

論文 合成 C-A-S-H の Cs 吸着に伴う組成および構造の評価

富田 さゆり*1・五十嵐 豪*2・山田 一夫*3・丸山 一平*4

要旨: 本研究では、コンクリートの放射性物質による汚染量を予測することを目的に、セメントペーストの主要な水和物であるカルシウムアルミノシリケート水和物 (C-A-S-H) のセシウム (Cs) 吸着機構を調査した。Ca/Si 比が 1.4 の C-A-S-H を合成し、Cs 吸着前後の試料に対して、組成及び構造の変化を評価した。Cs 吸着前後で鉱物組成は大きく変化しなかったが、Cs 吸着後は加温時に生じる鉱物相の変化が高温側にシフトすることが確認できた。また、Cs 吸着後も tobermorite 構造が保たれており、Cs は Al のブリッジングサイトの電荷補償に含まれることが分かった。

キーワード: カルシウムアルミノシリケート水和物, C-A-S-H, セシウム, DTG, NMR, 吸着

1. はじめに

福島第一原子力発電所 (1F) の廃炉のためには、汚染されたコンクリート廃棄物の量を推定し、合理的な解体処分計画を立てる必要がある。筆者らは 1F のコンクリートの放射性核種の濃度分布を評価することが廃棄物量の推定につながると考えた。実験や既往の知見から、濃度分布にはコンクリートの経年変化や外部環境が影響すると考え、それらを反映できる数値解析手法の構築を含む物質の移行モデルの検討を行ってきた¹⁾。その中で、カルシウムアルミノシリケート水和物 (C-A-S-H) に対する放射性核種の吸着を解明する必要があると分かった。1F 事故由来の放射性核種の中で、セシウム (Cs) が半減期の長さや放出量の観点から重要とされている²⁾。将来的に数値解析に反映するため、C-A-S-H の Cs 吸着に伴う組成および構造の変化を解明する必要がある。

多くの研究者が C-A-S-H の構造に関する研究に従事しており、C-A-S-H は鎖状の SiO₄ 四面体構造と CaO が層状になった層状ケイ酸塩構造が主要な構造であり、一部のブリッジングサイトの SiO₄ 四面体が AlO₄ 四面体と置換することが分かっている³⁾。C-A-S-H は Ca/Si 比が大きいとブリッジングサイトの四面体が Ca イオンと置換することや⁴⁾、SiO₄ 四面体と AlO₄ 四面体が置換する際には、アルカリ金属イオンによって電荷補償されること⁵⁾も報告されている。Cs の吸着については、様々な条件にて分配比が求められており、C-A-S-H の Ca/Si 比が Cs の吸着量に影響が大きいこと、アルカリ金属の共存が Cs 吸着量に影響することが報告されている^{6),7)}。しかし、数値解析的に表現するための基礎的知見や検討は十分ではなく、C-A-S-H の Cs 吸着後の構造を詳細にした事例は

ほとんどない。

そこで、本研究では Na 共存下で C-A-S-H を合成し、Cs 吸着前後の試料に対して分析を行い、生成した物質の相組成と構造を明らかにした。本検討の成果は 1F の汚染量予測だけでなく、一般的なコンクリートに対する物質移行予測にも反映できると考える。

2. 実験方法

2.1 C-A-S-H の合成

1.4Ca(OH)₂ 試薬、非晶質シリカ (Aerosil® 200)、アルミン酸ナトリウム (Na/Al モル比(以下、Na/Al 比) : 1.4) を Ca/Si モル比 (以下、Ca/Si 比) が 1.4、Al/Si モル比 (以下、Al/Si 比) が 0.15 となるよう計量した後、不活性ガス (Ar) で置換したグローブボックス内でイオン交換水 (IEW) と混合した。Al/Si 比の設定は、Richardson らのセメントペースト硬化体の組成を参考にした⁸⁾。液固比は 30、合成温度は 50 °C、浸漬期間は 3 週間とし、期間中は 1 日 1 回程度振り混ぜた。浸漬期間終了後、グローブボックス内で吸引ろ過によって固液分離を行った。固相は真空乾燥を行った後、メノウ乳鉢を用いて微粉砕した。固液分離によって得られた固相 (1.4CASH) および液相 (1.4CASH_eq) を後述する試験方法で評価した。

