

# リグニン誘導体のセシウム吸着に及ぼすセシウム初期濃度及び吸着時間の影響に関する研究

九州大学大学院工学府	学生会員	○李 雪
九州大学東アジア環境研究機構	非会員	渡邊 優香
	非会員	宋 麗香
九州大学大学院工学研究院	フェロー会員	島岡 隆行

## 1. はじめに

東日本大震災による福島第一原子力発電所事故により、さまざまな場所で放射性セシウム (Cs) が検出された。発電所より大気中へ放出された放射性 Cs は福島県を中心に広範囲に拡散し、汚染された土壌の除染が緊急の課題となっている。現在、懸念されているのは放射性 Cs (137-Cs, 134-Cs) による放射能が主であり、放射性 Cs の分離・除去用の吸着剤が重要な役割を果たすと考えられる。そこで、本研究では、植物中に多量に含まれる高分子であるリグニンを原料としてリグニン誘導体を製造し、その吸着特性を用いて Cs 吸着の検討を行い、Cs 吸着に優れた新規吸着材を検索することを目的とした。

## 2. 実験試料

吸着剤として、7 種のリグニン誘導体を用いた。吸着質溶液は 1000mg/L の原子吸光用塩化セシウム (CsCl) を用いて試験溶液を調製した。

## 3. 実験方法

リグニン誘導体のセシウム吸着特性を確認するために、7 種のリグニン誘導体を用いセシウム溶液に対しての吸着性能及びゼオライトとの比較実験を行った。

吸着質濃度変化によるセシウム吸着特性を調べるため、7 種のリグニン誘導体をそれぞれ 0.1g 用い、Cs 濃度は 0.1mg/L、5mg/L、10mg/L、50mg/L の溶液に加えて、振とう機(200 回転/分)で 6 時間振とうした。振とう後 10 分以上静置し、上澄み液を 5mmMF で吸引濾過し、検液とした。誘導結合プラズマ発光分光分析装置 (ICP-OES) 及び原子吸光分光光度計 (AAS) を用いてその検液の Cs 濃度を測定した。

セシウム低濃度下条件でゼオライト及びセシウムの吸着力の比較を目的として、各種リグニン誘導体と人工ゼオライトそれぞれ 0.1g を 0.1mg/L の Cs 溶液に加えて、振とう機(200 回転/分)で 6 時間振とう後上澄み液を 5mmMF で吸引濾過し、AAS を用いてその検液の Cs 濃度を測定した。

吸着時間変化によるセシウム吸着特性については、各種リグニン誘導体それぞれを 0.1g 用い 5mg/L の Cs 溶液に加えて、振とう機(200 回転/分)で 6 時間、12 時間、24 時間、48 時間振とう後、上澄み液を 5mmMF で吸引濾過し、ICP-OES を用いてその検液の Cs 濃度を測定した。

リグニン誘導体のセシウム吸着形態については、リグニン誘導体 L-4、0.1g を 1mg/L、5mg/L、10mg/L、50mg/L の Cs 溶液に加えて、振とう機(200 回転/分)で 48 時間振とうした。振とう後 10 分以上静置し、上澄み液を 5mmMF で吸引濾過し、検液とした。ICP-OES 及び AAS を用いてその検液の Cs 濃度を測定した。

## 4. 結果および考察

### 4.1 セシウム吸着特性に及ぼす吸着質濃度の影響

図 1 には、初期 Cs 濃度  $C_0$  が 0.1 mg/L、5 mg/L、10 mg/L、50 mg/L の試料を用いて 7 種のリグニン誘導体の吸着実験を行った時の吸着率 R(%) を示す。全てのリグニン誘導体は初期 Cs 濃度の増加に伴い吸着率が減少し、初期濃度が 0.1mg/L の条件で全てのリグニン誘導体の吸着率は 30% 以上に達した。特に L-4 と L-3 は 67% と 50% の高い吸着率を示した。L-3 と L-5 は高濃度 50 mg/L の条件で 5.93 mg/g と 5.47 mg/g と比較的高い吸着量を示した。L-1 は他と比較して吸着力が低い結果となった。

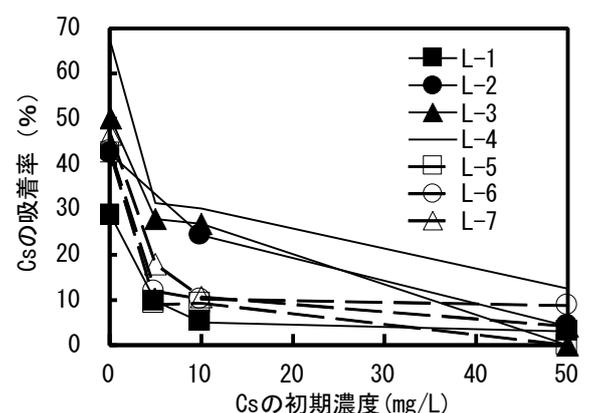


図 1 リグニン誘導体の吸着率

## 4.2 リグニン誘導体と人工ゼオライトの吸着力の比較結果

図2には、初期Cs濃度  $C_0$  が 0.1 mg/L の条件で、7 種のリグニン誘導体とゼオライトのセシウム吸着率を示す。この結果を見ると、ゼオライトは 92% の高い吸着率を示した。7 種のリグニン誘導体の中で L-4 は 67% と最も高い吸着率を示し、ゼオライトと約 25% の差があった。

