

メタカオリンジオポリマー内における放射性元素を模擬したカリウムイオンの溶出特性

九州工業大学大学院 学生会員 ○古賀 新悟 九州工業大学大学院 正会員 合田 寛基
 富士電機 (株) 非会員 足立 栄希 富士電機 (株) 非会員 見上 寿
 富士電機 (株) 非会員 工藤 勇 西松建設 (株) 正会員 原田 耕司

1. はじめに

減容化处理を施した放射性廃棄物の焼却飛灰中には放射性セシウム (以下, 放射性 Cs) が水に溶けやすい塩化セシウムの形態で高濃度に濃縮されている。また, 放射性 Cs はセシウム 134 (Cs-134) とセシウム 137 (Cs-137) の 2 種類が存在しており, そのうち Cs-137 の半減期が約 30 年と長期にわたる。これらの性質から, 放射性廃棄物の固化処理には, 長期間安定し固定化できる材料が求められる。しかし, 一般的な固化処理方法であるセメント固化では, 水溶性の放射性 Cs がセメントの水和物と反応することで構造機構が変質することから, セメント硬化体の耐久性の影響が懸念されている。

そこで, 重金属イオンならびに放射性物質の固定化の特徴を有す²⁾ジオポリマー (以下, GP) の中でも, 構造体に水和物が極めて少ないメタカオリン GP の放射性廃棄物処理関連施設への適用が検討されている。

本研究では, GP の重金属イオンの溶出特性を検討するため, メタカオリン GP を対象に, 重金属を模擬したカリウムを添加させ, 異なる温度の精製水に浸漬させた。内在カリウムイオンの浸漬中における溶出特性を把握したうえで, 常温時に対する加速倍率を検討した。

2. 実験概要

2.1 使用材料と配合

表-1 に使用材料, 表-2 に配合を示す。モルタル中のカリウムのモル濃度を 0.10mol/L に統一した。

2.2 供試体作製方法と養生方法

ホバート型ミキサ (容量: 2L) を用いて, 1 バッチあたり 1.5L のモルタルを作製した。練混ぜ方法は, メタカオリンと細骨材を入れて 30 秒間攪拌し, アルカリ溶液と KCl 溶液を入れて 1 分間の練混ぜ, 30 秒間の搔落しを行い, さらに 1 分間の練混ぜを行った。供試体は円柱供試体 ($\phi 50 \times 100\text{mm}$) とし, テーブルバイブレータで振動を与えて締め固めた後, 封緘処理を行った。養生方法は, 20°C 恒温室内で静置させる常温養生とプログラム式恒温機を用いた加温養生の 2 種類とした。図-1 に加温養生時の温度履歴を示す。加温養生後は指定の

表-1 使用材料の物性値

使用材料	記号	密度 (g/cm ³)	詳細
アルカリ溶液	AS	1.40	A/W=0.11
塩化カリウム溶液	KCl	1.12	
メタカオリン	MK	2.54	造粒型
細骨材	S	2.56	海砂

表-2 メタカオリンジオポリマーの配合

記号	%	kg/m ³			
		AS	KCl	MK	S
MK80	80	362	8.99	463	1350
MK100	100	394	9.79	403	1350
MK120	120	418	10.40	357	1350

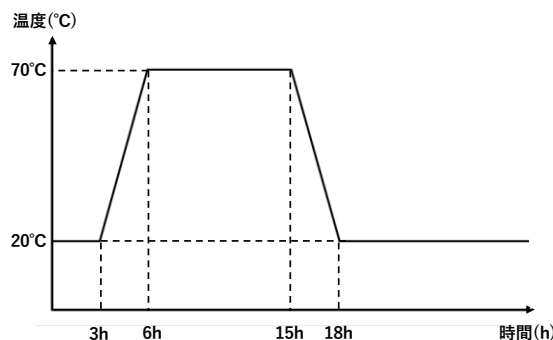


図-1 加温養生時の温度履歴

材齢まで 20°C 恒温室内で養生させた。

2.3 浸漬方法

供試体作製後, 材齢 7 日の供試体を精製水に浸漬させた。固液比は容積比で 1:1, 浸漬温度は 20°C, 40°C, 80°C の 3 種類とした。また, 浸漬時は供試体によるカリウムの溶出量のばらつきを抑えるために同一水準の供試体 3 本を 1 つの浸漬容器に静置した。濃度分析用試料の採取期間は, 浸漬開始から浸漬 1 日までは 10 分, 30 分, 1 時間, 3 時間, 6 時間, 9 時間, 24 時間で行い, その後は浸漬開始から 1 週間ごとに採取した。試料採

取後、5C の濾紙でろ過し、イオンクロマトグラフィを用いてカリウムの濃度を測定し、浸漬溶液に溶出したカリウムの質量を求め、供試体 1 本あたりのカリウムの溶出割合から溶出特性を評価した。材料由来のカリウムが微小であることから、溶出割合は添加した KCl 溶液に含まれるカリウムの全量に対する溶出したカリウムの質量比とした。

