

令和 4 年 6 月 2 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H00883

研究課題名（和文）ジオミメティクスを活用した放射性核種の長期安定化への技術革新

研究課題名（英文）Innovation of long-term stabilization of radioactive nuclides using geomimetics

研究代表者

笹木 圭子（Sasaki, Keiko）

九州大学・工学研究院・教授

研究者番号：30311525

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 35,300,000円

研究成果の概要（和文）：AFm中では陰イオンの水和度と価数が安定性に影響を与える重要な因子として考えられる。CaAl系AFm中のセレン酸はイオン化されたアミノ酸のうちとくにシステインとイオン交換しやすく、アミノ酸のカルボキシル基は、Ca-O化学結合の形成を伴って、価数の大きいAlではなく、原子サイズの大きいCaと結合しやすいことが初めてDFT計算により明らかにされた。ジオポリマー固化されたセレン酸の浸出率は、ジオポリマー中のSi/Alモル比の増加とともに増大した。EXAFS解析により、亜セレン酸、セレン酸イオンのいずれもが、化学結合ではなく、静電相互作用によってジオポリマー中にとどまっていることが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

知見の乏しい陰イオン放射性核種の安定性に関して、その主要なマトリクスとなるAFm中での水分子の影響について、また低層に埋設される場合の有機物モデルであるアミノ酸とのイオン交換反応について、実験及びDFT計算を適用し原子レベルで考察した結論は、低レベル放射性核種の長期安定性に対して有用な知見を与えるだけでなく、DFT理論の微小スケールでありながら環境インパクトの強い問題へ応用した少ない例として学術的意義がある。またCO<sub>2</sub>削減を目指しセメント固化に代わりうるジオポリマー固化を陰イオン性核種に適用した場合の固化機構及び安定性についても実用的に有用な知見を与えている。

研究成果の概要（英文）：In AFm, the hydration and valence of anions are considered to be important factors affecting stability. Among the ionized amino acids, cysteine is particularly easy to ion-exchange with selenate in CaAl-based AFm, and the carboxyl group of the amino acid is involved in the formation of Ca-O chemical bonds but is not interacted with Al having a larger valence, which was verified by DFT calculations for the first time. The leaching rate of selenate solidified in the geopolymer increased with increasing Si / Al molar ratio. EXAFS analysis revealed that both selenite and selenate ions remain in the geopolymer by electrostatic interaction rather than chemical bonds.

研究分野：総合工学

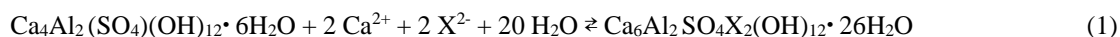
キーワード：ジオミメティクス 層状複水酸化物 陰イオン性核種 アミノ酸 固化安定化

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

高レベル放射性廃棄物よりもはるかに膨大な発生量にのぼる低レベル放射性廃棄物のビット処分では、廃棄物はセメント系充填剤に覆われる。アルカリ条件下では、陰イオンを取り込む安定なマトリクスとして、層状複水酸化物が生成する。セメントに覆われた条件下では、Ca系層状複水酸化物であるハイドロカルマイト(calcium aluminate ferrite monosulfate phase, AFm) はさらに安定化するとともに結晶成長し、 $\text{IO}_3^-$ 、 $\text{SeO}_3^{2-}$ 、 $\text{SeO}_4^{2-}$ などの陰イオンを層間に保持する(インターカレーション)が、申請者らはこの相が徐々にカラム型結晶であるエトリンガイト(calcium aluminate ferrite trisulfate phase, AFt) に変化していくことを確認している。AFtはセメント固化プロセスで陰イオンを閉じ込め最終的に到達する安定相と考えられていたが、1分子に24~26個もの結晶水を持ち、温度、湿度、pHなどの環境因子に影響を受けやすく脆弱であることが明らかとなってきた。

本研究では、相変化 AFm→AFt を妨げる因子を地下環境に普遍的に存在する鉱物の中から探索し、陰イオン放射性核種をより安定にとじこめる層状複水酸化物(AFm)を維持する方法を明らかにする。セメントに比較的多い  $\text{SO}_4^{2-}$  イオンを取り込んだ AFm ( $\text{Ca}_4\text{Al}_2(\text{SO}_4)(\text{OH})_{12}\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) および AFt ( $\text{Ca}_6\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12}\cdot 26\text{H}_2\text{O}$ ) はともに難溶性塩(それぞれの  $K_{sp}$  は  $3.72\times 10^{-30}$  および  $9.93\times 10^{-45}$ ) であり、この二相間は溶存イオンをほとんど經由することなく、固液界面だけで次式のように相変化する。