2.2 Cs 吸着試験

1.4CASH を、1.4CASH_eq に CsCl を濃度が 0.1 mol/L になるよう添加した試験溶液に液固比 10 の条件で浸漬し、吸着試験を行った。浸漬温度は 20 °C、浸漬期間は 1 週間とし、再現性を確認するために同条件で試験を 2 回行った。試験中は 1 日 1 回程度振り混ぜた。浸漬期間終了後、固液分離し、固相は真空乾燥を行った。固相を入

*1 (株) 太平洋コンサルタント ソリューション技術部, 名古屋大学 大学院環境学研究科 (学生会員)

*2 名古屋大学 大学院環境学研究科 准教授 博士 (工学) (正会員)

*3 国立環境研究所 福島地域協働研究拠点 フェロー 博士 (工学) (正会員)

*4 東京大学 大学院工学系研究科 教授, 名古屋大学 大学院環境学研究科 教授, 東北大学 グリーン未来創造機構 教授 博士 (工学) (正会員)

れないブランク試料も作製し、固相を入れた場合と同じ操作を行った。以下、Cs 吸着試験後の固相を 1.4CASH-Cs、液相を 1.4CAS-Cs_eq、ブランク試料の液相を 1.4CASH-Cs-BL_eq とする。

2.3 分析方法

以下に示す方法で吸着前後の試料を分析した。

(1) 相組成評価

固相は、粉末 X 線回折装置 (XRD : Panalytical 社製 X'Pert PRO MPD) によって構成鉱物を同定した。また、示差熱・熱重量分析装置 (TG-DTA : リガク製 Thermo plus EVO2) を用いて、N₂ 雰囲気中で 10°C/分の速度で室温～1000°Cまで昇温し、重量減少量を評価した。さらに、走査型電子顕微鏡 (SEM : 日立ハイテック製 SU5000) とエネルギー分散型 X 線装置 (EDS : Oxford Instruments 製 X-MAX^N50) を用いて固相の形態観察および組成を評価した。形態観察は粉体試料を導電性カーボンテープに散布後、白金蒸着処理した試料に対して行い、鉱物同定のため、点分析も行った。化学組成分布について、試料をエポキシ樹脂で包埋後研磨し、研磨面に対して 1 試料当たり 50 点以上の点分析結果から評価した。

液相は、pH メータ (堀場製作所製 D-54, 6367-10D (pH 電極)) で pH を、ICP 発光分光分析装置 (ICP-AES : エスアイアイ・ナノテクノロジー製 SPECTRO BLUE EOP) で Ca, Si, Al, 原子吸光分光光度計 (バリアン・テクノロジー・ジャパン・リミテッド製 SpectraAA) で Na, 誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS : アジレント・テクノロジー製 Agilent 7900) で Cs の濃度を測定した。Cs は 1.0 μg/L 以下、Cs 以外は 0.5 mg/L 以下の濃度を検出限界以下とした。また、式(1)を用いて Cs の固液間の分配比 (Rd) を算出した。Rd は分配比 (L/kg), V は液相の体積 (L), M は固相の重量 (kg), C₀ は 1.4CASH-Cs-BL_eq の Cs 濃度 (mol/L), C_i は 1.4CASH-Cs_eq の Cs 濃度 (mol/L) を示す。

$$Rd = V/M \cdot (C_0 - C_i)/C_i \quad (1)$$

また、原料の計量値および液相の分析結果を基に固相の化学組成を算出した。

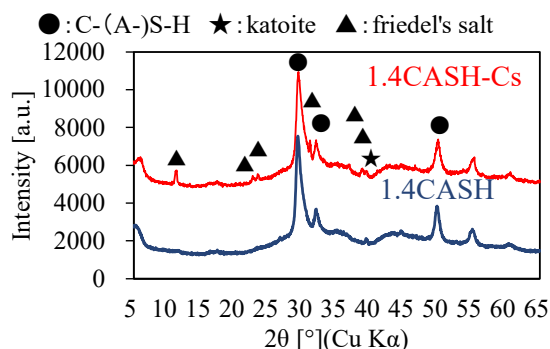


図-1 Cs 吸着前後の固相の X 線回折スペクトル

(2) 構造評価

核磁気共鳴装置 (NMR : 日本電子製 JNM-ECA600) を用いて ²⁹Si, ²⁷Al MAS NMR スペクトルを測定し、固相中の Si と Al の結合状態を評価した。また、文献⁹⁾を基にした式(2)~(4)を用いて、各ピークの面積値を基に C-A-S-H の Ca/Si 比および Al/Si 比を、さらに、下記の手順で C-A-S-H の組成を算出した。MCL は C-A-S-H のアルミノシリケートチェーンの平均鎖長、Q¹, Q_b², Q_p², Q²(1Al)は Si の結合状態ごとのピーク面積を示す。

