

フィチン酸を導入したハイドロタルサイト様化合物による 放射性セシウム吸着挙動について

○寺田 凌大 (日大生産工・院), 古川茂樹 (日大生産工・環境),
朝本紘充, 南澤宏明 (日大生産工・教基)

1. 緒言

2011年3月11日に発生した東日本大震災に伴う東京電力福島第一原発事故では、大規模な放射性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-137 (以下, Csと略記) は半減期が30.2年と長く、人体への長期被ばくの危険性が高いために除去対象放射性物質に指定されている。

一般的に、アルミノケイ酸塩化合物を主成分とする粘土や天然ゼオライトなどの無機イオン交換体はCsに対して選択的な吸着能を示すことが報告されている。無機系イオン交換体の一つであるハイドロタルサイト (以下, HT) は陽イオン交換体として作用する他、層間に保持されている陰イオンが他の陰イオンと交換できる特性を持っている。

本研究では、これらのHTの特性に注目し、Csの吸着除去について検討を行った。さらに、HTにCsとの錯体形成が期待されるフィチン酸 (以下, IP₆と略記) を導入した両者の特性を生かした新しい機能性材料を合成したので、これらを用いたCsの吸着挙動について検討をおこなった。

2. 実験方法

2.1 フィチン酸を導入したHTの調整

10%フィチン酸水溶液を50mL調整し、dil. NaOHsolnを用いてpHを4.0に調整した。この水溶液中に1.0gのHTを24時間含浸させ、フィチン酸をHTに導入させた。その後、固相と水相を分離し、固相は50℃で24時間乾燥させ、フィチン酸を導入したHT (以下, IP₆-HTと略記) を得た。

2.2 初期pHの影響について

dil. HCLまたはdil. NaOHsoln.を用いてpH2.0~10.0に調整した1mg/LのCs溶液30mLにIP₆-HTを0.1g加え、24時間マグネティックスターラーで攪拌を行い、IP₆-HTにCsを吸着

させた。吸着後、マイクロピペットで試料溶液5.0mL採取し、試料溶液中のCs濃度を黒鉛炉原子吸光分析により852.12nmの波長を用いて吸光度を測定した。なお、比較のためにHTそのものについてもCsの吸着実験を行った。

2.3 吸着速度について

1mg/LのCs溶液200mLにIP₆-HTを0.1g加え、マグネティックスターラーを用いて攪拌を行った。吸着開始から25分間、5分ごとに溶液を採取し、黒鉛炉原子吸光分析によりCs濃度を測定した。

Csの吸着が一次反応であると仮定し、

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

より吸着速度定数を算出した。

2.4 吸着等温式について

Cs溶液30mLの初期濃度0.1mg/Lから500mg/Lの範囲で変化させ、HTおよびIP₆-HTを0.1g加えた後、マグネティックスターラーを用いて24時間攪拌を行った。その後、黒鉛炉原子吸光分析を用いて分析を行った。

上記の実験結果をLangmuir吸着等温式 (2) を用いてCs平衡濃度C (mg/L) と最大吸着量Ws (mg/g), Langmuir定数a (L/g) の関係を算出した。

$$C/W = C/W_s + 1/aW_s \quad (2)$$

3. 実験結果および考察

3.1 初期pHの影響

図1にHTおよびIP₆-HTの初期pHに対するCs吸着率の変化を示す。すべてのpHの範囲において、IP₆-HTはHTよりも高いCs吸着率を示した。また、低いpH領域では吸着率が低下する傾向が見られたが、これはHTが低いpH水中で溶解しやすく、結晶構造が崩壊したことが原因であると考えられる。

Adsorption behavior of radioactive cesium by hydrotalcite-like compounds with
phytic acid

