

# タンニン酸型有機複合吸着剤を用いた 多種多様な放射性核種の吸着脱離機構に関する基礎的研究

Mechanistic Research on Various Types of Radionuclides

with Tannic acid-type Organic Composite Adsorbents in Inland Water

\*立花 優<sup>1</sup>, 奥村 森<sup>2</sup>, 坂手 康弘<sup>1</sup>, 野上 雅伸<sup>3</sup>, 鈴木 達也<sup>1</sup>, 野村 雅夫<sup>2</sup>, 金敷 利隆<sup>2</sup>

<sup>1</sup>長岡技術科学大学大学院 工学研究科 原子力システム安全工学専攻,

<sup>2</sup>東京工業大学 先端原子力研究所, <sup>3</sup>近畿大学 理工学部 電気電子工学科

多種多様な金属イオンに対して高い吸着能を持つタンニン酸と典型的な陰イオン交換樹脂をメチレン架橋させると、各単体にはなかった吸着現象を発現できることを発見した。これらの複合吸着剤を用いて過酷事故により環境中に飛散する恐れのある放射性核種の吸着脱離機構を詳細に検討した。

**キーワード:** 有機複合吸着剤, タンニン酸, 陰イオン交換樹脂, 放射性核種, 吸着脱離機構, 陸水, クロマトグラフィー

## 1. 緒言

過酷事故由来の汚染水には多種多様な放射性核種が含まれることから、その除染には新しい発想に基づいた吸着剤の開発が必要不可欠である。2種類の典型的な有機系吸着剤をメチレン架橋すると単体では成し得なかった新しい吸着点が発現することを以前に報告した。<sup>1)</sup> 有機系複合吸着剤を6種類合成し、Cs, Sr, I等の模擬放射性核種に対する吸着挙動を調べた結果、陸水中において、三菱化学社製弱塩基性陰イオン交換樹脂WA30もしくは強塩基性陰イオン交換樹脂PA316とタンニン酸を複合した吸着剤が、検討した全ての元素に対して高い吸着分離特性を持つことがわかった。これらの吸着脱離機構を調べた結果を報告する。

## 2. 実験方法

12種類の模擬放射性核種を含む河川水を準備した。新潟県小千谷市付近の信濃川から採水した陸水である(採水日: 2015年11月5日)。室温条件下、PA316(CI形), 硫酸処理したPA316(PA316S), 硫酸処理したタンニン酸型樹脂(TAS), PA316SとTASを重量比2:1で添加した混合吸着剤、PA316SとTASを重量比2:1でメチレン架橋させた有機複合吸着剤(PA316TAS)を用いてバッチ試験を行った。参考文献(1)と同様の計算式から各元素の分配係数( $K_d$ )を算出した。各元素の定性定量分析はICP-MS分析計(Agilent, 7700x)を用いた。

## 3. 結果と考察

各吸着剤に対する12種類の金属元素の $K_d$ 値を纏めた結果を表1に示した。 $K_d$ 値が100未満の場合、その数値を赤字で記載した。

PA316(CI形)とPA316Sの $K_d$ 値は類似していた。スルホ基の導入によるSrやCsの $K_d$ 値の増加が確認できなかったことからPA316のスルホン化反応の割合は極僅かと考えられる。TASはIに対して吸着能を持たなかった。これは海水系の結果と一致した。<sup>1)</sup> また、PA316SとTASを単に添加した場合とそれらをメチレン基で架橋したPA316TASを用いた場合を比較検討した。その結果、PA316TASを用いると $K_d$ 値を飛躍的に向上できる一方、単に2種類を同時に添加するだけでは $K_d$ 値を減少させることがわかった。これはPA316Sと僅かに溶存したTASとの間の陰イオン交換反応によるものと考えられる。

## 謝辞

本研究は、JSPS 科研費 若手(B) (課題番号: 16K18346)の一環として実施した。

## 参考文献

[1] Yu Tachibana, et al., *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **307**, 1911-1918(2016)

\*Yu Tachibana<sup>1</sup>, Shin Okumura<sup>2</sup>, Yasuhiro Sakate<sup>1</sup>, Masanobu Nogami<sup>3</sup>, Tatsuya Suzuki<sup>1</sup>, Masao Nomura<sup>2</sup>, and Toshitaka Kaneshiki<sup>2</sup>, <sup>1</sup>Nagaoka University of Technology, <sup>2</sup>Tokyo Institute of Technology, <sup>3</sup>Kindai University