- 1) TG-DTA で求めた H₂O 量から、²⁷Al-NMR から求めた katoite, AFm の H₂O 量を減じて、C-A-S-H 中の OH 量を算出した。
- 2) Richardson³⁾の C-A-S-H の構造モデルを基に、C-A-S-H 中の Ca, Al, Si の存在比を算出した。

$$MCL = 2 / \left(Q^1 / (Q^1 + Q_b^2 + Q_p^2 + \frac{3}{2} Q^2(1Al)) \right) \quad (2)$$

$$Al/Si = \left(\frac{1}{2} Q^2(1Al) \right) / (Q^1 + Q_b^2 + Q_p^2 + Q^2(1Al)) \quad (3)$$

$$(Ca/Si)_{max} = (MCL + 1) / (MCL) \quad (4)$$

3. 実験結果

3.1 XRD および TG-DTA

1.4CASH および 1.4CASH-Cs の XRD 測定結果を図-1 に示す。1.4CASH では、2θ=29°, 32°, 50°付近に C-(A-)S-H (●), 2θ=39°付近に katoite (3CaO·Al₂O₃·6H₂O) (★) のピークが確認された。katoite は合成時の Al/Si 比が 0.1 以上の場合や⁹⁾、合成温度が 45°C の場合で生成する¹⁰⁾ことが報告されており、本結果は既往の報告と一致する。Cs 吸着後の 1.4CASH-Cs では、これらに加えて 2θ=11°, 31°付近などに friedel's salt (3CaO·Al₂O₃·CaCl₂·10H₂O) (▲) のピークが確認された。

TG-DTA によって測定した試料の熱重量微分曲線 (DTG) の分析結果を図-2 に示す。Cs 吸着前後の両試料で 280°C 付近にピーク (★) が確認できた。また、1.4CASH では 620°C (○), 900°C (◇) 付近にピークが確認でき、1.4CASH-Cs では 820°C (○), 945°C (◇) 付

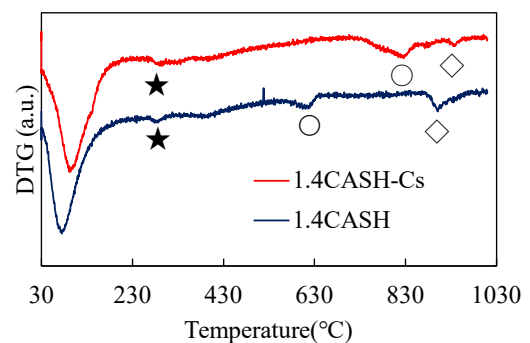


図-2 Cs 吸着前後の固相の熱重量微分曲線

次にピークが確認できた。

TG-DTA の各ピークで生じている鉱物相の変化を評価するため、Cs 吸着前後の固相試料を電気炉で 100°C、200°C、300°C、500°C、700°C、850°C、1000°C に加熱し、XRD にて分析した (図-3, 4)。この時、大気雰囲気下で試験を行ったため、1.4CASH の一部の試料では試料が炭酸化し、monocarbonate ($3\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot\text{CaCO}_3\cdot 11\text{H}_2\text{O}$) が生成した。1.4CASH、1.4CASH-Cs とともに 100°C の加熱で C-A-S-H の水の結合状態に起因する $2\theta=6^\circ$ 付近のピークが $2\theta=7^\circ$ にシフトした。また、200°C 以上の加熱で、monocarbonate および friedel's salt のピークは消失し、300°C 以上の加熱で katoite のピークも消失した。700°C の加熱では C-A-S-H が SiO_2 に分解され、850°C、1000°C の加熱では、未水和の wollastonite ($\text{CaO}\cdot\text{SiO}_2$)、 $2\text{CaO}\cdot\text{SiO}_2$ 、 $3\text{CaO}\cdot\text{SiO}_2$ 、gehlenite ($2\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot\text{SiO}_2$) の生成が確認できた。これらの鉱物の分解および生成などが生じる温度は、図-2 の DTG のピーク位置と概ね一致した。1.4CASH と 1.4CASH-Cs では生成する鉱物相の種類に大きな違いはなかったが、1.4CASH-Cs の方が、同じ加熱温度で比較した際に gehlenite や $3\text{CaO}\cdot\text{SiO}_2$ のピーク強度が小さかった。本試験で求めた室温~1000 °C までの重量減少量を Ig.loss とし、表-1 に示した。