Ryota TERADA, Sigeki FURUKAWA, Hiromiti ASAMOTO
And Hiroaki MINAMISAWA

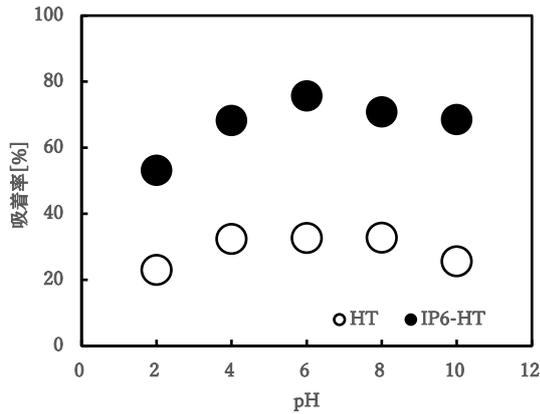


図1 Csの吸着に及ぼす pH の影響

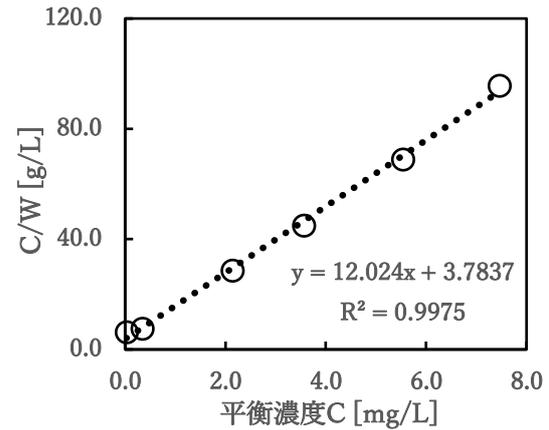


図2 HTによる Langmuir Plot

3.2 吸着速度について

HTおよびIP₆-HT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

吸着剤の種類	吸着速度定数 (min ⁻¹)	相関係数 (-)
HT	0.08	0.99
IP ₆ -HT	23.7	0.99

表1より吸着速度定数を比較すると、IP₆-HTはHTに比べて高い吸着速度定数を示し、吸着速度が大幅に向上した。この向上は、HTに導入されたフィチン酸が新たな吸着サイトを形成し、吸着可能な部位の数が増加したためであると考えられる。

3.3 吸着等温線

2.4の実験により得られた結果を水溶液から一成分が選択的に吸着する際の吸着現象を解明する際に広く用いられる Langmuir 式を用いて検討した¹⁾。得られた結果を図2、図3に示した。

Langmuir 式は、

$$C/W = C/W_s + 1/aW_s$$

で表される。

ここで、W：吸着材 1g 当たりの吸着物質の量 (mg/g)；C：吸着平衡時の溶液中の吸着物質の濃度 (mg/L)；W_s：吸着材 1g 当たりの最大吸着量 (mg/L)；a：吸着平衡定数 (L/g)であり、Langmuir 式の a が大きいほど吸着が起こりやすく、W_s の値が大きいほど吸着容量が大きいことを意味する。

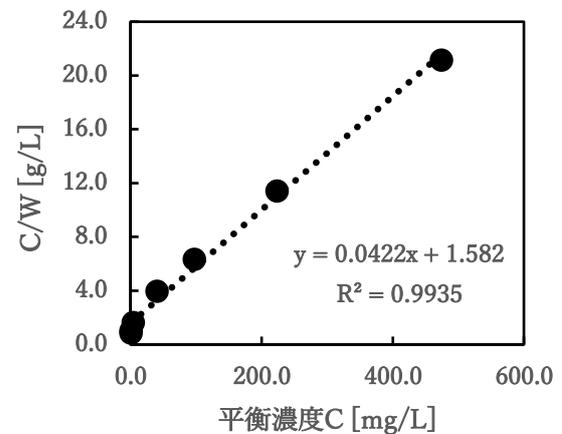


図3 IP₆-HT による Langmuir Plot

最大吸着量 W_s は HT で 0.08mg/g、IP₆-HT で 23.7mg/g となり、Cs の吸着能力が大幅に向上したことが確認された。これにより、IP₆-HT が Cs の吸着材として有効であることが示唆された。また、相関係数 (R²) はいずれの吸着材においても 0.99 以上であり、高い適合性が確認された。

4. まとめ

無機系イオン交換体であるHTにCsとの錯体形成が期待されるフィチン酸を導入することで、両者の特性を生かした機能性材料を合成した。HTそのものと比較して、フィチン酸を導入した新規材料はCsの吸着能力が大幅に向上した。

参考文献

- 1) 南澤 宏明, 田久保 泰輔, 朝本 紘充, 南澤 磨優覧, 斎藤 和憲, 中釜 達朗, 澁川 雅美 : 分析化学, Vol. 61, No.4, pp.311-317 (2021) .