



# HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Evaluation of metakaolin-based geopolymer for the treatment of simulant radionuclides : Analysis of surface chemistry and immobilisation behaviour [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	NIU, Xiaobo
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第15628号
Issue Date	2023-09-25
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/90888">https://hdl.handle.net/2115/90888</a>
Rights(URL)	<a href="https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/">https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/</a>
Type	doctoral thesis
File Information	NIU_Xiaobo_review.pdf, 審査の要旨



## 学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士(工学) 氏名 NIU Xiaobo

審査担当者 主査 准教授 エラクネス ヨガラジャ  
副査 教授 佐藤 努  
副査 教授 広吉 直樹  
副査 准教授 胡桃澤 清文

## 学位論文題名

Evaluation of metakaolin-based geopolymer for the treatment of simulant radionuclides: Analysis of surface chemistry and immobilisation behaviour

(模擬放射性核種処理におけるメタカオリン系ジオポリマーの評価: 表面化学と取り込み挙動の分析)

原子力発電は、現代社会の生産性向上に大きく寄与してきたが、核燃料の後処理や放射性廃棄物の管理、原発事故への対応など、解決すべき課題も多く抱えている。原子力利用に伴って発生する放射性核種を効果的に制御することは、環境汚染を防ぎ、生物にとって安全な生態系を確保するために極めて重要である。特に、放射性廃棄物の貯蔵や処理においては、半減期が比較的長く、土壌や水系での移動性が高い  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{60}\text{Co}$  などの陽イオン核種や  $^{131}\text{I}$ 、 $^{79}\text{Se}$  などの陰イオン核種の固定化法を確立することが重要である。

ジオポリマーは、ポルトランドセメントの代替材料として注目されており、廃棄物中の放射性核種の固定化にも利用できる可能性があるものと期待されている。しかし、ジオポリマー中の放射性核種の固定化に関する研究はまだ初期段階で、より体系的かつ詳細な研究が必要である。本研究は、アルカリ活性化メタカオリンジオポリマーに対する陽イオンおよび陰イオン放射性核種の吸着挙動に焦点を当てて検討している。また、これらの核種の吸着挙動をよりよく理解するため、熱力学に基づく予測モデルを開発している。さらに、アルカリ活性化メタカオリンジオポリマーの陰イオンの取り込み能力を向上させることに取り組み、調製方法の工夫により陰イオンの取り込み能力を向上させることができることを見出している。また、リン酸活性化メタカオリンジオポリマーを用いた陰イオンの取り込みについても検討し、本材料の表面化学と静電特性に関する貴重な知見を得ている。

第1章では、原子力発電の開発プロセスや課題など、本研究の背景に関する情報をまとめている。また、放射性核種の処分にジオポリマー材料を適用する際のシナリオや方法について紹介している。最後に、本論文の研究目的と構成を述べている。

第2章では、ジオポリマー材料の基本的な特性、さまざまな活性化経路、およびそれらの水和プロセスを含む先行研究の成果をまとめている。また、放射性核種に関する化学的性質、毒性、同位体特性、一般的な処分方法などの基本情報を紹介している。

第3章では、2種類のメタカオリン系ジオポリマーを合成し、 $\text{Cs}^+$ 、 $\text{Sr}^{2+}$ 、 $\text{Co}^{2+}$ 、 $\text{I}^-$ 、 $\text{IO}_3^-$ 、 $\text{SeO}_3^{2-}$ 、 $\text{SeO}_4^{2-}$  との結合能力および相互作用を評価している。いずれのジオポリマーもカチオン放射性核種を効果的に固定化することができたが、アニオン放射性核種を効果的に取り込むことは

できなかった。 $Cs^+$  は  $K^+$  と 1 対 1 の交換により、また、 $Sr^{2+}$  と  $Co^{2+}$  は  $K^+$  と 1 対 2 および 1 対 1 のイオン交換により取り込まれるが、 $Co^{2+}$  の結合にはコバルトブルー ( $CoAl_2O_4$ ) の形成も関わっていることを示している。熱力学モデリングにより、 $Cs^+$  と  $Sr^{2+}$  は、イオン交換メカニズムに基づき、低濃度で固定化できることを示している。

第 4 章では、メタカオリン系ジオポリマーの陰イオン種に対する取り込み能力を向上させる新たな方法を提案している。提案された方法では、ジオポリマー形成時にエトリンガイトをその場生成させる。共沈実験、結合解析、構造解析により、この改質ジオポリマーは、陽イオン種の取り込み能力を維持するだけでなく、陰イオンである  $SeO_3^{2-}$  や  $SeO_4^{2-}$  に対する取り込み能力も獲得していることを確認している。また、熱力学モデリングにより低濃度での  $SeO_3^{2-}$  の取り込みを正確に予測できることも確かめている。

第 5 章では、陰イオン核種の取り込みに有効な別の方法としてリン酸活性化ジオポリマー (PGP) の利用について検討している。リン酸による活性化でポリマー化を開始させると、表面電荷を支配する Alx-PO ユニットが形成された。PGP のゼータ電位は、pH4 付近で最大となり、酸性条件下では AIVI-PO ユニットが溶出してゼータ電位が低下し、アルカリ性条件下では AIVI/Si-OH 基からのプロトン乖離によりゼータ電位が低下する。PGP のゼータ電位は pH0-6 の領域では正の値を取り、種々の陰イオン核種 ( $SeO_3^{2-}$ 、 $SeO_4^{2-}$ 、 $I^-$ 、 $IO_3^-$ ) を効果的に固定できた。

第 6 章では、本論文の主要な成果と結論をまとめ、アルカリ活性化およびリン酸活性化メタカオリンジオポリマーにおける  $Cs^+$ 、 $Sr^{2+}$ 、 $Co^{2+}$ 、 $I^-$ 、 $IO_3^-$ 、 $SeO_3^{2-}$  および  $SeO_4^{2-}$  の固定化に関する知見を要約している。また、ジオポリマーを利用した放射性核種の固定化に関する今後の研究への提案も行っている。

以上、これを要するに、著者はジオポリマーによる放射性核種の取り込みについて体系的な検討を行い、陽イオン核種および陰イオン核種の取り込みに有効な新しいジオポリマーを提案している。この成果は、資源材料学および資源化学の発展に寄与するところ大なるものがある。よって、著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。