたものであり、6章から成り立っている。

1章は序論であり、産業廃棄物や放射性廃棄物の処理処分に関する現状を概説し、本論文の研究背景および目的について述べている。

2章では、本研究の対象とするアルミノシリケート硬化体に関する過去の研究報告を取りまとめている。

3章は、アルミノシリケート硬化体の原料となるSi-Alゲルを化学試薬から合成し、元素組成、結晶相、粒子径、比表面積などの基礎的な物性を評価している。材料に無機試薬を用いることで、非晶質かつSi/Alモル比が0.5のSi-Alゲルを合成することに成功している。先行研究と比較すると、本研究で合成したSi-Alゲルは、比表面積が大きく細孔に富む表面構造を有していることが示された。合成したSi-Alゲルがアルミノシリケート硬化体の原料として利用できることを示すために、アルミノシリケート硬化体を作製し、一軸圧縮強度等を測定した。Si/Alモル比が0.90～1.25の範囲において5 MPa以上の強度を有する硬化体を作製することを確認し、合成したSi-Alゲルがアルミノシリケート硬化体の原料として利用可能であることを明らかにした。

4章では、重金属の代表として原子力分野でも広く利用されている鉛に着目し、鉛を添加したアルミノシリケート硬化体を作製している。作製した硬化体に対して、X線回折分析、示差熱天秤分析、ラマン分光分析などの機器分析やアルカリ性試料に適した逐次抽出法である改変BCR法を併用することにより、アルミノシリケート硬化体中の鉛の化学形態や、アルミノシリケート硬化体のSi/Alモル比が固定化機構に及ぼす影響を明らかにした。X線回折分析および示差熱天秤分析の結果から、鉛は非晶質相に存在することが示され、水和物や炭酸塩としてもほとんど存在していないことを示した。また、ラマン分光分析およびX線吸収微細構造分析の結果から、鉛はケイ酸塩に近い化学結合状態で存在していることを明らかとした。逐次抽出試験により、最大で9割以上の鉛が溶出しにくい難溶性として鉛が抽出されたことから、アルミノシリケート硬化体中の鉛は骨格であるケイ素と共有結合性が強い状態で固定化されていることを示した。アルミノシリケート硬化体のSi/Alモル比を変動させた場合は、最もSi/Alモル比が小さい条件で難溶性の鉛の割合が最大となり、低Si/Alモル比のアルミノシリケート硬化体中にゼオライトのFaujasite-Naの生成が確認されたことから、静電的な相互作用によりゼオライトの細孔中に固定化される鉛が増加したことを明らかにした。

5章は、低レベル放射性廃棄物の浅地中処分における重要核種の一つであり、廃棄体

京都大学	博士（　工　　学）	氏名	佐藤　淳也

中の濃度上限値が設けられているストロンチウムに着目し、ストロンチウムを添加したアルミノシリケート硬化体を作製している。X 線回折分析、改変 BCR 法等により、アルミノシリケート硬化体中のストロンチウムの固定化機構および硬化体の Si/Al モル比が固定化機構に及ぼす影響を明らかにした。X 線回折分析の結果から、アルミノシリケート硬化体中に炭酸ストロンチウムとして固定化されていることを示した。また、逐次抽出試験により、アルミノシリケート硬化体中のストロンチウムはイオン交換性画分に多く抽出されることが明らかとなり、マトリクスの電荷補償のためにナトリウムとの交換により静電的に吸着された形態、もしくは炭酸塩等の酸可溶性塩の形態で主に存在していることを示した。アルミノシリケート硬化体の Si/Al モル比を変動させた場合は、鉛を添加した場合と同様に低 Si/Al モル比のアルミノシリケート硬化体において難溶性のストロンチウムの割合が増加することが示された。しかしながら、ストロンチウムにおいては Si/Al モル比が 1.25 の時に最も難溶性の割合が大きくなり、Si/Al モル比の増加により、難溶性のストロンチウム化合物が生成したことが示唆された。鉛とストロンチウムのアルミノシリケート硬化体中への固定化機構について比較した結果、鉛については主にマトリクスの骨格の一部として溶出しにくい形態で固定化されていたのに対し、ストロンチウムについてはイオン交換性の比較的溶出しやすい形態で存在しており、同じ 2 価の陽イオンであっても固定化機構が異なることが明らかとなった。したがって、固定化反応が競合する可能性が低いことが示唆された。

6 章は結論であり、本論文で得られた成果について要約し、今後の研究の展望について述べている。