

放射性セシウム固定化用ジオポリマーの組成最適化

Optimization of the composition of geopolymer for cesium immobilization

*市川 恒樹^{1,2}, 山田 一夫², 渡邊 禎之³, 芳賀和子⁴, 大迫 政浩²

¹北海道大学, ²国立環境研究所, ³東京都立産業技術研究センター, ⁴太平洋コンサルタント

多量のCsを含む¹³⁷Cs濃縮物を廃棄処理するためのCs固定化剤として使用するジオポリマーの最適組成は、メタカオリン：水ガラスの重量比が1：1付近であることを明らかにした。

キーワード：セシウム固定化材, ジオポリマー, メタカオリン, 水ガラス, イオン交換, Si/Al比

1. 緒言

¹³⁷Cs汚染廃棄物を高温乾式除染とイオン交換クロマ Cesium immobilizer トグラフィーで処理すると、放射性廃棄物を元の1万分の1～10万分の1にまで減容化することができる。しかしながら逆に、放射性廃棄物中のCs濃度は元の1万～10万倍に濃縮されることとなる。Cs化合物は一般に水溶性なので、そのまま廃棄すると水の侵入によって¹³⁷Csが外部に漏出する恐れがある。よってこれを固定化・固化して廃棄するのが望ましいが、通常のセメント固化法ではCsなどのアルカリ金属イオンを固定化することはできない。メタカオリンなどのアルミノシリケートと水ガラスから作成されるジオポリマーは陽イオン交換能があるためアルカリ金属イオンを固定化できるが、どのような組成がCsの固定化に最適であるかは明らかになっていない。そこでCsを含むジオポリマーを海水に浸漬した際のCsの漏出速度に対するジオポリマー中のSi/Al比の影響を調べることにより、Cs固定化用ジオポリマーの組成最適化を計った。

2. 実験と結果

水ガラス(WG)に適量のNaOH, CsClおよび水を加えた溶液をメタカオリン(MK)に加えて攪拌混合したものを内径34mm, 深さ10mmのプラスチック製ペトリ皿の型枠に入れ、室温で1昼夜放置して固化後、60℃で10日間封緘養生したものをジオポリマー(GP)試料とした。NaOHの添加量は、GPの組成比が $x\text{NaAlO}_2 \cdot y\text{SiO}_2$ となるように調整した。WGの添加量はMKに対して重量比が0.5 (Si/Al=1.34), 1 (Si/Al=1.69), 1.5 (Si/Al=2.04)となるように調整した。淡水あるいは海水中へのCs漏出試験ではペトリ皿型枠に入った試料をそのまま40℃200mLの淡水あるいは海水に浸漬し、試料中の¹³⁷Cs減少量を測定した。GPのNMRおよびCs/Na選択係数の測定には、型枠から外したGPを粉碎、水洗、乾燥して得た粉末を用いた。Cs/Na選択係数は、Csを含まない粉末を¹³⁷Csを含むCsCl/NaCl混合溶液に浸漬して2昼夜攪拌後、滲液中の¹³⁷Csの放射能強度を測定してCsの吸着量を測定することにより決定した。

GPの²⁷Al-NMRはO-Si-の酸素4配位構造を示すことから、GPはAl原子と同数の1価カチオンを吸着していることが結論される。各GP共、淡水中ではCsの漏出は観測されないが、海水中では主としてNa⁺とのイオン交換によるCsの漏出が観測される。漏出はSi/Al比が高いほど遅くなるが、これはGPのCs/Na選択係数が増大する結果、Cs吸着能が高くなるためである。Si/Al比を1.34から1.69に増やすと選択係数は大きく増大するが、さらに2.04に増やしてもそれほど大きくはならない。漏出はCs吸着率の増大とともに減少するので、吸着率抑制にはSi/Al比が小さくイオン交換容量の大きいほうが望ましい。以上、海水中へのCsの漏出防止に適したGPは、MKとWGを等量混合して作成したものであることが結論される

*Tsuneki Ichikawa^{1,2}, Kazuo Yamada², Sadayuki Watanabe³, Kazuko Haga⁴ and Masahiro Osako²

¹Hokkaido Univ., ²National Institute for Environmental Studies, ³Tokyo Metropolitan Industrial Technology Research Institute, ⁴Taiheiyō Consultant Co. Ltd.