3.2 SEM-EDS

粉体試料の 2 次電子像 (SEI) および研磨試料の反射電子像 (BSE) を図-5 に示す。1.4CASH の SEI では既往の報告同様、蜂の巣状や繊維状、層状¹⁾の C-A-S-H および角柱状の katoite が観察された。一方、1.4CASH-Cs の SEI では、1.4CASH では確認できなかった六角板状の friedel's salt が確認できた。

研磨面に対して点分析を行い、縦軸を Al/Si 比、横軸を Ca/Si 比としてデータを整理した結果を図-6 に示す。また、縦軸を Na/Al モル比 (Na/Al 比) および Cs/Al モル比 (Cs/Al 比)、横軸を Ca/Si 比として整理した結果を図-7 に示す。図-6 には Ca/Si 比、Al/Si 比の分布を基に、それぞれ C-A-S-H の組成を Ca/Si 比が 2 以下、Al/Si 比が 0.2 以下と仮定して結果を抽出した図も示した。また、図-7 にも C-A-S-H の組成と推定される Ca/Si 比が 2 以下の結果を抽出した図を示した。抽出した C-A-S-H の組成の平均値を表-1 に示す。1.4CASH および 1.4CASH-Cs の C-A-S-H は、Ca/Si 比が 1.25~1.28、Al/Si 比が 0.11~0.13 と原料の計量値 (Ca/Si 比が 1.4、Al/Si 比は 0.15) より小さい結果となった。また、Na/Al 比は 1.4CASH-Cs の方が 1.4CASH に比べて小さい結果となった。図-7 より、Cs/Al 比は C-A-S-H と思われる Ca/Si 比が 2 以下の範囲で値が大きいため、katoite や friedel's salt にはほとんど吸着されておらず、C-A-S-H に吸着されていることが分かった。

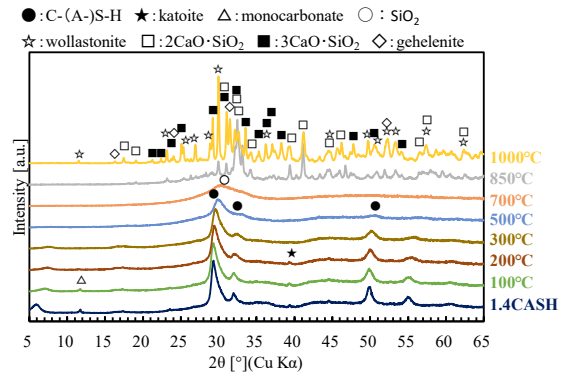


図-3 Cs 吸着前の固相の加熱時の鉱物相の変化

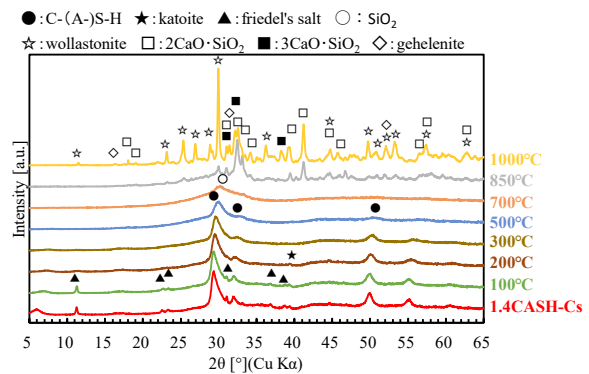


図-4 Cs 吸着後の固相の加熱時の鉱物相の変化

表-1 Cs 吸着前後の固相の Ig. loss (TG-DTA) および C-A-S-H の平均組成 (SEM-EDS)

Sample Name	Ig. loss [%]	Compositions of C-A-S-H [mol ratio]			
		Ca/Si	Al/Si	Na/Al	Cs/Al
1.4CASH	21	1.28 (0.08)	0.13 (0.01)	0.52 (0.20)	-
1.4CASH-Cs	21	1.25 (0.07)	0.11 (0.01)	0.19 (0.05)	0.34 (0.07)