3. 結果と考察

3.1 溶出特性

図-1 に浸漬温度 20℃ のときの浸漬期間と供試体 1 本あたりのカリウムの溶出割合の関係を示す。カリウムの溶出割合は常温養生、加温養生どちらも浸漬 24 時間までに急激に増加する一方、その後は緩やかに増加し、常温養生した供試体は 2.3% 前後、加温養生した供試体は 1.3% 前後で推移している。また、浸漬 24 時間までに注目すると、浸漬 1 週間でのカリウムの溶出量に対して、浸漬 24 時間までに 50~60% のカリウムが溶出している。これは、添加したカリウムの大部分はメタカオリン GP の構造体に取り込まれ、固定化されている一方、一部のカリウムは固定化されず、脱水反応により発生した自由水に溶出した状態で存在する。このカリウムの大部分が浸漬 24 時間までに溶出しているが、時間の経過にともない、固定化されていないカリウムイオンが減少したことで、結果的にカリウムの溶出量が減少したと考えられる。

3.2 加速倍率

加速倍率とは、常温環境下 (20℃) での浸漬時に溶出したカリウムに対する高温環境下 (40℃, 80℃) での浸漬時に溶出したカリウムの溶出割合の比である。20℃ 浸漬時に対する 40℃, 80℃ 浸漬時の加速倍率をそれぞれ加速倍率 (40℃), 加速倍率 (80℃) と表す。

図-2 に浸漬 4 週間までの浸漬期間と加速倍率の関係を示す。加速倍率は短期間で急激に増加し、浸漬 24 時間でピークを迎えるが、浸漬 1 週間でわずかに減少し、これ以降は加速倍率 (80℃) の常温養生は約 2 倍、加温養生は約 2.9 倍に収束した。そのため、浸漬初期における加速倍率は実際の加速倍率より大きくなる傾向があるが、浸漬 1 週間で加速倍率は収束し、一定の値をとる傾向がある。

図-3 に浸漬温度と加速倍率の関係を示す。養生条件が同じであれば、溶液粉体比にかかわらず加速倍率はおおむね同じ値を示し、比例の関係である。そのため、

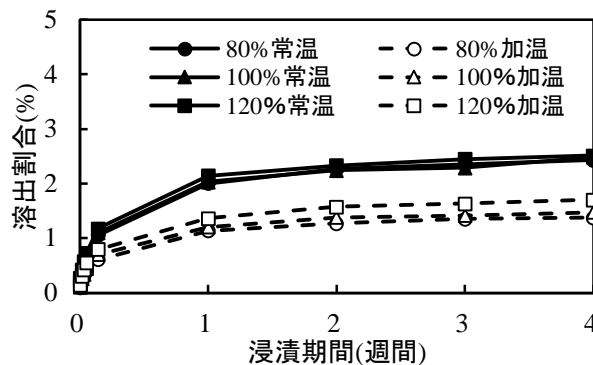


図-1 浸漬期間とカリウムの溶出割合の関係

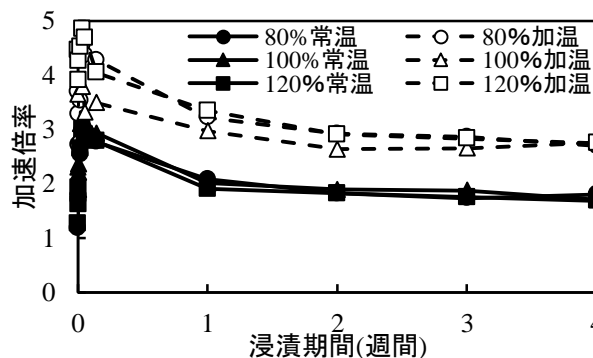


図-2 浸漬期間と加速倍率 (80℃) の関係

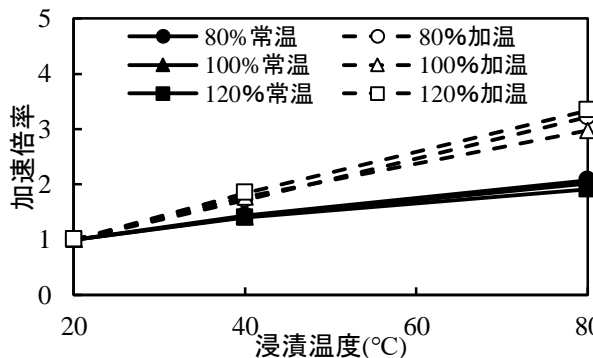


図-3 浸漬温度と加速倍率の関係

80℃以上の環境下で浸漬したときの加速倍率は推定可能であることが示唆された。

4. まとめ

- (1) 浸漬 24 時間までに溶出するカリウムの量は浸漬 1 週間で溶出されるカリウムの量の 50~60% である。
- (2) 浸漬初期における加速倍率は、実際より大きくなる傾向があるが、その後は一定値に収束する。
- (3) 浸漬温度と加速倍率は比例の関係にあり、加速倍率を推定することができる。

参考文献

- (1) 遠藤和人: 放射性物質汚染廃棄物の最終処分の現状と今後の展開, 廃棄物資源循環学会誌, Vol.30, No.1, pp39-48, 2019
- (2) 日本コンクリート工学会: 「建設分野へのジオポリマー技術の適用に関する研究委員会」報告書, 2017