このときには、第二の陰イオン(X)の取り込みを伴う場合がある。水分子を伴って崩壊と再沈殿が同時に起こる水和反応は希薄な汚染物質を固相へ濃集する方法として、廃水処理ではよく利用されているものの、その局所的固液界面現象は理論的にはよく説明されていない。本研究では、相平衡(1)式を左へ傾ける共存結晶相の探索とその機構の解明、地中に存在する有機物(とくにカルボン酸やアミノ酸)による結晶相 AFm や AFt の安定性に及ぼす影響、従来の固化技術であるセメント固化法の欠点をカバーするジオポリマー固化法の適用の検討を行い、環境リスクの高い放射性核種の長期安定化技術の高度化をはかる。低レベル放射性廃棄物は深度数10メートル域に埋設され、周辺には有機層が存在する。アルカリ環境では、有機物は流動的となり、低分子有機陰イオンは AFm や AFt と相互作用し、構造を崩壊させる。このようなリスクを回避し、水分子を含む AFm や AFt に濃集された放射性核種の長期的安定性を格段に向上させるために、ジオポリマー固化法の適用とその最適化を行う。放射性核種の埋設において、セメント固化法が用いられているものの、極度に強アルカリの条件下では崩壊するリスクが懸念されている。これに対してジオポリマーは、酸・アルカリ、湿度に強く、セメントよりも軽量であり、製造時の  $\text{CO}_2$  排出量はセメントに対して70%減を達成しており、第三世代コンクリートとして土木材料に活用され始めている。機械的強度は十分高いと評価されているが、放射性核種を取り込むマトリクスとしての特性はまだほとんど注目されていない。放射性核種埋設の用途にあっては、単に機械的強度のみではなく、拡散リスクをいかに小さくすることができるか、元素の結合状態の観点からの検討を要する。

本研究課題の核心をなす学術的課題の一つ目は、局所的な界面において溶存種を伴うことなく起こる相変化に対して駆動力となる因子を解明することである。バルク水の水質にはまったく変化を与えず、水圏にある固相同士の界面において相変化を促進または抑制する機構については不明な点が多い。二つ目には、非晶質であるジオポリマーへ埋設された放射性核種の原子レベルでの局在性、さらにはその化学的安定性を解明することである。これらは、セメント化学を利用する土木工学をはじめ、固液界面現象の溶解再沈殿や共沈プロセスを利用する大規模な総合工学分野に有用な知見を与える。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、半減期が長く環境中で拡散しやすい陰イオン放射性核種をより安定に埋設できるマトリクスとして、いったん生成した層状複水化合物が相変化しない条件を見出し、そのメカニズムを明らかにするとともに、ジオミメティクスを活用したジオポリマー固化法を提案することである。エトリンサイト(AFt)の脆弱性が指摘されてきたのは2004年ごろからで、それまではAFtの結晶成長促進剤や安定化剤の研究がおこなわれてきた。従来AFtは、幅広い陰イオンを取り込み、セメントに埋設した放射性核種の最終的なマトリクスといわれてきたが、50以下の熱にさえも不安定で、結晶水がはずれるとカラムの配列に規則性が失われ、陰イオンは脱離すること、35%の相対湿度においてもAFtの格子定数 $c$ が減少し、格子定数 $a$ が増加するなど結晶中の水素結合に変化が起こることが報告され、AFtは放射性核種の不溶化に適切なマトリクスとはみなすことはできなくなっている。そこで、(i)AFtに変化しにくい条件を明らかにし、AFmを安定化するとともに、(ii)AFtやAFmが崩壊しても、核種が漏洩しない固化体形成法を、セメントの弱点を凌駕するジオポリマーによって達成し、二重の安定化対策とする。

土壌中には土壌性有機物が存在し、その半分以上は動植物遺骸に由来する腐植物質である。その可溶性成分のうちアルカリ条件でAFmやAFtと相互作用するものは、分子構造中にカルボキシル基をもつ有機酸やアミノ酸である。これらはAFmやAFtの安定生成域であるpH10-12では解離し、有機陰イオンとなる。これらは分子サイズによっては、炭酸イオンに類似して他の陰イオンよりも優先的にAFmにインターカレートすると考えられ、陰イオン放射性核種の取り込みに影響を与える。層状複水酸化物とアミノ酸の相互作用については、ドラッグデリバリーシステムでの検討例はあるものの、金属の組み合わせ、pH、アミノ酸濃度などの点で、セメント材料反応系には適用困難である。これらを踏まえると、有機酸やアミノ酸の相変化AFm AFtへの影響や、AFmの安定性に対する有機酸やアミノ酸の影響についてはこれまでほとんど検討されていないといっても過言でない。

