

リグニン誘導体のセシウム吸着に関する基礎研究 (2 報)

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

渡邊 優香、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、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、さまざまな場所で放射性セシウム (Cs) が検出された。汚染された家屋、草木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 (Cs-137, Cs-134) 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たリグニン誘導体を製造し、その吸着特性を利用した Cs 吸着に優れた新規吸着材を検索することを目的に、各種リグニン誘導体によるセシウムの吸着実験及び脱着実験を行った。

2. 実験方法

2-1 実験試料

吸着材として、5 種類のリグニン誘導体 (L-2、L-3、L-4、L-6、L-7)¹⁾、及び人工ゼオライトを用いた。吸着質の溶液として、Cs のみの溶液、及び共存元素の存在する Cs 溶液を用いた。

2-2 共存元素がない条件での吸着実験

5 種類のリグニン誘導体をそれぞれ 0.1g 用い、Cs 濃度は 0.1 mg/L、1 mg/L、5 mg/L、10 mg/L の 100ml 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 0.45 μ Mf で吸引濾過し、検液とした。比較のため、人工ゼオライトも同じ方法で吸着実験を行った。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。

2-3 共存元素がある条件での吸着実験

純水に NaCl を 1.3%、KCl を 1%、CaCl₂ を 1% 添加し、模擬溶出液を調製した。吸着率が最も高いリグニン誘導体 L-4²⁾ 0.1g を Cs 濃度が 1 mg/L、5 mg/L の溶液に加え、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 0.45 μ Mf で吸引濾過し、検液とした。原子吸光分光光度計 (AAS) を用いて検液の Cs 濃度を測定した。

2-4 脱着実験

吸着後のリグニン誘導体を 100 ml 純水の中に加えて、振とう機で 48 時間を振とうした。振とう後 10 分以上静置し、上澄み液を 0.45 μ Mf で吸引濾過し、検液とした。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。

3. 結果及び考察

3-1 共存元素がない条件で各リグニン誘導体のセシウム吸着能評価及びゼオライトとの吸着能比較

図 1~図 5 に示す吸着実験の結果を次式 (1) 及び (2) の吸着等温式にあてはめ吸着等温式中の定数値を求めた。

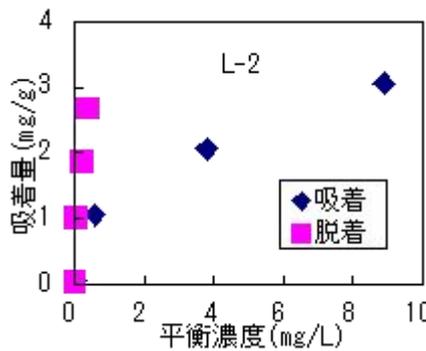


図 1 L-2 吸着量と脱着量

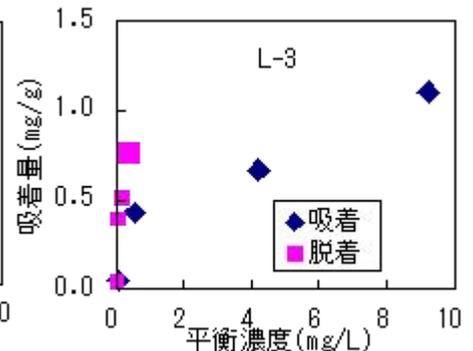


図 2 L-3 吸着量と脱着量

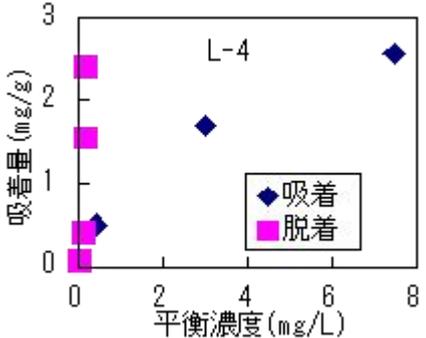


図 3 L-4 吸着量と脱着量

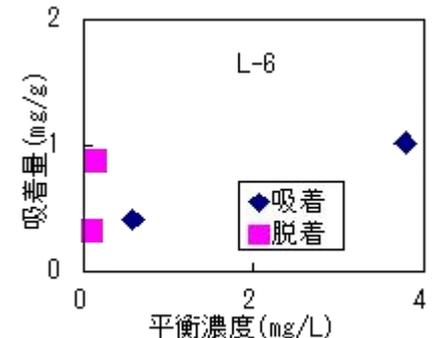


図 4 L-6 吸着量と脱着量

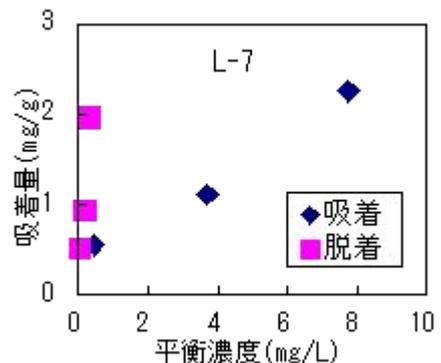


図 5 L-7 吸着量と脱着量

Langmuir 式: $C_e/q_e=1/K_Lq_m+C_e/q_m \dots (1)$

Freundlich 式: $\ln q_e=\ln K_F+1/n \ln C_e \dots (2)$

ここで、 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 定数である。

表 1 に、各種リグニン誘導体の Langmuir 式及び Freundlich 式による計算値を示す。L-2、L-3、L-4、L-6、L-7 の Langmuir 式及び Freundlich 式の決定係数は全て 0.9 以上を示した。Langmuir 式による各リグニン誘導体 L-2、L-3、L-4、L-6、L-7 の最大吸着量はそれぞれ 1.81、1.58、3.62、3.54、5.21 mg/g となった。