※表中の()内の数値は標準偏差

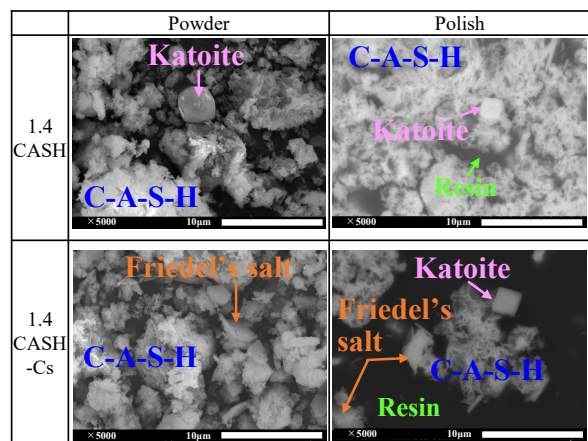


図-5 Cs 吸着前後の固相の SEI および BSE

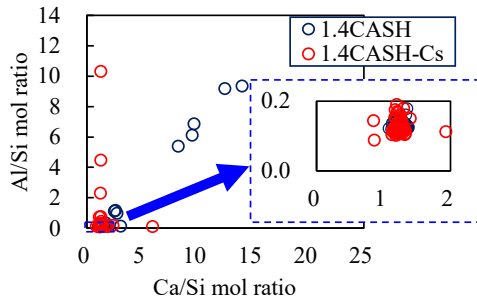


図-6 Cs 吸着前後の固相の点分析結果 (Ca/Si 比に対する Al/Si 比)

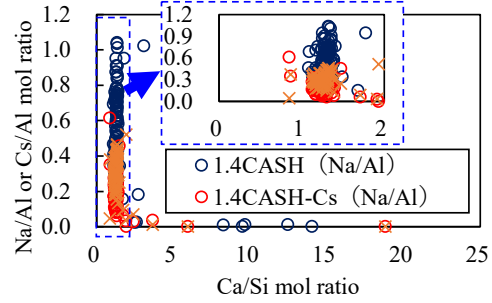


図-7 Cs 吸着前後の固相の点分析結果 (Ca/Si 比に対する Na/Al 比および Cs/Al 比)

表-2 液相分析結果および Cs の分配比, 液相分析結果を基に算出した固相の組成

Sample Name	pH	Liquid Concentrations [mol/L]						Rd [L/kg]	Compositions of Solid [mol ratio]			
		Ca	Si	Al	Na	Cs	Cl		Ca/Si	Al/Si	Na/Al	Cs/Al
1.4CASH _{eq}	12.8	5.5×10^{-3}	N.D.	9.6×10^{-5}	3.7×10^{-2}	N.D.			1.37	0.15	0.13	
1.4CASH-Cs-BL _{eq}	12.7	5.4×10^{-3}	1.2×10^{-5}	1.0×10^{-4}	3.6×10^{-2}	9.7×10^{-2}	1.1×10^{-1}					
1.4CASH-Cs _{eq}	12.8	4.9×10^{-3}	2.0×10^{-5}	4.2×10^{-5}	5.2×10^{-2}	9.0×10^{-2}	1.0×10^{-1}	0.9	1.49	0.17	0.07	0.09

N.D.: 検出限界以下 (Not Detected), (斜線): 未測定または未該当

3.3 液相分析結果

液相の分析結果および液相の分析結果を基に算出した Cs の分配比 (Rd), 固相の化学組成を表-2 に示す。検出限界以下の項目は「N.D.」と記載した。1.4CASH-Cs_{eq}の結果は, 2 回行った試験の平均値を示す。2 回の試験結果の標準偏差は 0.01 未満でほとんど同じ結果であった。

1.4CASH_{eq} の分析結果を基に, 原料の組成から液相に溶出した組成を減じて 1.4CASH の組成を算出した結果を表-2 に示す。Ca/Si 比および Al/Si 比は表-1 より大きく, Na/Al 比は表-1 より小さかった。

1.4CASH-Cs_{eq} は 1.4CASH-Cs-BL_{eq} と比較して, 液相中の Ca, Al, Cs, Cl が小さく, Si, Na は大きかった。液相分析結果の平均値を基に 1.4CASH-Cs の化学組成を算出した結果, 1.4CASH と比較して, Ca/Si 比, Al/Si 比が大きく, Na/Al 比が小さい傾向にあった。

3.4 NMR

Cs 吸着前後の固相試料の ²⁹Si-NMR と ²⁷Al-NMR 分析結果を図-8 と図-9 に示す。既往の文献^{12),13),14)}を基にピークの帰属を図に示した。また, 各ピークの面積を基に算出した存在比を表-3 に示す。この時, ²⁹Si-NMR は pseudo-Voigt 関数¹⁵⁾ (Lorentzian/Gaussian=0.5) でフィッティングし, ²⁷Al-NMR は Lorentz 関数¹⁵⁾でフィッティングした。