セメント化学の観点から行われたAFmの安定化に関する研究例は見当たらず、本研究ではこれに取り組む。ジオポリメリゼーションにおける核種の原子レベルでの局在性を知ることにより、結合状態、固化メカニズム、化学的安定性を推定する。

## 3. 研究の方法

セメント固化体中で形成される層状複水酸化物(LDH)は放射性オキソ陰イオン核種のマトリクスとなるため、核種を取り込んだLDHの安定性に対するアミノの影響を予測し、実験と理論計算により、とくに移動性の高いセレン酸を陰イオンモデルとして検討した。

相変化 $AFm \rightleftharpoons AFt$ は平衡反応であり、本研究ではAFtの抑制因子を明らかにするためのアプローチに加え、さらにそれらをジオポリマーとして核種を安定化する方法について検討するために、具体的な課題として以下の5項目を挙げた。

**課題：放射性陰イオン核種の中でAFmに取り込まれにくいものを実験的に特定し、対象イオンの置換率による安定層(AFmまたはAFt)のDFT計算予測を実験結果と照合する。**

主要陰イオン(Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>など)を挿入したAFmに対して、セメント中の含有率の高いSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>と陰イオン放射性核種スロゲートX(= IO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SeO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, SeO<sub>3</sub><sup>2-</sup>, I<sup>-</sup>, ReO<sub>4</sub><sup>-</sup>、ただしReO<sub>4</sub><sup>-</sup>は<sup>99m</sup>TcO<sub>4</sub><sup>-</sup>の代替種)を共存させたときに、Xの取り込みやすさおよびAFtへの相変化のしやすさを評価する。イオンの水和状態が相の安定性にかかわっていると考えられ、異なる結合力をもつ構造水を示差走査熱量測定法(DSC)により識別定量評価する。

AFmおよびAFtの構造内にある主要イオンを1個ずつXに置換したときのAFmおよびAFtの生成自由エネルギーの変化をDFT計算する。AFmがAFtに優る安定領域にはいるための対

象陰イオンごとの置換率を DFT 計算により予測する。さらに  $^{99m}\text{TcO}_4^-$  は入手不可能であり実験できないが、DFT 計算により予測し、代替種  $\text{ReO}_4^-$  の実験結果と照合する。

**課題 : 共存結晶相による AFm の安定化メカニズムを明らかにする。**

AFm は  $\text{Mg}(\text{OH})_2$  (brucite) の添加により安定化するが、 $\text{Al}(\text{OH})_3$  (gypsum) や  $\alpha\text{-FeOOH}$  (goethite) によっては安定化しない。特注セルを装備した XAFS のその場観測によって、これらのジオミメティクスの固相表面で起こる反応過程を追跡し、共存結晶相により AFm AFt の相変化を妨げ、AFm を安定化する要因を明らかにする。DFT 計算結果と実験結果を組み合わせ、イオン置換が相変化 AFm  $\rightleftharpoons$  AFt に及ぼす影響について、論文作成の打合せを九大または Penn State で行う。有機酸インターカレーションによる AFm の層剥離について DFT 計算からもアプローチする。

**課題 : 有機酸やアミノ酸の AFm および AFt の構造安定性に対する影響を定量的に評価する。**

有機酸およびアミノ酸のモデル物質によりアルカリ条件における AFm や AFt との相互作用およびそれによる AFm や AFt の構造安定性への影響を調べる。有機酸およびアミノ酸のモデルとして、酢酸アンモニウム、フェニルアラニンを用いてインターカレーションを pH10 ~ 12 で行い、AFt 化に及ぼす影響を定量的に調べる。AFm の層間距離が拡張し、吸着サイトをより有効に使うことにより、陰イオン核種の吸着効率が高まるが、層間距離の拡張がさらに進めばディラミネーションに至り AFm の構造が崩壊する。CO<sub>3</sub> 型 AFm から SO<sub>4</sub> 型 AFm に変化し、さらに SO<sub>4</sub> 型 AFt が生成することを予備試験により確認していることから、カルボキシル基をもつ有機酸やアミノ酸濃度が高い条件では SO<sub>4</sub> 型 AFm ができにくく、AFt 化しにくい可能性がありこれを検証する。構造特性化には、XRD(低角)、Zeta 電位測定、TEM 観察、必要に応じて AFM 観察を行う。

