

放射性セシウムで汚染された土壌浄化のための 亜臨界水イオン交換システムの開発 (2) 放射光 XRD, EXAFS による亜臨界水環境中の バーミキュライト、層間イオンのその場観察

Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of
Soil contaminated by Radioactive Cesium

(2) In-situ Observation of Vermiculite and Interlayer Ions in Subcritical Water Environment by
Synchrotron XRD and EXAF

*福田達弥¹ 高橋亮¹ 原卓飛¹ 渡邊真太¹ 殷 祥標¹ 尾原幸治²

加藤和男² 松村大樹³ 中瀬正彦¹ 竹下健二¹

¹東京工業大学 ²高輝度光科学研究センター ³日本原子力研究開発機構

粘土鉱物（バーミキュライト）中に取り込まれた Cs イオンは亜臨界水環境下では容易に多価のイオンと交換される。本現象のメカニズム解明に資する研究として、Spring-8 の高エネルギー放射光による X 線回折測定、XASF 測定等を用いた。亜臨界水中の粘土鉱物および層間イオンのその場観察を実施した。

キーワード：除染、高エネルギーX線回折、XAFS、粘土鉱物

1. 緒言 土壌に含まれる粘土鉱物の層間に安定的に吸着された Cs は、亜臨界水環境では Mg をはじめとした多価の金属イオンと容易にイオン交換される。本研究では高エネルギー放射光を用いて亜臨界環境中の模擬汚染土壌の In-situ 測定を実施することで、①イオン交換に伴うバーミキュライトの構造変化、②イオン交換時の層間イオンの変化を調査し、脱離メカニズムの推察を試みた。

2. 実験 バーミキュライトに Cs を吸着させることにより模擬汚染土壌を作成した。模擬汚染土壌をガラス観察窓付きカラムに詰め水および脱離液（MgCl₂ 水溶液）を加圧・通液した。処理温度を室温から 200℃まで、圧力を最大で 2MPa に変化させた。高エネルギーの放射光は観察口から試料を透過するため、in-situ での XRD 及び XAFS 測定を行うことが出来る。61 keV の X 線を用いた X 線回折実験と PDF 解析を Spring-8 の BL04B2 で実施し、Cs-K 吸収端を用いた透過法による EXAFS 測定を同施設 BL01B1 にて実施した。

3. 結果・考察 まず XRD 測定の結果から、亜臨界状態の Mg 水溶液環境でバーミキュライトの層間距離を示すピークが徐々に低角側に移動することが観察できた (Fig.1)。また、PDF 解析の結果から、亜臨界状態の Mg 水溶液環境でバーミキュライトの層間内の水の存在を示すピークが大きくなっていることが観察できた。XRD 測定の結果は層間 Cs が Mg とイオン交換をするのに伴い層間距離が広がっていることを示している。Mg イオンは Cs イオンよりもイオン半径が小さいが水和状態となると Mg イオンの方が大きくなることから、Mg イオンは水和水を伴い層間に入っていることが示唆される。PDF 解析の結果より亜臨界状態の Mg 水溶液環境では層間内の水が増加していることが分かり、本示唆と整合している。

4. 謝辞 放射光実験は Spring-8 大学院生提案型課題 No. 2019A1682, 2019A1683, 2019B1767 で実施された。本研究は科学研究費補助金基盤研究 (B) (一般) (課題番号 18H03398) の一部である。

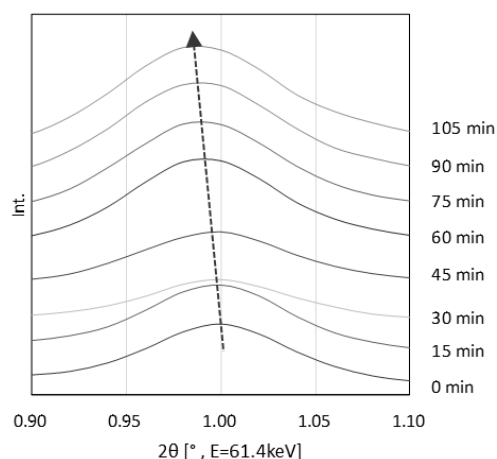


Fig. 1 亜臨界水環境における
層間距離の時間変化

*Tatsuya Fukuda¹, Ryou Takahashi¹, Takuhi Hara¹, Shinta Watanabe¹, Xiangbiao Yin¹, Koji Ohara², Kazuo Kato², Daiju Matsumura³, Masahiko

Nakase¹ and Kenji Takeshita¹ ¹Tokyo Institute of Technology, ²Japan Synchrotron Radiation Research Institute, ³Japan Atomic Energy Agency