²⁹Si-NMR において, 1.4CASH では C-A-S-H に起因する Q¹, Q²(1Al), Q^{2p}, Q^{2b} のピークが確認された。1.4CASH-Cs では, ピーク面積比がわずかに変化し, MCL が大きく, Ca/Si 比が小さく, Al/Si 比が大きくなった。

Mohamed らは, Al^{IV}, Al^V, Al^{VIc} を以下のように定義している¹⁴⁾。既往の研究では, Al^{VIc} は TAH として帰属されることもあったが¹²⁾, Mohamed らの近年の知見を基に C-A-S-H 内の Al として評価した。

Al^{IV}: ブリッジングサイトの SiO₄ 四面体と置換した AlO₄ 四面体の状態。特に Ca/Si 比が小さい場合に確認される。

Al^V: C-A-S-H の層間に存在し, 4 配位の Al がシリケートチェーンに取り込まれる際の電荷の補償や C-A-S-H の表面と結合している状態。

Al^{VIc}: Ca/Si 比および H₂O/Si 比が大きく, Al/Si 比が小さい場合に C-A-S-H のブリッジングサイトに取り込まれた状態。

上述の条件で ²⁷Al-NMR 測定結果を解析すると, 1.4CASH では C-A-S-H 中の Al とされている 4 配位 (Al^{IV}), 5 配位 (Al^V), 6 配位 (Al^{VIc}) の Al と katoite 中の 6 配位の Al に起因するピーク (Al^{VIa}), AFm 相の 6 配位の Al に起因するピーク (Al^{VIb}) が確認できた。1.4CASH-Cs では, 1.4CASH に比べて Al^{IV} の割合が小さく, Al^{VIb}, Al^{VIc} の割合が大きくなった。

4. 考察

4.1 C-A-S-H の Cs 吸着に伴う鉱物組成の変化

合成した 1.4CASH は, Al/Si 比が 0.1 以上, 合成温度が 50°C と高かったため, C-A-S-H だけでなく, CaO および Al₂O₃ の水和物である katoite が生成していた (図-1)。Cs 吸着後の鉱物相の変化としては, 本吸着試験では Cs 源として CsCl を使用したため, C-A-S-H や katoite と Cl

表-3 NMR 測定結果から算出した C-A-S-H の MCL および組成, ピーク面積比

Name	²⁹ Si-NMR				²⁷ Al-NMR					C-A-S-H		
	Q ¹	Q ² (1Al)	Q ² _b	Q ² _p	Al ^{IV}	Al ^V	Al ^{VI} _a	Al ^{VI} _b	Al ^{VI} _c	MCL	(Ca/Si) _{max}	Al/Si
1.4CASH	42	23	12	24	56	16	1.9	2.3	24	5.4	1.19	0.11
1.4CASH-Cs	40	29	10	21	49	15	1.8	2.7	31	5.8	1.17	0.15

