

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		
<p>（論文内容の要旨）</p> <p>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。</p> <p>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。</p> <p>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。</p> <p>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。</p> <p>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下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。</p> <p>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</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	佐藤 淳也
<p>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。</p> <p>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。</p>			

(論文審査の結果の要旨)

原子力施設から発生する比較的放射能の低い放射性廃棄物の中には有害重金属を含むものが存在し、放射性核種とともに同時に固定し、処分する必要がある。本論文は、固定化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、得られた主な成果は以下のとおりである。

1. アルミノシリケート硬化体の元素の固定化性能が低 Si/Al モル比の領域で向上する傾向があることから、Si/Al モル比 0.5 の Si-Al ゲルを原料としてアルミノシリケート硬化体を作製することに成功し、基礎的な物性を明らかにした。

2. 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、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を併用することにより、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ることを示し、鉛はケイ酸塩に近い化学結合状態で存在し、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されていることを明らかにした。

3. 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、ストロンチウムの固定化機構および Si/Al モル比が固定化機構に及ぼす影響を検討した。鉛を添加した場合と同様に低 Si/Al モル比の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を示した。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を明らかにした。これらの結果により、鉛と比較して、同じ 2 価の陽イオンであっても固定化機構が異なり、鉛とストロンチウムの固定化反応が競合する可能性が低いこと示した。

以上、本論文は、アルミノシリケート硬化体の重金属及び放射性核種の固定化機構を Si/Al モル比の観点から検討したものである。本成果は、放射性廃棄物のみならず、有害廃棄物への適用も期待され、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、令和 3 年 2 月 22 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。なお、本論文は、京都大学学位規程第 14 条第 2 項に該当するものと判断し、公表に際しては、(令和 5 年 3 月 31 日までの間) 当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。

要旨公開可能日： 令和 3 年 4 月 1 日以降