

ケイ酸カルシウム水和物に吸着したセシウムの構造とサイト選択性の解明

Structural analysis and site selectivity of Cesium adsorption on Calcium Silicate Hydrates

*樋口 敬太¹, 大窪 貴洋¹, 根岸 久美², 柴田 真仁², 舘 幸男³

¹千葉大学大学院, ²太平洋コンサルタント, ³日本原子力研究開発機構

セメント系材料の主要な成分であるケイ酸カルシウム水和物 (C-S-H) への Cs 吸着機構の解明を目的として、C-S-H に吸着した Cs の構造を ¹³³Cs MAS NMR により解析した。

キーワード：ケイ酸カルシウム水和物 (C-S-H)、セシウム吸着、核磁気共鳴

1. 緒言

福島事故廃棄物を含む放射性廃棄物の処分の評価において、様々な処分概念で用いられるセメント系材料と放射性核種の相互作用についての理解が必要である。セシウム (Cs) 等の放射性核種は、セメント水和物中の主要な成分である C-S-H へ吸着すると考えられる。吸着試験により C-S-H の化学組成である Ca/Si 比が Cs の吸着量に与える影響は明らかになっているが、詳細な吸着機構については不明な点が多い。本研究では、異なる Ca/Si 比の C-S-H に対する Cs 吸着試験を行い、¹³³Cs MAS NMR 測定により吸着構造の解明を試みた。

2. 実験

C-S-H 試料は、Ca/Si=0.83, 1.00, 1.20, 1.40 となるように秤量した非晶質シリカおよび酸化カルシウムを固液比 1:40 で超純水と混合し、56 日間、室温で水和させ合成した。固液分離した固相を真空乾燥し、粉砕することで粉末を得た。Cs 濃度で 1,000, 5,000, 10,000 ppm となるように超純水で CsI 水溶液を調製し、固液比 1:100 で C-S-H 粉末を浸漬させ Cs 吸着試験を行った。浸漬期間は 7 日間とした。Cs 吸着固相を遠心分離し、固相を真空乾燥させ Cs 吸着 C-S-H 試料を得た。Cs 吸着前後の C-S-H のシリケート鎖の構造および吸着した Cs の構造を ¹³³Cs MAS NMR により解析した。

3. 結果と考察

吸着試験の結果、Ca/Si 比の低い試料ほど Cs の吸着量が大きい傾向が見られた。図 1 に Cs 濃度で 10,000 ppm の CsI 水溶液に浸漬させた各 Ca/Si 比の C-S-H 乾燥粉末の ¹³³Cs MAS NMR スペクトルを示す。

Ca/Si の低い試料ではピーク A のみが観測され、Ca/Si 比の高い試料ではピーク A に加え低磁場側にピーク B が観測された。Cs は C-S-H 層間の Ca と交換することにより吸着すると考え、ピーク A をシリケート鎖の架橋 SiO₄ 四面体のシラノール基(サイト A)に吸着した Cs、ピーク B をシリケート鎖の架橋 SiO₄ 四面体が欠落した位置の Ca(サイト B)と交換した Cs に帰属した(図 2 参照)。また、異なる Cs 濃度で吸着試験を行った結果、低い Cs 濃度ではピーク A のみが観測され、Cs 濃度が高くなるにつれピーク B が観測された。これら結果より、Cs 吸着の選択性として、サイト A への吸着が優先的に起こり、サイト A への吸着が飽和することでサイト B への吸着が起こると考えた。

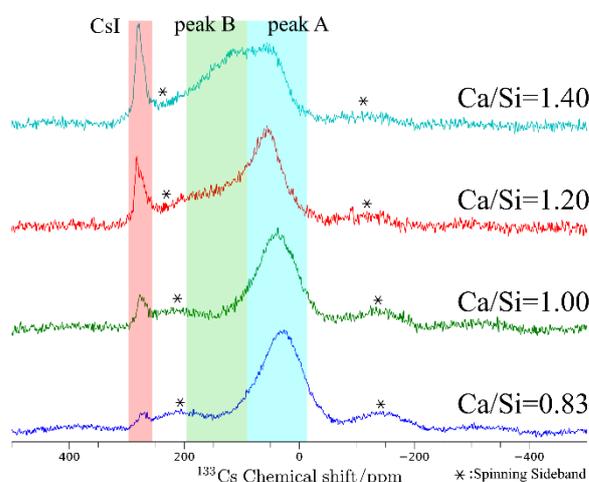


図 1. Cs を吸着させた Ca/Si 比の異なる乾燥 C-S-H の ¹³³Cs MAS NMR スペクトル

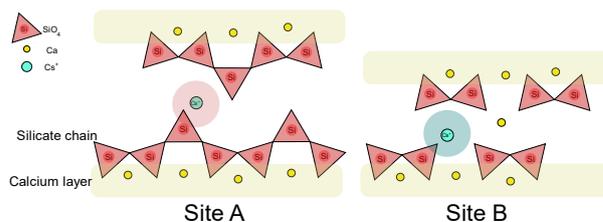


図 2. Cs 吸着サイトのモデル

*Keita Higuchi¹, Takahiro Ohkubo¹, Kumi Negishi², Masahito Shibata², Yukio Tachi³

¹Chiba University, ²Taiheiyo Consultant, ³JAEA