## 4.3 セシウム吸着特性に及ぼす吸着時間の影響

図3には、初期Cs濃度  $C_0$  が 5mg/L の条件で、6 時間、12 時間、24 時間、48 時間振とう後の各種リグニンの吸着量を示す。その中で、L-1、L-5 と L-6 は振とう 6 時間後と 12 時間後ではセシウム吸着量が比較的低い値であったが、振とう 24 時間後、48 時間後で、セシウムの吸着量が 2 倍以上増加した。L-2 と L-7 は 6 時間振とう後のセシウム吸着量が比較的低い値であったが、振とう 12 時間後には 6 時間後よりそれぞれ約 7 倍、2 倍の高い吸着量を示した。L-7 の吸着量は振とう 24 時間、48 時間後には 12 時間後とほぼ同じ量を維持していた、L-2 は振とう時間に比例してセシウム吸着量が増加し、48 時間後には 1.5 mg/g と高い吸着量を示した。L-3 と L-4 は振とう 6 時間後で既にセシウムの吸着量が比較的高く、振とう 12 時間後には L-3 が平衡吸着量 1.4 mg/g となった。L-4 は振とう 6、12 時間ではセシウムの吸着量に変化が見られなかったが、振とう 24 時間と 48 時間後にはより高い吸着量 1.9mg/g を示した。

## 4.4 吸着等温式による評価

実験結果を Langmuir 式及び Freundlich 式にあてはめた。Langmuir 式:  $K_L = q_e / (q_m - q_e) C_e$ 、Freundlich 式:  $q_e = K_F C_e^n$  ( $C_e$ : 平衡時溶液濃度 (mg/L)、 $q_e$ : 平衡時吸着量 (mg/g)、 $q_m$ : 飽和吸着量 (mg/g)  $K_L$ : Langmuir 定数、 $K_F$ : Freundlich 定数)。計算結果から見ると、Freundlich 式の決定係数  $R^2$  は 0.907 で、Langmuir 式の  $R^2$  は 0.996 であったので、L-4 の吸着は Langmuir 型を用いた。Langmuir 型吸着等温式による L-4 の最大吸着量  $q_m$ 、吸着平衡定数  $K_L$  を表1に示す。

## 5. まとめ

本研究では、7 種のリグニン誘導体についてそれぞれ吸着性能及びゼオライトとの比較実験を行った。その結果、以下のことが明らかになった: 7 種のリグニン誘導体は平衡吸着量に達する吸着時間がそれぞれ異なった。低濃度の条件で L-4 は最も高い吸着率があったが、ゼオライトより約 20% 低かった。L-4 の吸着等温線は Langmuir 型を示し、最大吸着量の理論値は 4.02mg/g であった。

今後は、さらに条件を変え、リグニン誘導体の吸着性と pH、温度等の関係を検討し、また、試料の粒径や比表面積等吸着特性の検討を続ける予定である。

[参考文献] 1) 濱田洋成ら: 日本産天然ゼオライトのセシウム吸着に関する粒子サイズ依存性, 日本原子力学会, D13, p185, 2011, 2) 劉愛平ら: Treatment of Simulated Radioactive Waste Water Containing Cs<sup>+</sup> with Clinoptilolite, METAL MINE 2012, 430, pp148-151,

謝辞: 本研究は環境研究総合推進費 K122102 「放射性セシウムを含有する焼却残渣の性状把握と効率的かつ安全な処分技術」(研究代表者: 島岡隆行) の支援を受けて行われた。ここに記して謝意を表す。

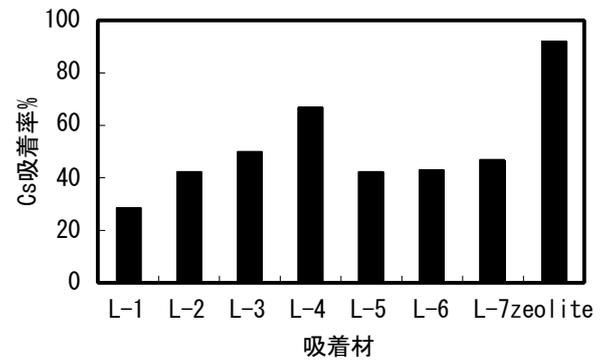


図2 低濃度で各吸着材の吸着率

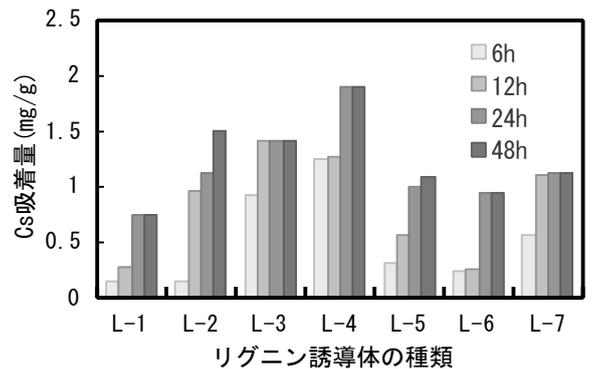


図3 吸着量の経時変化

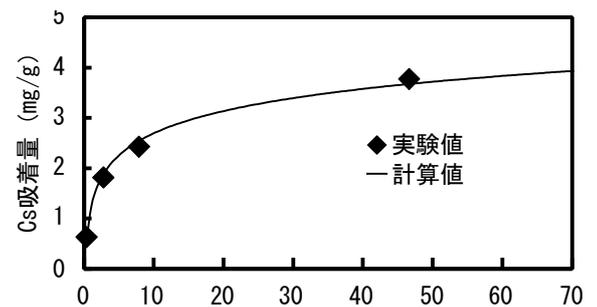


図4 L-4 吸着等温線

表1 Langmuir 式の最大吸着量

最大吸着量	吸着平衡定数	決定係数
$q_m$ (mg/g)	$K_L$ (-)	$R^2$ (-)
4.02	0.297	0.996