図 6 に、初期 C_s 濃度 C_0 が 0.1 mg/L の条件で、5 種リグニン誘導体とゼオライトのセシウム吸着率を示す。ゼオライトは 92 % と高い吸着率を示した。5 種のリグニン誘導体の中では L-4 が 67 % と最も高い吸着率を示したが、その吸着率はゼオライトと約 25 % の差があった。

3-2 共存元素がある条件でのリグニン誘導体のセシウム吸着能評価

図 7 に初期 C_s 濃度が 1 mg/L 及び 5 mg/L の模擬溶出液の条件における、L-4 のセシウム吸着率を示す。初期 C_s 濃度が 1 mg/L 及び 5 mg/L の時の L-4 の吸着率はそれぞれ 29% 及び 7% を示した。これらは共存元素がない場合の吸着率に比べてそれぞれ 27% 及び 29% 低かった。

3-3 脱着実験結果

吸着実験で吸着平衡に至ったリグニン誘導体 L-2、L-3、L-4、L-6、L-7 の脱着実験結果を図 1～図 5 に示す。結果を見ると、各種リグニン誘導体からセシウムが脱着したことが分かる。式(3)を用いて各実験条件における脱着率を計算した結果、脱着率はリグニン誘導体により異なり、また初期 C_s 濃度によっても異なっていた。L-2、L-3、L-4、L-6、L-7 における脱着率の平均値はそれぞれ 10.5%、20.2%、10.2%、17.9%、12.1% であった。

脱着率 = 脱着平衡濃度 / (初期濃度 - 吸着平衡濃度) $\dots (3)$

4. まとめ

本研究では、5 種のリグニン誘導体を対象に、セシウム吸着能の評価、ゼオライトとの吸着能比較、脱着実験を行った。その結果、①低濃度の条件で最も高い吸着率を示すリグニン誘導体は L-4 であるが、その吸着率はゼオライトより約 25 % 低いこと、②Langmuir 式から求めた最大吸着量は、L-2、L-3、L-4、L-6、L-7 でそれぞれ 1.81、1.58、3.62、3.54、5.21 mg/g であること、③共存元素がある条件における初期 C_s 濃度 1 mg/L 及び 5 mg/L の時の L-4 の吸着率は 29% 及び 7% であったが、これらは共存元素がない条件に比べてそれぞれ 27% 及び 29% 低いこと、④L-2、L-3、L-4、L-6、L-7 の脱着率はそれぞれ 10.5%、20.2%、10.2%、17.9%、12.1% 程度であること、が明らかとなった。今後は、さらに条件を変え、リグニン誘導体の吸着特性と pH 及び温度との関係を検討する予定である。

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。

[参考文献] 1) 李雪ら: リグニン誘導体のセシウム吸着に関する研究—セシウム初期濃度及び吸着時間の関係—第 3 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演論文集 2012, pp. 173-174 2) 李雪ら: 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—平成 24 年度土木学会西部支部学会研究発表会講演論文集 2013, pp. 923-924

表 1 Langmuir 式及び Freundlich 式の各定数値

吸着材	Langmuir 式			Freundlich 式		
	最大吸着量 q_m (mg/g)	吸着定数 K_L	決定係数 R^2	指数 n	吸着定数 K_F	決定係数 R^2
L-2	1.81	0.49	0.99	2.03	0.4	0.93
L-3	1.58	0.32	0.99	2.09	0.32	0.91
L-4	3.62	0.41	0.99	1.9	0.74	0.96
L-6	3.54	0.12	0.97	2.2	0.54	0.99
L-7	5.21	0.11	0.96	2.15	0.75	0.97

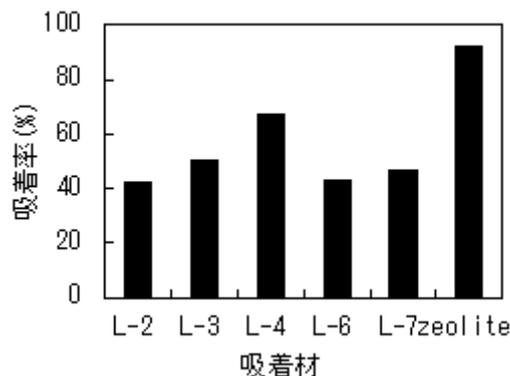


図 6 低濃度の条件で各吸着材の吸着率

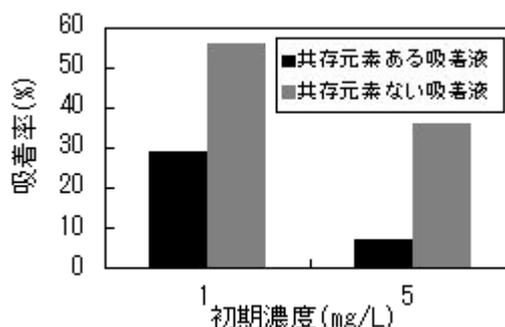


図 7 模擬溶出液の L-4 の Cs 吸着率