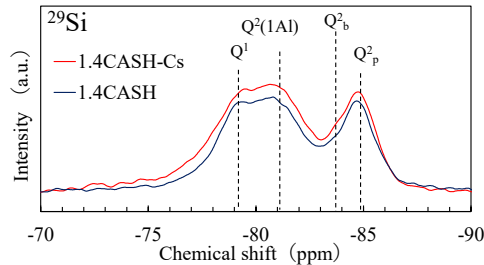


図-8 Cs 吸着前後の固相の ²⁹Si NMR 分析結果

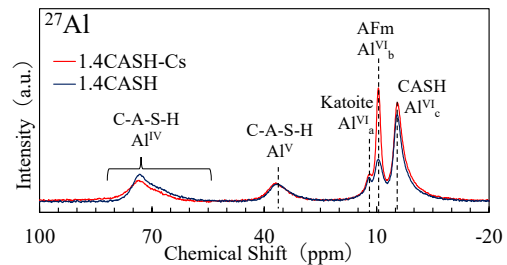


図-9 Cs 吸着前後の固相の ²⁷Al NMR 分析結果

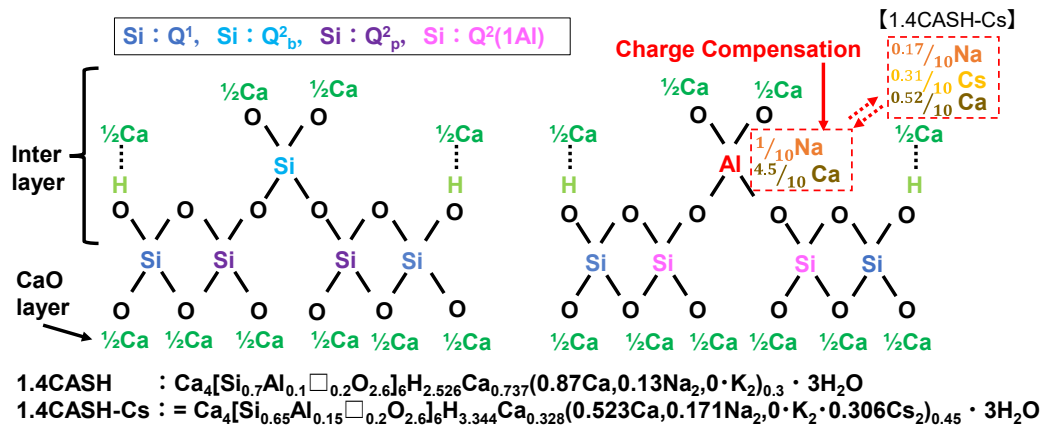


図-10 1.4CASH および 1.4CASH-Cs の構造の概略図

の反応によって friedel's salt が生成していた。一方, XRD 上では, Cs 系の鉱物の生成やピークシフトは確認できなかった。表-3 より C-A-S-H は全体の 95%以上を占めていること, katoite は Cs 吸着前後で大きく変化していないことが分かった。また, Ca/Si 比に対する Cs の分布 (図-7) からも katoite や friedel's salt への Cs 吸着が認められなかった。したがって, Cs は C-A-S-H の結晶構造に大きく影響を与えない形で吸着されたと考えられる。ただし, 図-2 および図-3, 4 から分かる通り, Cs 吸着後は加温時に鉱物相の変化が生じる温度が高温側にシフトしており, Cs が共存することで結晶化度が低下していた。ただし, 本試料は CsCl 溶液で吸着試験を行ったため, Cs だけでなく, Cl による影響が生じている可能性もある。

4.2 C-A-S-H の Cs 吸着に伴う化学組成の変化

本研究では, 化学組成を (a) SEM-EDS (表-1), (b) 原料の計量値と液相分析 (表-2), (c) NMR (表-3) の 3 種類の手法でそれぞれ算出した。その結果, Ca/Si 比は手法 (b) > (a) > (c) の順に小さくなる傾向にあった。

Al/Si 比は, 同様に (b) が比較的大きい傾向にあったが, 1.4CASH は (a) > (c), 1.4CASH-Cs は (c) > (a), と (a) と (c) は試料によって結果が逆転した。(b) は, C-A-S-H だけでなく, 固相全体の組成になるため, katoite のような二次鉱物を含んでいることや friedel's salt 生成に伴い固相中の Ca, Al が大きくなることから, Ca/Si 比, Al/Si 比が大きくなった要因と考えられる。次節の構造に関する考察では, Si と Al の結合情報が必要なため, (c) の NMR の Ca/Si 比および Al/Si 比を使用した。

Na/Al 比は (a) と (b) では (a) の方が大きい傾向にあった。これは, 試料の固液分離時に水などによる固相の洗浄を行わなかったため, 溶液中の Na が付着した固相を測定した可能性がある。したがって, 1.4CASH の Na/Al 比は溶液中の Na の付着影響が含まれていない (b) の結果を, 1.4CASH-Cs の Na/Al 比, Cs/Al 比は C-A-S-H の組成を評価している (a) の結果を次節の構造の考察で使用した。また, 表-1 の Ig. loss 量から ²⁷Al-NMR の katoite, AFm 中の H₂O 量を減じて C-A-S-H 中の OH およ

び H₂O 量を算出したところ、1.4CASH, 1.4CASH-Cs とともに MCL に対して、3 程度であった。

4.3 C-A-S-H の Cs 吸着に伴う構造の変化

Richardson³⁾が提案している tobermorite または C-S-H(I) のシングルチェーンの一般構造化学式に前節で検討した化学組成を反映して 1.4CASH と 1.4CASH-Cs の一般構造化学式を求めた。一般構造化学式および式を基に作成した 1.4CASH および 1.4CASH-Cs の概略図を図-10 に示す。なお、構造化学式中の□は空いている四面体サイトを示す。Ca/Si 比が 1.4 の C-A-S-H の場合、Cs 吸着前後で tobermorite 構造が保たれており、Cs 吸着に伴う主な変化は Al のブリッジングサイトの電荷補償に Cs を含むことであった。ただし、概略図は簡易的なものであり、実験結果や既往の知見で明言できなかった吸着位置などは一例を示したものである。

