

アルギン酸ビーズを活用した放射性セシウム吸着剤の開発

日大生産工(院) ○寺田凌大

日大生産工

古川茂樹, 朝本紘充, 南澤宏明

1. 緒言

2011年3月11日に発生した東日本大震災による東京電力原子力発電所の大規模な事故後、放射線物質の漏洩による環境汚染が深刻な問題となっている。その中でも放射性セシウム(Cs)-137(以下, Csと略記)は半減期が30.2年であるために人体への長期被ばくの可能性があることから除染対象とされている。

Csの除去にはブルシアン・ブルー(以下, PBと略記)が有効であると多数の研究報告があるが、微粒子を形成するためにCs吸着後のろ過が困難であり、吸着除去剤としての利用に難点がある。そこで、本研究ではアルギン酸ナトリウム水溶液を塩化カルシウム水溶液に滴下して生成するアルギン酸ビーズにPBを内包させたPB含有ビーズを調製し、Csの吸着除去について検討を行った。

PBの他にもPBと類似の性質を示すフェロシアン化コバルト(以下, FCと略記)およびアルカリ金属の捕捉が期待されるジベンゾ18クラウン6エーテル(以下, DB18C6と略記)を用いた新規なCs吸着剤についても検討を行った。

2. 実験方法

2.1 PB, FC担持アルギン酸ビーズの調整

0.017wt%アルギン酸ナトリウム水溶液を300ml調製し、これにPBまたはFC1.0gを加えて溶解させた。得られた溶液を駒込ピペットを用いて0.5wt%塩化カルシウム水溶液500mlに滴下してPBまたはFCを内包したアルギン酸ビーズを生成させた。得られたビーズは80℃, 24時間乾燥させてPB担持ビーズおよびFC担持ビーズとした。

2.1 初期pHの影響について

dil.HCl または dil.NaOHsoln. を用いてpH2.0~12に調製した10mg/dm³Cs溶液30cm³にPB担持ビーズまたはFC担持ビーズ0.1gを加え、所定時間マグネティックスターラーで攪拌を行い、各吸着体にCsを吸着させた。吸着後、マイクロピペットで試料溶液を5.0ml採取し、試料溶液中のCs濃度を黒鉛炉原子吸光

度分析により852.12nmの波長を用いて吸光度測定した。なお、比較のためにアルギン酸ビーズそのものについてもCsの吸着実験をおこなった。

2.3 吸着速度について

PB, FC担持ビーズのCs吸着速度を調べるため、次の実験を行った。

10mg/dm³のCs溶液150cm³に、PB, FC担持ビーズを0.1g加えた。攪拌にはマグネティックスターラーを用いて吸着開始から1, 5, 10, 30, 60, 90分後に溶液の一部を分取し、その溶液中のCs濃度を測定した。なお、比較のために未処理アルギン酸ビーズ, 0.02gのPBおよびFC試薬そのものについてもCsの吸着実験を行った。

Csの吸着が一次反応であると仮定し、

$$-d[C]/dt = k_1[C] \quad (1)$$

(1)式により吸着速度定数を算出した。

2.4 吸着等温式について

PB, FC担持ビーズのCs吸着様式を捉えるため、吸着等温線の作製を行った。

Cs溶液30cm³の初期濃度1mg/dm³から100mg/dm³の範囲で変化させ、PB, FC担持ビーズを0.1g加え、マグネティックスターラーを用いて6時間攪拌を行った後、溶液中のCs濃度を黒鉛炉原子吸光分析により測定した。

上記の実験結果を基にCsイオン平衡濃度Ce(mg/dm³)と平衡吸着量Wsの関係 Langmuir吸着等温式を用いて解析し、さらに、

(2)の式を用いてLangmuir定数a(dm³/g)を算出した。

$$W = aWsCe/(1+aCe) \quad (2)$$

3. 実験結果および考察

3.1 初期pHの影響

PBまたはFCを担持させたアルギン酸ビーズの初期pHに対するCsの除去率の変化を図1に示す。PBまたはFCを担持したアルギン酸ビーズはいずれのpHにおいても未処理アルギン酸ビーズよりも高いCs除去率を示した。これは、フェロシアン化物はpHが低い水中では分解す