Table 1. Additional adsorption effect of PA316TAS-type organic composite adsorbents for Mn, Co, Sr, etc. in river water at room temperature.

| Species         | Adsorbents                  |                             |                             |                             |                             |
|-----------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|
|                 | PA316                       | PA316S                      | TAS                         | PA316S + TAS                | PA316TAS                    |
| Mn              | n.a.                        | n.a.                        | $(1.1 \pm 0.2) \times 10^3$ | $(6.1 \pm 1.0) \times 10^1$ | $(6.3 \pm 1.0) \times 10^4$ |
| Co              | $(8.4 \pm 3.3) \times 10^0$ | $(1.5 \pm 0.3) \times 10^1$ | $(2.2 \pm 0.2) \times 10^3$ | $(4.5 \pm 0.2) \times 10^2$ | $(1.2 \pm 0.0) \times 10^4$ |
| Sr              | n.a.                        | n.a.                        | $(4.9 \pm 0.4) \times 10^3$ | n.a.                        | $(5.6 \pm 1.3) \times 10^4$ |
| Y               | $(1.1 \pm 0.5) \times 10^3$ | $(4.6 \pm 1.6) \times 10^3$ | $(6.6 \pm 3.0) \times 10^3$ | $(1.0 \pm 0.3) \times 10^4$ | $(4.9 \pm 2.1) \times 10^3$ |
| Ru              | $(3.0 \pm 0.5) \times 10^3$ | $(2.1 \pm 0.6) \times 10^4$ | $(3.0 \pm 0.0) \times 10^2$ | $(1.3 \pm 0.2) \times 10^2$ | $(3.0 \pm 0.1) \times 10^2$ |
| Rh              | $(2.2 \pm 0.3) \times 10^3$ | $(2.9 \pm 0.4) \times 10^4$ | $(1.0 \pm 0.0) \times 10^3$ | $(1.9 \pm 0.5) \times 10^1$ | $(2.5 \pm 0.1) \times 10^2$ |
| Sb              | $(1.5 \pm 0.0) \times 10^2$ | $(2.2 \pm 0.1) \times 10^2$ | $(3.9 \pm 0.2) \times 10^2$ | $(4.1 \pm 3.1) \times 10^0$ | $(6.0 \pm 0.1) \times 10^2$ |
| Te              | $(8.4 \pm 0.7) \times 10^2$ | $(5.8 \pm 0.7) \times 10^2$ | $(1.2 \pm 0.1) \times 10^3$ | $(2.7 \pm 0.2) \times 10^2$ | $(2.0 \pm 0.0) \times 10^2$ |
| Cs              | n.a.                        | n.a.                        | $(6.5 \pm 0.2) \times 10^2$ | n.a.                        | $(7.3 \pm 1.3) \times 10^2$ |
| Ba              | n.a.                        | n.a.                        | $(1.8 \pm 0.1) \times 10^4$ | $(2.1 \pm 0.3) \times 10^1$ | $(1.1 \pm 0.4) \times 10^5$ |
| Eu              | $(1.6 \pm 0.4) \times 10^3$ | $(5.4 \pm 1.2) \times 10^3$ | $(8.4 \pm 3.6) \times 10^3$ | $(3.2 \pm 0.3) \times 10^3$ | $(2.5 \pm 0.1) \times 10^3$ |
| I               | $(3.8 \pm 0.1) \times 10^4$ | $(2.0 \pm 0.1) \times 10^4$ | n.a.                        | $(1.0 \pm 0.1) \times 10^2$ | $(2.2 \pm 0.1) \times 10^2$ |
| IO <sub>3</sub> | $(4.6 \pm 0.1) \times 10^2$ | $(7.0 \pm 0.1) \times 10^2$ | $(1.0 \pm 0.0) \times 10^1$ | $(9.7 \pm 0.1) \times 10^2$ | $(1.0 \pm 0.0) \times 10^4$ |

Particle size = < 1180 μm, Adsorbent = 100 and 250 mg, Solution volume = 10 mL, Initial and final pH = 6.3 and 5.6(PA316), 6.6(PA316S), 3.0(TAS), 6.8(PA316S + TAS), 4.7(PA316TAS), n.a.: not adsorbed.