

ゼオライトによるアンモニア吸着等温線に関する研究

岐阜大学工学部 ○学生員 伊藤 義寿
岐阜大学工学部 正会員 湯浅 晶

1) はじめに

近年、上水水源のアンモニア汚染が進み、原水汚濁に伴う諸問題の中で、アンモニアへの対策が必要となっている。それらの問題を考えるにあたって、ゼオライトはアンモニア性窒素を選択的に吸着する能力を持っていることから、各方面で色々な研究が行われてきた。本研究ではこのゼオライトを用いて吸着実験を行い、ゼオライトの状態、ゼオライト添加量、アンモニア初期濃度を変えたときのアンモニア濃度とゼオライト 1 g 当たりの吸着量の関係を求め、Freundlich 型吸着等温線について検討を行った。

2) 実験方法

●ゼオライトの調整法

島根県産、粒径 1～2 mm の粒状ゼオライトを粉砕機にかけて $53\mu\text{m}$ 以下にふるいわけた粉末状のものを自然型ゼオライトとした。また、粒状ゼオライトをカラムに充填し、1 N-NaCl 溶液を充分に通水し完全に Na^+ を付着させた後で、同様に粉砕したものを Na 型ゼオライトとした。

●アンモニア吸着実験

500 mL 容の三角フラスコに乾燥状態のゼオライトを所定量採取し、塩化アンモニウム水溶液 200 mL を加えて平衡状態に達するまで攪拌を続け、 $0.6\mu\text{m}$ のガラスフィルターで吸引濾過した後、水温、pH、アンモニア濃度を測定した。アンモニアの初期濃度は約 5, 10, 25 mg-N/L の三段階に設定した。攪拌時間は 4 8 時間、アンモニアの分析はインドフェノール法、その他の陽イオンの分析は ICP 発光分析で行った。

3) 実験結果及び考察

○アンモニア吸着に伴う陽イオンの溶出

ゼオライトのアンモニア除去機構はイオン交換反応であるため、原水中のイオン当量濃度と処理水のそれとは等しい。つまり、ゼオライトがアンモニアを吸着した分だけゼオライト内の陽イオンが水中に溶出されていると考えられる。図-1 に自然型ゼオライトを用い、アンモニア初期濃度 24.406 mg-N/g

($=1.743\text{meq/L}$) の場合の処理水中の各イオン濃度を示す。ゼオライト添加量が増えるにしたがって NH_4^+ が減少し、逆に Na^+ が増加する。 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} の増加量はごく微量なので処理水中の Na^+ と NH_4^+ のイオン当量濃度の和は $1.702 \pm 0.05 (\text{meq/L})$ とほぼ一定となり、原水のイオン当量濃度とほぼ等しい。これはゼオライトが確かにイオン交換反応であることを示している。

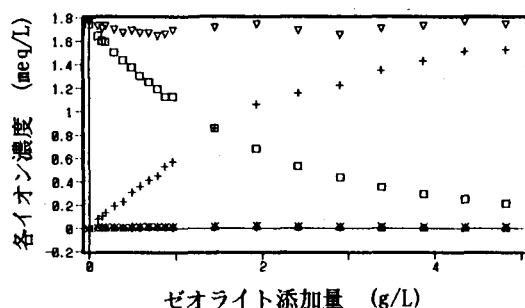


図-1: 水中の各陽イオン濃度の変化

□: NH_4^+
+: Na^+
◇: K^+
△: Ca^{2+}
×: Mg^{2+}
∇: $\text{NH}_4^+ + \text{Na}^+$

○自然型ゼオライトの吸着等温線

平衡時の処理水のアンモニア濃度 C (mg-N/L) とゼオライト 1g 当たりの吸着量 q (mg-N/g) の関係を図-2に示す。この図からアンモニア初期濃度によって吸着等温線は異なる。しかし、アンモニア残存率と吸着量の関係として示した吸着等温線は図-3に示すように初期濃度に関係なくほぼ一つの曲線に収束する。

ところで、ゼオライトのアンモニア吸着能を調べるには、一般にFreundlich型吸着等温線が用いられ、次式で表される。

$$q = k \cdot (C/C_0)^n$$

図-4は吸着量の対数と残存率の対数との関係を表したFreundlich型の吸着等温線である。この図から分かるように実験値はだいたい直線となり（相関係数=0.986）、上式で定義したFreundlich式で表すことができる。

なお、本実験で得られた吸着等温線は

$$q = 12.727 (C/C_0)^{0.529}$$

○自然型ゼオライトとNa型ゼオライトの比較

図-5は自然型ゼオライトとNa型ゼオライトによるアンモニア吸着等温線を比較したものである。全体的にみて両者はおおむね一致しているが、Na型ゼオライトの場合にはFreundlich型吸着等温線が自然型ゼオライトよりも適合性が悪い（相関係数=0.957）。またアンモニア残存率 C/C_0 が 0.15以下の領域と 0.9以上の領域で両ゼオライトのデータに差異が認められ、さらに検討をする必要がある。

[参考文献]

内田晴敏, 佐藤敦久: ゼオライトのアンモニア吸着等温線に関する考察, 水道協会雑誌, 第56巻, 第2号, pp.41-47 (1987)

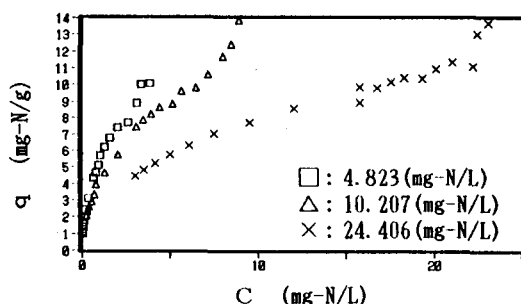


図-2: 自然型ゼオライトのアンモニア吸着等温線

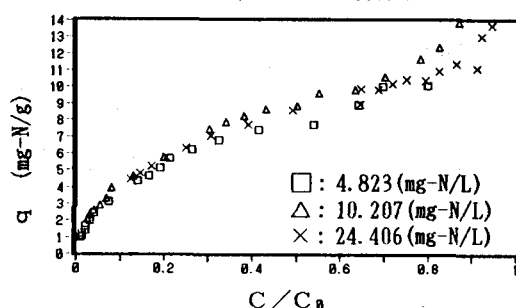


図-3: 自然型ゼオライトのアンモニア吸着等温線

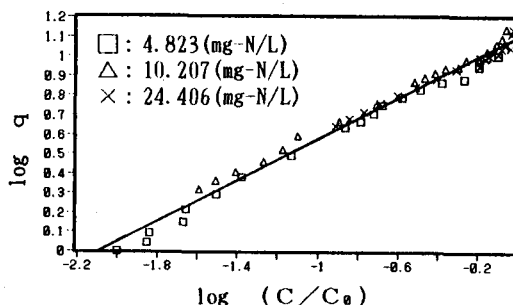


図-4: 自然型ゼオライトのFreundlich型吸着等温線

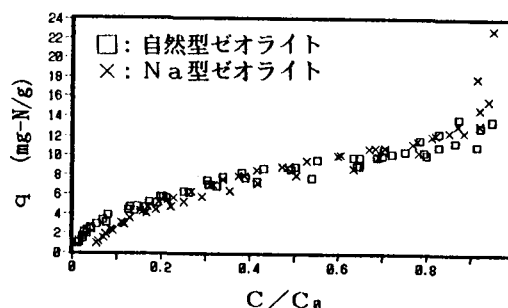


図-5: 自然型ゼオライトとNa型ゼオライトとのアンモニア吸着等温線の比較