Development of Adsorbent for Radioactive Cesium Utilizing Alginate Beads

Ryota TERADA, Sigeki FURUKAWA, Hiromiti ASAMOTO
and Hiroaki MINAMISAWA

ることが知られており、結晶構造が崩れたことが要因であると考察した。

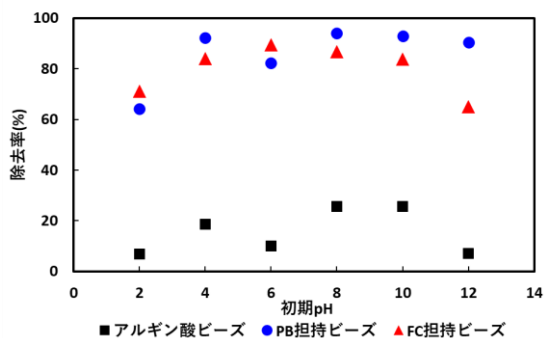


図1 各ビーズの初期 pH と除去率の関係

3.2 吸着速度

各吸着体を用いて2.3の実験操作に従って行った実験結果を表1にまとめた。

表1 吸着速度定数の比較

ビーズ種類	吸着速度定数 (min ⁻¹)
PB粉体	0.137
FC粉体	0.066
PB担持ビーズ	0.098
FC担持ビーズ	0.063
アルギン酸ビーズ	0.050

表1より吸着速度定数を比較すると、PB単体>PB担持ビーズ、FC単体>FC担持ビーズという結果となり、PB,FCをアルギン酸ビーズに担持させることにより、吸着速度が低下してしまうという結果となった。これはビーズ内に試薬を担持させたことによって、PB,FCの露出量が減少してしまったことが原因であると考えられる。

3.3 吸着等温線

2.4の実験操作に従って行った実験結果を図2に示す。

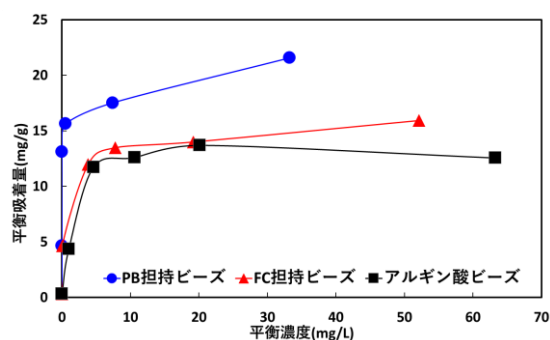


図2 各ビーズの吸着等温線

図2より各ビーズにおいて平衡濃度が上昇するにつれて平衡吸着量が飽和していくという結果となった。

(2)の式より、Langmuir吸着等温式による解析結果を表2にまとめた。

表2 セシウム吸着に関する Langmuir 変数

ビーズ種類	最大吸着量 (mg/g)	吸着平衡定数 (dm ³ /g)	相関係数
PB担持ビーズ	21.6	0.380	0.997
FC担持ビーズ	15.6	0.952	0.997
アルギン酸ビーズ	12.8	0.541	0.998

表2より、最大吸着量はPB担持ビーズ>FC担持ビーズ>アルギン酸ビーズという結果となった。また、平衡濃度に対してすべてのビーズで相関係数0.997以上の直線関係が得られたことから、ビーズ表面の吸着サイトにCsが吸着されていることが推察できる。

4. まとめ

本研究ではアルギン酸ビーズにCs吸着に有効とされるPB, FCを担持させた新規なCs吸着剤を調製し、その有効性について検討した。

各ビーズにおいてCs吸着時の最適な初期pHはpH7~8付近が最適であることが分かった。また、アルギン酸ビーズに担持することによる吸着速度の低下は少なく、各ビーズの最大吸着量は未修飾アルギン酸ビーズよりも増加したことから、PBおよびFC担持ビーズの有効性を確認することができた。

参考文献

- 1) 天海亘, 杉山まい, 藤原邦夫, 須郷高信, 梅野大輔, 斎藤恭一「不溶性フェロシアン化コバルトおよびニッケル担持繊維の海水中でのセシウムイオンに対する吸着等温線」放射性物質の分析と除染 (2014) pp.18-24
- 2) 矢吹芳教, 森 達摩, 相子伸之, 切畑光 統, 杉村仁, 田中康男, グラファイトカー ボン含有した磁性アルギン酸ビーズによる畜産排水の色度および有機成分の除去, 日本畜産学会報, 78(3), p339-334, 2007.
- 3) Torad, Nagy L., et al. "Large Cs adsorption capability of nanostructured Prussian Blue particles with high accessible surface areas." *Journal of Materials Chemistry* 22.35 (2012): 18261-18267.