**課題 : ジオポリマー合成条件 (Si/Al/Ca 比、水/粉体重量比、養生条件等) を最適化する。**

結合材として、ジオミメティクス(例えば産業副産物である高炉水砕スラグ、フライアッシュ、シリカヒューム等)を活用し、Si:Al:Ca の配合比を検討しながら、NaOH 溶液で混練し、蒸気養生により固化処理を行う。各原料の粒径、組成 (Si:Al:Ca 比)、水/粉体比、蒸気養生条件 (温度、湿度、時間等) のパラメータを最適化していく。

**課題 : ジオポリマー固化体中の核種元素の局所分析を通して結合状態を推定する。**

固化体の圧縮強度測定や、含有する結晶相の同定は、放射性核種の代替元素の濃度を低いままで行い、それとは別に、核種元素の局所観察をやすくするために、 $^{79}\text{Se}$  や  $^{129}\text{I}$  のような放射性核種の代替元素を擬似的にスパイクした条件で、局所観察専用の試料を作成する。TEM-EDX、顕微 FTIR/Raman や EXAFS により結合状態を解析する。

またジオポリマーの固化プロセスを  $^{27}\text{Al}$ -NMR や  $^{29}\text{Si}$ -NMR スペクトルの経時変化を追跡、放射光 XRD によりジオポリメリゼーションの過程をその場観察することによって、化学結合を伴う強靱な無機ポリマーの形成過程を明らかにする。

#### 4. 研究成果

ジオミメティクスを活用した陰イオン放射性核種の長期安定化に向けて、(1) AFm の安定化因子 (課題 )、(2) 有機酸の影響 (課題 )、(3) ジオポリマー固化 (課題 ) について検討を行った。

(1) AFm の安定化因子 : AFm は AFt に相変化することが一部の予備試験からわかっていたので、放射性核種モデルイオンである  $\text{I}^-$ ,  $\text{IO}_3^-$ ,  $\text{SeO}_4^{2-}$ ,  $\text{SeO}_3^{2-}$ ,  $\text{TcO}_4^-$  のいずれかが陰イオンとして AFm にとりこまれているときの AFt への相変化について実験的に調べた。AFm1 モルには 4 モルの構造水が含まれ (2 モルは自由水、2 モルは Ca 原子に配位) ているが、この数および配位状態は陰イオンの価数には影響を受けていなかった。IO<sub>3</sub><sup>-</sup> のように水和度は高いが一価の陰イオンは AFm から AFt への相変化を幫助せず、二価の陰イオンだけが AFm から AFt への相変化を幫助した。一価の陰イオンは AFm の層間距離を一定に維持し、二価の陰イオンは AFm の層間距離

を有意に拡張し、Aft への相変化に移行した。DFT 計算 (convex hull energy calculation) によれば、一価の陰イオンは AFm 中のほうが Aft 中よりもより安定であり、一方二価の陰イオンは AFt 中のほうが Afm 中よりもエネルギー的に安定であることが自由エネルギー計算から推定された。このことは AFm からの Aft への相変化をコントロールする本質的で重要な因子と考えられる。つまり、構造水の多い陰イオンは AFm の層間距離を拡張しやすく、自由水が Ca 原子に配位し、AFm から Aft に相変化を促しやすく、一方構造水のより少ない陰イオンは、AFm の中にとどまる傾向が強い。

(2) 有機酸の影響：セメント固化体中で形成される層状複水酸化物(LDH)は放射性オキソ陰イオン核種のマトリクスとなる。核種を取り込んだ LDH の安定性に対する土壌圏のアミノの影響を予測し、実験と理論計算により、とくに移動性の高いセレン酸を陰イオンモデルとして検討した。異なるアミノ酸 5 種を検討したところ、セレン酸の不安定化への影響はアミノ酸の種類に依存していた。MgAl-LDH は CaAl-LDH に比べてかなり安定であるが、総じて芳香族性を持つ Trp, Phe はインターカレーションが起こりにくく殆ど影響を与えなかった。一方、芳香族性がなく小分子である Gly, Asp, Cys はイオン交換を伴いセレン酸の溶出を促進した。MgAl-LDH の場合では、定常状態に至った固体残渣の XRD 解析から得られた LDH の層間距離は、DFT 計算から予測されたセレン酸およびイオン化されたアミノ酸単分子が LDH の金属層に配位したものと比較的良好一致を示し、アミノ酸と MgAl-LDH の金属層の間の相互作用は水素結合であると推定された。これに対して、CaAl-LDH の場合では、定常状態に至った固体残渣の XRD 解析から得られた LDH の層間距離は複雑で、残留セレン酸の水和状態の異なるものが複数見られ、イオン化されたアミノ酸に加え、炭酸イオンの影響も重なった。DFT 計算により収束した構造モデルによれば、アミノ酸と CaAl-LDH の金属層の間の相互作用は水素結合のほかに Ca-O 化学結合の形成が関わっていた。イオン化されたアミノ酸のカルボキシル基は、価数の大きい Al ではなく、原子サイズの大きい Ca と結合しやすいことが初めて理論的に説明された。Cys は Asp や Gly とは異なり、炭酸イオンを介在させにくく、セレン酸をより安定に LDH の層間に留める特徴も明らかであった。以上の結果は、低レベル放射性核種の長期安定性に対して有用な知見を与える。

