



九州シンクロトロン光研究センター 県有ビームライン利用報告書

課題番号：1508084S

BL番号：BL11

(様式第5号)

EXAFS によるアナターゼに収着した鉛の化学形態分析 EXAFS characterization of lead species sorbed onto anatase

鈴木祐麻
Tasuma Suzuki

山口大学大学院理工学研究科環境共生系専攻
Department of Environmental Science and Engineering, Graduate School of Science and
Engineering, Yamaguchi University

- ※1 先端創生利用（長期タイプ、長期トライアルユース、長期産学連携ユース）課題は、実施課題名の末尾に期を表す（Ⅰ）、（Ⅱ）、（Ⅲ）を追記してください。
- ※2 利用情報の開示が必要な課題は、本利用報告書とは別に利用年度終了後二年以内に研究成果公開（論文（査読付）の発表又は研究センターの研究成果公報で公表）が必要です。（トライアルユース、及び産学連携ユースを除く）

1. 概要（注：結論を含めて下さい）

鉛を代表とする重金属を含む種々の汚染物質による土壌汚染は我が国における深刻な環境問題となっている。本研究の目的は、土壌の中に含まれる二酸化チタン（アナターゼ）に着目し、アナターゼに収着した鉛の化学状態に関する情報を得ることである。XAFSにより分析を行った結果、鉛の化学状態は収着実験時の pH に依存せず、酸化還元反応も伴っていないことが示唆された。

(English)

Soil contamination by heavy metals is a worldwide environmental issue. The objective of this study was to obtain information on Pb species sorbed onto anatase. The XANES analysis showed that the lead species distribution was not a function of pH. Also found was that redox reactions were not involved into the sorption reaction.

2. 背景と目的

鉛を代表とする重金属を含む種々の汚染物質による土壌汚染は我が国における深刻な環境問題となっている。今日、汚染サイトの浄化に最も頻繁に適用されている技術は掘削除去法である¹⁾が、掘削除去法は処理コストが高いなどの問題点が多く指摘されている²⁾。本研究の目的は、掘削除去の後に行われる浄化プロセスにおける浄化効率を改善するためには不可欠である、鉛の土壌中における収着形態に関する知見を得ることである。特に、本研究では土壌中に含まれる金属酸化物の一種であるアナターゼ (TiO₂) に着目し、アナターゼに収着した鉛の化学状態に pH が与える影響について検討を行った。

3. 実験内容（試料、実験方法、解析方法の説明）

鉛が収着したアナターゼサンプルは、シグマ・アルドリッチ社から購入したアナターゼ0.79gを硝酸鉛を溶かした水溶液（414 mgPb/L, NaNO₃ 0.05 mol/Lを含む）30mlと混合し、水酸化ナトリウムおよび硝酸水溶液によりpHを調節した後に24時間振とうし、その後ろ過を行うことで作製した。本実験で測定したアナターゼサンプルを作製した際のpHおよび鉛濃度を表1に示す。アナターゼサンプルの測定はポリエチレンバッグに試料を封入し、検出器に19素子 SSDを用いて蛍光法にて測定を行った。また、標準試料は窒化珪素で希釈した適切な濃度のペレットを作成し、透過法でL3吸収端（13keV）を測定した。なお、標準試料として用いた物質は金属鉛、水酸化物、そして二酸化鉛である。

表 1. 本実験で検討したアナターゼサンプルを作製した際のpHおよび鉛濃度		
	作製した際の水溶液の pH	鉛含有量 (mgPb/gTiO ₂)
サンプル A	2.02	2.3
サンプル B	2.98	5.8
サンプル C	3.78	7.9
サンプル D	5.27	12.8

