福島原子力事故関連情報アーカイブ
FNAA Fukushima Nuclear Accident Archive

Title	変質黒雲母のセシウム吸着特性と吸着サイトの固体 NMR 解析
Alternative_Title	Cesium adsorption characteristics of altered biotite and solid-state NMR analysis of adsorption sites
Author(s)	緑川 慶(物質・材料研究機構), 田村 堅志(物質・材料研究機構), 端 健二郎(物質・材料研究機構), 渡邊 雄二郎(法政大学), 佐久間 博(物質・材料研究機構), 出口 健三(物質・材料研究機構) Midorikawa, Kei(National Inst. for Materials Science); Tamura, kenji(National Inst. for Materials Science); Hashi, Kenjiro(National Inst. for Materials Science); Watanabe, Yujiro(Hosei Univ.); Sakuma, Hiroshi(National Inst. for Materials Science); Deguchi, Kenzo(National Inst. for Materials Science)
Citation	第 8 回環境放射能除染研究発表会要旨集, p.68 The 8th Workshop of Remediation of Radioactive Contamination in Environment
Subject	セッション：ポスターセッション
Text Version	Publisher
URL	https://f-archive.jaea.go.jp/dspace/handle/faa/182151
Right	© 2019 Author
Notes	禁無断転載 All rights reserved. 「第 8 回環境放射能除染研究発表会要旨集」のデータであり、発表内容に変更がある場合があります。 学会は発表の機会を提供しているもので、内容に含まれる技術や研究の成果について保証しているものではないことをお断りいたします。

Japan Atomic Energy Agency

変質黒雲母のセシウム吸着特性と吸着サイトの固体 NMR 解析

○緑川 慶 [1,2], 田村堅志 [1], 端健二郎 [1], 渡邊雄二郎 [2], 佐久間博 [1], 出口健三 [1]
[1] 物質・材料研究機構, [2] 法政大学大学院理工学研究科

1. はじめに

福島土壌は風化花崗岩土壌（真砂土）が主流であり、放射性セシウム（Cs）の吸着体として風化黒雲母が注目されている。特にヒドロキシアルミニウムを層間導入して“くさび型”の吸着サイトを多く含む風化黒雲母はイオン交換容量の減少をもたらすが、Cs^+の移動性に大きな影響を与える [1)]。本研究では、福島土壌における Cs^+固定化機構を解明するため、ヒドロキシアルミニウム変質黒雲母をモデル土壌とした。このモデル土壌に Cs^+の吸着、脱離処理を施し、Cs^+の吸着状態を強磁場固体 NMR によって解析した。

2. 実験方法

出発物質には K^+型天然フロゴパイト（KPhl）を使用した。KPhl の層間にくさび空間を設けるため、一旦、層間を Na^+に置換した NaPhl を調製した [2)]。この NaPhl を異なる濃度の $AlCl_3$ 水溶液（3, 100 mmol L^{-1}）で処理し、Na^+の一部を Al^{3+}に置換した後、KCl 処理することで Al^{3+}導入量の異なる試料、KAl_3Phl および $KAl_{100}Phl$ を調製した。これらの乾燥試料（KAl_3Phl および $KAl_{100}Phl$）0.3 g を 7.5 mmol L^{-1} の CsCl 水溶液 30mL 中に加えて 24 時間振とうし、Cs^+吸着試料を調製した。乾燥後、Cs^+吸着試料を 3 mol L^{-1} $Mg(NO_3)_2$ 水溶液による Cs^+脱離処理を 2 回行った [3)]。Cs^+吸着試料及び脱離処理（1 回目、2 回目）後の試料について、^{27}Al-及び ^{133}Cs-MAS NMR 測定を行って Cs^+の吸着、脱離状態を調べた。

3. 結果および考察

XRD 測定の結果、1.4nm の鋭い底面反射（層間 Al^{3+}）が現れる $KAl_{100}Phl$ に対して、KAl_3Phl は 1.0 nm（層間 K^+）と 1.4 nm のピーク、その間のブロードな反射が観測され不規則混合層であることが示された。^{27}Al-MAS NMR 解析の結果は、$AlCl_3$ 処理濃度の増加に伴って 6 配位 Al（2.5 ppm）のピークが強くなった。Fig.1 に KAl_3Phl および $KAl_{100}Phl$ に Cs^+を吸着させた試料、それを $Mg(NO_3)_2$ 処理した試料の ^{133}Cs-MAS NMR スペクトルを示す。42 ppm 近傍に観測される強いピークは 2 枚の雲母シート表面の酸素六員環に挟まれた Cs^+によるものである [4)]。また、－50ppm 近傍に弱いブロードなバンドが観測されることから、複数の吸着サイトが存在していることが示唆された。2 回の脱離処理によって、$KAl_{100}Phl$ は全ての Cs ピークが消失したが、KAl_3Phl では 42 ppm 近傍、－50ppm 近傍のピークが共に残った。この結果は、KAl_3Phl の混合層構造が“くさび型空間”を形成し、高い Cs^+吸着選択性と吸着後の安定性に寄与することを示唆するものである。

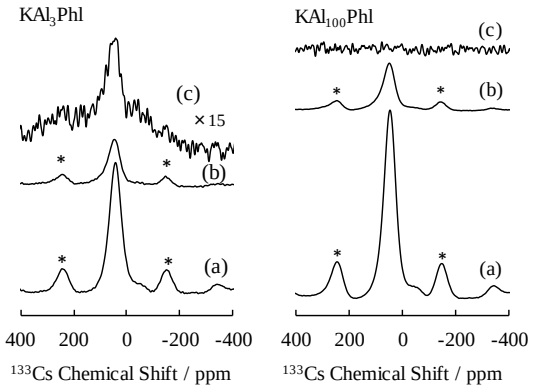

Fig.1 ^{133}Cs-MAS NMR スペクトル：(a) Cs^+吸着試料, (b) Cs^+脱離試料（1 回処理）, (c) Cs^+脱離試料（2 回処理）, *：スピニングサイドバンド

謝辞：本研究は、環境省の環境研究総合推進費（1-1906）の助成により実施された。

4. 参考文献

1) L. Dzene *et al., Scientific Reports*, **7**, 43187 (2017).
2) 田村堅志, 佐久間博, 第 60 回粘土科学討論会講演要旨集, 88-89 (2016).
3) K. Morimoto *et al.*, *Chemistry Letters*, **41**, 1715-1717 (2012).
4) C. A. Weiss *et al.*, *American Mineralogist*, **75**, 970-982 (1990).