(3) ジオポリマー固化：陰イオン核種のジオポリマー固化について、とくに不動化されにくいセレン (Se) 化学種であるセレン酸および亜セレン酸について検討した。Se オキシアニオンの浸出率は、ジオポリマー中の Si/Al モル比の増加とともに増加した。セレン化学種を固定したジオポリマーの EXAFS スペクトル解析により、亜セレン酸、セレン酸イオンのいずれもが、化学結合ではなく、静電相互作用によってジオポリマー中にとどまっていることが確認された。したがって、ジオポリマー構造の Al 四面体は、これらのオキシアニオンの安定性を大きく左右し、Al の割合が高いほどこれらのオキシアニオンは安定化されやすいといえる。これらのセレン化学種の添加は、ジオポリマーの物理的緻密性を低下させ、より浸出しやすいものへと変化させた。ただし、浸出結果は、Si/Al 比が異なるジオポリマーの比表面積と細孔容積の変動傾向に単純には従っていなかった。物理的表面積の大きさよりもむしろ、静電的吸着サイトの数が安定性に重要な影響を与えている。Al 四面体の数と分布、およびジオポリマーのコンパクトさは、これらのオキシアニオンの固定化に複合的な影響を与える。また、ジオポリマーサンプルの機械的圧縮強度は常に 20 MPa を超えており、有害廃棄物の安定処分の要件を満たすものであった。また、前年度の陰イオンを取り込んだ層状複水酸化物に対する種々のアミノ酸の影響について、実験と DFT 計算を融合した研究結果を 3 報の論文としてまとめ公表した。セメント系に生じるセレン酸を取り込んだハドロカルマイトに対して比較的イオン交換量が大きな Asp, Cys, Gly について、イオン交換後の構造を構造緩和計算により予測し、得られた格子定数は実験で観測したものと比較的良好一致を示した。安定化構造からアミノ酸のカルボキシル基と Ca 原子の親和性がセレン酸を不安定にする主因と推定される。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計32件（うち査読付論文 32件 / うち国際共著 20件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sasaki Keiko, Nakama Shingo, Tian Quanzhi, Guo Binglin, Wang Mengmeng, Takagi Ryoichi, Takahashi Tomohiko	4. 巻 9
2. 論文標題 Elution characteristics of undesirable anionic species from fly ash blended cement in different aqueous solutions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Chemical Engineering	6. 最初と最後の頁 105171 ~ 105171
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jece.2021.105171	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Wang Mengmeng, Akamatsu Hirofumi, Dabo Ismaila, Sasaki Keiko	4. 巻 274
2. 論文標題 Environmental impact of amino acids on the release of selenate immobilized in hydrotalcite: Integrated interpretation of experimental and density-functional theory study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 129927 ~ 129927
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemosphere.2021.129927	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Tian Quanzhi, Chen Changshuai, Wang MengMeng, Guo Binglin, Zhang Haijun, Sasaki Keiko	4. 巻 274
2. 論文標題 Effect of Si/Al molar ratio on the immobilization of selenium and arsenic oxyanions in geopolymer	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Pollution	6. 最初と最後の頁 116509 ~ 116509
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.envpol.2021.116509	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Tian Quanzhi, Guo Binglin, Sasaki Keiko	4. 巻 387
2. 論文標題 Immobilization mechanism of Se oxyanions in geopolymer: Effects of alkaline activators and calcined hydrotalcite additive	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Hazardous Materials	6. 最初と最後の頁 121994 ~ 121994
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jhazmat.2019.121994	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Guo Binglin, Xiong Yihuang, Chen Weinan, Saslow Sarah A., Kozai Naofumi, Ohnuki Toshihiko, Dabo Ismaila, Sasaki Keiko	4. 巻 389
2. 論文標題 Spectroscopic and first-principles investigations of iodine species incorporation into ettringite: Implications for iodine migration in cement waste forms	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Hazardous Materials	6. 最初と最後の頁 121880 ~ 121880
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jhazmat.2019.121880	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Tian Quanzhi, Guo Binglin, Sasaki Keiko	4. 巻 395
2. 論文標題 Influence of silicate on the structural memory effect of layered double hydroxides for the immobilization of selenium	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Hazardous Materials	6. 最初と最後の頁 122674 ~ 122674
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jhazmat.2020.122674	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tian Quanzhi, Guo Binglin, Chuaicham Chitiphon, Sasaki Keiko	4. 巻 248
2. 論文標題 Mechanism analysis of selenium (VI) immobilization using alkaline-earth metal oxides and ferrous salt	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 126123 ~ 126123
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemosphere.2020.126123	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Luo Wuhui, Huang Qidong, Antwi Philip, Guo Binglin, Sasaki Keiko	4. 巻 560
2. 論文標題 Synergistic effect of ClO <sub>4</sub> <sup>-</sup> and Sr <sup>2+</sup> adsorption on alginate-encapsulated organo-montmorillonite beads: Implication for radionuclide immobilization	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Colloid and Interface Science	6. 最初と最後の頁 338 ~ 348
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcis.2019.10.049	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Sasaki Keiko, Hayashi Yoshikazu, Nakamura Takeshi, Guo Binglin, Tian Quanzhi	4. 巻 254
2. 論文標題 Stabilization of borate by hot isostatic pressing after co-precipitation with hydroxyapatite using MAP	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemosphere	6. 最初と最後の頁 126860 ~ 126860
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemosphere.2020.126860	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Guo Binglin, Tian Quanzhi, Oji Tsubasa, Wang Lei, Sasaki Keiko	4. 巻 610
2. 論文標題 Effects of Mg compounds in hydroxylated calcined dolomite as an effective and sustainable substitute of lime to precipitate as ettringite for treatment of selenite/selenate in aqueous solution	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects	6. 最初と最後の頁 125782 ~ 125782
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.colsurfa.2020.125782	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Guo Binglin, Tan Yongshan, Wang Lei, Chen Liang, Wu Zuliang, Sasaki Keiko, Mechtcherine Viktor, Tsang Daniel C.W.	4. 巻 408
2. 論文標題 High-efficiency and low-carbon remediation of zinc contaminated sludge by magnesium oxysulfate cement	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Hazardous Materials	6. 最初と最後の頁 124486 ~ 124486
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jhazmat.2020.124486	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Tian Quanzhi, Guo Binglin, Nakama Shingo, Zhang Li, Hu Zhaochu, Sasaki Keiko	4. 巻 86
2. 論文標題 Reduction of undesirable element leaching from fly ash by adding hydroxylated calcined dolomite	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Waste Management	6. 最初と最後の頁 23 ~ 35
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.wasman.2019.01.027	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する