4. 実験結果と考察

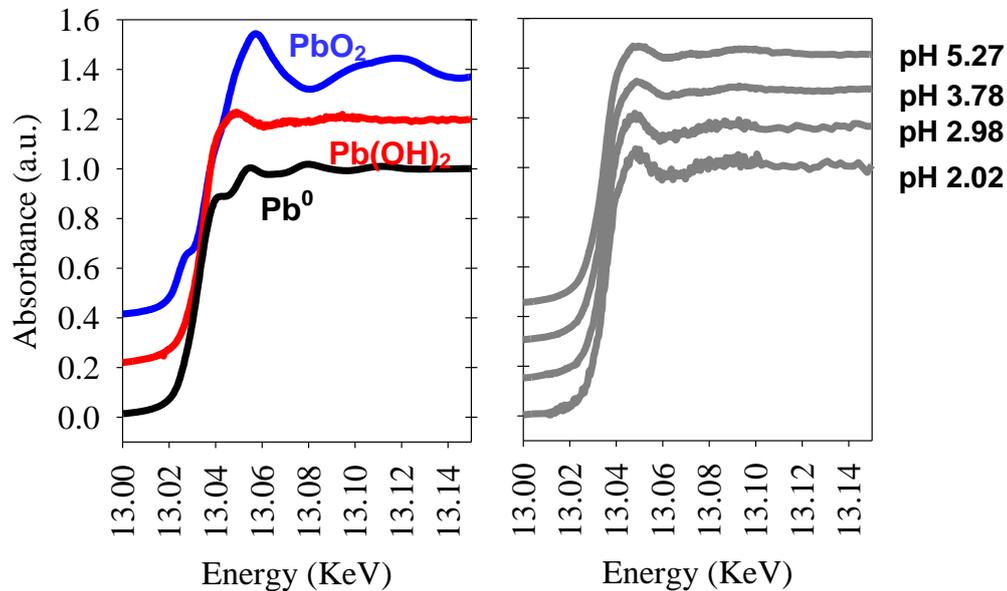


図 1. (左) 標準試料の Pb L3 吸収端 XANES スペクトル (右) 鉛吸着後のアナターゼサンプルの Pb L3 吸収端 XANES スペクトル

標準試料として測定した金属鉛、鉛水酸化物、および二酸化鉛の XANES スペクトルを図 1 (左) に、鉛が吸着したアナターゼサンプルの XANES スペクトルを図 1 (右) に示す。図 1 (右) から分かるように、pH および鉛含有量に依存せずにアナターゼに吸着した鉛は同じようなスペクトルを示した。また、標準試料との比較によりアナターゼに吸着した鉛のスペクトルは鉛(II)水酸化物のスペクトルとよく一致し、金属鉛 (Pb⁰) および二酸化鉛 (PbO₂) のピークとは大きく異なることが分かった。このことから、鉛 (II) イオンのアナターゼへの吸着反応には酸化還元反応は伴っていない反応であることが示唆された。

5. 今後の課題

今回の実験結果から、鉛 (II) イオンのアナターゼへの吸着反応には酸化還元反応は伴っていない反応であることが分かった。しかし、具体的な化学形態の特定は出来ていない。今後は BL15 を用いた粉末 X 線回折を行い、析出物の化学形態に関する情報を引き続き取得していく予定である。

6. 参考文献

- 1) The Ministry of the Environment Government of Japan, 2008, Retrieved December 16, 2015, from <http://www.env.go.jp/water/report/h25-02/index.html>.
- 2) The Ministry of the Environment Government of Japan, 2008, Retrieved December 16, 2015, from http://www.env.go.jp/water/dojo/sesaku_kondan/index.html.

7. 論文発表・特許 (注: 本課題に関連するこれまでの代表的な成果)

- 1) Suzuki, T; Nakamura, A; Niinae, M; Nakata, H; Fujii, H; Tasaka, Y. Lead Immobilization in Artificially Contaminated Kaolinite Using Magnesium Oxide-based Materials: Immobilization Mechanisms and Long-term Evaluation. *Chemical Engineering Journal*. 2013, 232, 380-387.
- 2) Suzuki, T; Niinae, M; Koga, T; Akita, T; Ohta, M; Choso, T. EDDS-Enhanced Electrokinetic Remediation of Heavy Metal-Contaminated Clay Soils under Neutral pH Conditions. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 2014, 440, 145-150.

8. キーワード（注：試料及び実験方法を特定する用語を2～3）

土壌汚染、鉛、アナターゼ

9. 研究成果公開について（注：※2に記載した研究成果の公開について①と②のうち該当しない方を消してください。また、論文（査読付）発表と研究センターへの報告、または研究成果公報への原稿提出時期を記入してください（2015年度実施課題は2017年度末が期限となります。）

長期タイプ課題は、ご利用の最終期の利用報告書にご記入ください。

① 論文（査読付）発表の報告 （報告時期： 2016年 10月）