5. 結論

本研究では、コンクリートの放射性物質による汚染量を予測することを目的に、セメントペーストの主要な水和物であるカルシウムアルミノシリケート水和物 (C-A-S-H) のセシウム (Cs) 吸着機構を調査した。

Ca/Si 比が 1.4 の C-A-S-H を合成し、Cs 吸着前後の試料に対して、組成及び構造の変化を評価した。Cs 吸着に伴い、鉱物組成は大きく変化しなかったが、加温時に鉱物相の変化が生じる温度が高温側にシフトするなど、Cs 吸着後の性質は変化していた。

Ca/Si 比が 1.4 の C-A-S-H の場合、Cs 吸着前後で tobermorite 構造が保たれており、Cs 吸着に伴う主な変化は Al のブリッジングサイトの電荷補償に Cs を含むことであった。

数値解析手法の構築に向けて、今後は異なる Ca/Si 比においても同様の現象が生じるかについても検証する必要がある。さらに、Cs と同様に C-A-S-H と相関があるとされている Sr などの他の元素に対する検討も必要である。

参考文献

- 1) 日本原子力研究開発機構, 東京大学: 合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄筋コンクリート長期状態変化の定量評価 (委託研究) - 令和 2 年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 -, JAEA-Review2021-047(2022)
- 2) 環境省の放射線による健康影響等に関する統一的な基礎資料参照:<https://www.env.go.jp/chemi/rhm/h29kiso/h29kiso-02-02-04.html> (閲覧日: 2024 年 1 月 2 日)

- 3) Richardson, I.G: Model structures for C-(A)-S-H(I), Acta Crystallographica Section B, Structural Science, Crystal Engineering and Materials, B70, pp.903-923, 2014
- 4) Andersen, M. D., Jakobsen, H. J. and Skibsted, J.: Incorporation of Aluminum in the Calcium Silicate Hydrate (C-S-H) of Hydrated Portland Cements: A High-Field ²⁷Al and ²⁹Si MAS NMR Investigation, Inorganic Chemistry, Vol.42, No.7, pp.2280-2287, 2003
- 5) Sun, G.K., Young, J.F. and Kirkpatrick, R.J.: The role of Al in C-S-H: NMR, XRD, and compositional results for precipitated samples, Cement and Concrete Research, Vol.36, pp.18-29, 2006
- 6) Haga, K., Watanabe, S. and Yamada, K.: Quantification of interaction between alkali metal ions and C-(A)-S-H/cement paste for a wide range of ion concentrations, 15th International Congress on the Chemistry of Cement, 2019
- 7) Ochs, M., Mallants, D. and Wang, L.: Radionuclide and Metal Sorption on Cement and Concrete, Springer International Publishing, 2016
- 8) Richardson, I.G. and Groves, G.W.: Microstructure and microanalysis of hardened ordinary Portland cement pastes, Journal of Materials Science, Vol.28, pp.265-277, 1993
- 9) L'Hôpital, E. et al.: Incorporation of aluminium in calcium-silicate-hydrates, Cement and Concrete Research, Vol.75, pp.91-103, 2015
- 10) Liu, X. et al.: Carbonation behaviors of calcium silicate hydrate (C-S-H): Effects of aluminum, Construction and Building Materials, Vol.325, 2022
- 11) セメント協会: C&C エンサイクロペディア セメント・コンクリート化学の基礎解説 (2004)
- 12) L'Hôpital, E., Lothenbach, B., Scrivener, K. and Kulik, D.A.: Influence of calcium to silicate ratio on aluminium uptake in calcium silicate hydrate, Cement and Concrete Research, Vol.85, pp.111-121, 2016
- 13) Jonesa, M. R. et al.: Studies using ²⁷Al MAS NMR of AFm and AFt phases and the formation of Friedel's salt, Cement and Concrete Research, Vol.33, pp.177-182, 2003
- 14) Mohamed, A. K., et al. : The Atomic-Level Structure of Cementitious Calcium Aluminate Silicate Hydrate, Journal of the American Chemical Society, Vol.142, pp.11060-11071, 2020
- 15) 虎谷秀穂: 6. プロファイル関数とパターン分解法, 日本結晶学会誌, Vol.34, No.2, pp.86-99, 1992