1. 著者名 Muthu Prabhu Subbaiah, Kancharla Srinivasarao, Park Chang Min, Sasaki Keiko	4. 巻 21
2. 論文標題 Synthesis of modulator-driven highly stable zirconium-fumarate frameworks and mechanistic investigations of their arsenite and arsenate adsorption from aqueous solutions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 CrystEngComm	6. 最初と最後の頁 2320 ~ 2332
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8ce01424h	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kancharla Srinivasarao, Sasaki Keiko	4. 巻 7
2. 論文標題 Acid tolerant covalently functionalized graphene oxide for the selective extraction of Pd from high-level radioactive liquid wastes	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry A	6. 最初と最後の頁 4561 ~ 4573
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8TA09849B	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Prabhu Subbaiah Muthu, Imamura Shunsuke, Sasaki Keiko	4. 巻 7
2. 論文標題 Mono-, Di-, and Tricarboxylic Acid Facilitated Lanthanum-Based Organic Frameworks: Insights into the Structural Stability and Mechanistic Approach for Superior Adsorption of Arsenate from Water	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Sustainable Chemistry & Engineering	6. 最初と最後の頁 6917 ~ 6928
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acssuschemeng.8b06489	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Tian Quanzhi, Sasaki Keiko	4. 巻 156
2. 論文標題 Characterizations of calcium silicate hydrates derived from coal fly ash and their mechanisms for phosphate removal	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 DESALINATION AND WATER TREATMENT	6. 最初と最後の頁 78 ~ 86
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5004/dwt.2019.24135	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Subbaiah Muthu Prabhu, Radheshyam Rama Pawar, Keiko Sasaki, Chang Min Park	4. 巻 379
2. 論文標題 A mechanistic investigation of highly stable nano ZrO <sub>2</sub> decorated nitrogen-rich azacytosine tethered graphene oxide-based dendrimer for the removal of arsenite from water	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chem. Engng. J.	6. 最初と最後の頁 1474-1484
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cej.2019.03.227	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Xinhong Qiu; Keiko Sasaki, Keiko; Shuang Xu; Jiawen Zhao	4. 巻 35
2. 論文標題 The double-edged effect of humic acid on multiple sorption modes of calcined layered double hydroxides: inhibition and promotion	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 6267-6278
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.8b04196	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Quanzhi Tian, Shingo Nakama, Keiko Sasaki	4. 巻 687
2. 論文標題 Immobilization of cesium in fly ash-silica fume based geopolymers with different Si/Al molar ratios	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Science and the Total Environment	6. 最初と最後の頁 112-137.
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenvj.2019.06.095	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Binglin Guo, Shingo Nakama, Quanzhi Tian, Niko Dian Pahlevi, Li Zhang, Zhaochu Hu, Keiko Sasaki	4. 巻 371
2. 論文標題 Suppression mechanisms of anionic pollutants released from fly ash by different Ca additives	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Hazard. Mater.	6. 最初と最後の頁 474-483.
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jhazmat.2019.03.036	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Paulmanickam Koilraj, Rajathsingh Kalusulingam, Keiko Sasaki	4. 巻 374
2. 論文標題 Arginine and Lysine functionalized layered double hydroxides as an efficient sorbent for radioactive Co <sup>2+</sup> removal by chelation facilitated immobilization	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Engineering Journal	6. 最初と最後の頁 359-369.
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cej.2019.05.166	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Quanzhi Tian, Keiko Sasaki	4. 巻 26
2. 論文標題 Application of fly ash-based materials for stabilization/solidification of cesium and strontium	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Environmental Science and Pollution Research	6. 最初と最後の頁 23542-23554
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11356-019-05612-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Quanzhi Tian, Keiko Sasaki	4. 巻 79
2. 論文標題 Application of fly ash-based geopolymer for removal of cesium, strontium and arsenate from aqueous solutions: Kinetic, equilibrium and mechanism analysis	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Water Science and Technology	6. 最初と最後の頁 2116-2125.
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2166/wst.2019.209	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Xu Shuang, Zhao Jiawen, Yu Qianqian, Qiu Xinhong, Sasaki Keiko	4. 巻 3
2. 論文標題 Effect of Natural Organic Matter Model Compounds on the Structure Memory Effect of Different Layered Double Hydroxides	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Earth and Space Chemistry	6. 最初と最後の頁 2175 ~ 2189
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsearthspacechem.9b00175	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Luo Wuhui, Huang Qidong, Antwi Philip, Guo Binglin, Sasaki Keiko	4. 巻 560
2. 論文標題 Synergistic effect of ClO <sub>4</sub> <sup>-</sup> and Sr <sup>2+</sup> adsorption on alginate-encapsulated organo-montmorillonite beads: Implication for radionuclide immobilization	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Colloid and Interface Science	6. 最初と最後の頁 338 ~ 348
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcis.2019.10.049	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Xu Shuang, Zhao Jiawen, Yu Qianqian, Qiu Xinhong, Sasaki Keiko	4. 巻 392
2. 論文標題 Understanding how specific functional groups in humic acid affect the sorption mechanisms of different calcinated layered double hydroxides	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Engineering Journal	6. 最初と最後の頁 123633 ~ 123633
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cej.2019.123633	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Guo Binglin, Xiong Yihuang, Chen Weinan, Saslow Sarah A., Kozai Naofumi, Ohnuki Toshihiko, Dabo Ismaila, Sasaki Keiko	4. 巻 389
2. 論文標題 Spectroscopic and first-principles investigations of iodine species incorporation into ettringite: Implications for iodine migration in cement waste forms	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Hazardous Materials	6. 最初と最後の頁 121880 ~ 121880
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jhazmat.2019.121880	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Tian Quanzhi, Guo Binglin, Sasaki Keiko	4. 巻 387
2. 論文標題 Immobilization mechanism of Se oxyanions in geopolymer: Effects of alkaline activators and calcined hydrotalcite additive	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Hazardous Materials	6. 最初と最後の頁 121994 ~ 121994
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jhazmat.2019.121994	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Tian Quanzhi, Sasaki Keiko	4. 巻 7
2. 論文標題 Structural characterizations of fly ash-based geopolymer after adsorption of various metal ions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Environmental Technology	6. 最初と最後の頁 1~11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/09593330.2019.1649469	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Wang Mengmeng, Akamatsu Hirofumi, Dabo Ismaila, Sasaki Keiko	4. 巻 288
2. 論文標題 Environmental impact of amino acids on selenate-bearing hydrocalumite: Experimental and DFT studies	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Pollution	6. 最初と最後の頁 117687 ~ 117687
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.envpol.2021.117687	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Wang Mengmeng, Akamatsu Hirofumi, Sasaki Keiko	4. 巻 11
2. 論文標題 Influence of Amino Acids on the Mobility of Iodide in Hydrocalumite	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Minerals	6. 最初と最後の頁 836 ~ 836
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/min11080836	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tian Quanzhi, Pan Yin Hai, Bai Yingchu, Sasaki Keiko	4. 巻 29
2. 論文標題 Immobilization of strontium in geopolymers activated by different concentrations of sodium silicate solutions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Science and Pollution Research	6. 最初と最後の頁 24298 ~ 24308
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11356-021-17553-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 8件）

1. 発表者名 Mengmeng Wang, Hirofumi Akamatsu, Keiko Sasaki
2. 発表標題 Interaction of amino acids with selenate-bearing hydrocalumite as a model of radioactive waste
3. 学会等名 CINEST 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Binglin Guo, Yihuang Xiong, Weinan Cheng, Sarah Saslow, Ismaila Dabo Keiko Sasaki
2. 発表標題 First-Principles Investigations into Iodide and Iodate Incorporation Mechanism into Ettringite
3. 学会等名 Goldschmidt 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Quanzhi Tian, Binglin Guo, Shingo Nakama, Li Zhang, Zhaochu Hu, Keiko Sasaki
2. 発表標題 Suppression of Anionic Pollutant Leaching from Coal Fly Ash by Adding Hydroxylated Calcined Dolomite
3. 学会等名 Goldschmidt 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shunsuke Imamura, Radheshyam Rama Pawar, Keiko Sasaki
2. 発表標題 Novel ultrasonic-assisted modulated hydrothermal synthesis of Zr-fumarate framework (MOF-801) for adsorption of antimonate in aqueous solutions: A comparison study with conventional solvothermally synthetic method
3. 学会等名 CINEST 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shingo Nakama, Keiko Sasaki, Ryoichi Takagi, Tadahiro Kawahara
2. 発表標題 Suppression of anionic pollutants released from fly ash by different Ca additives and its application to cement
3. 学会等名 CINEST 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Mengmeng Wang, Keiko Sasaki
2. 発表標題 Environmental impact of amino acids on the stability of layered double hydroxides bearing 79Se042-
3. 学会等名 CINEST 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Mengmeng Wang, Keiko Sasaki
2. 発表標題 Environmental impact of amino acids on the stability of layered double hydroxides bearing 79Se042-
3. 学会等名 CINEST 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 仲摩 慎剛、笹木 圭子、高木 亮一、河原 忠弘
2. 発表標題 部分水和焼成ドロマイトの添加による フライアッシュ含有セメントからの有害イオンの溶出抑制機構
3. 学会等名 資源・素材学会秋季大会 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高木亮一、松浦忠孝、仲摩慎剛、笹木圭子
2. 発表標題 石炭灰を用いたセメント硬化体の有害元素溶出抑制に関する検討
3. 学会等名 コンクリート工学会 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 MENGMENG WANG, HIROFUMI AKAMATSU, ISMAILA DABO, KEIKO SASAKI
2. 発表標題 Environmental impact of amino acids on the stability of hydrotalcite after bearing SeO4 <sup>2-</sup> integrated with DFT simulation
3. 学会等名 Goldschmidt 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Binglin Guo, Keiko Sasaki	4. 発行年 2021年
2. 出版社 Elsevier	5. 総ページ数 34
3. 書名 Low Carbon Stabilization and Solidification (S/S) of Hazardous Wastes	

〔出願〕 計0件

〔取得〕 計1件

産業財産権の名称 ほう素含有水の処理方法	発明者 笹木圭子、ほか5名	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2019-13040	取得年 2021年	国内・外国の別 国内



〔その他〕

九州大学工学研究院地球資源システム工学部門資源処理・環境修復工学研究室 研究プロジェクトの紹介  
<http://process.mine.kyushu-u.ac.jp/Theme.html>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	赤松 寛文  (Akamatsu Hirofumi)  (10776537)	九州大学・工学研究院・准教授    (17102)	
研究分担者	出光 一哉  (Idemitsu Kazuya)  (10221079)	九州大学・工学研究院・教授    (17102)	
研究分担者	三木 一  (Miki Hajime)  (10706386)	九州大学・工学研究院・准教授    (17102)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------