

固定層活性炭におけるセシウムの吸着及び脱着挙動に関する検討

岐阜大学 学生会員 Pham Xuan Thanh・田島 鉄也
岐阜大学 正会員 李 富生・川口 倫由・山田 俊郎

1. はじめに

2011 年の福島第一原子力発電所事故により、大量の放射性セシウムが自然界に放出された。現時点でも放射性セシウムは土壌などに固着した状態で自然界に存在しており、降雨などにより河川へ流出し水道水源を汚染することが懸念されている。放射性セシウムによる汚染から水道水を守るためには、浄水処理プロセスにおける放射性セシウムの除去性を正しく評価した上で、適した対策を講じることが重要である。活性炭吸着は農薬や異臭味などの微量有機物の除去を目的とした高度な浄水処理方式の一つとして、その応用が多くなりつつある。活性炭によるセシウムの吸着能は低いとの報告はあるが、どの程度まで吸着できるか、活性炭の種類によってどう異なるのかについての知見は乏しく、対応した研究が大変重要である。

そこで本研究では、降雨によって集水域から流出されるセシウムの一部は溶存態の形で活性炭を付加した高度浄水処理施設に流入してくることを想定し、細孔分布と表面電位が異なる 3 種類の石炭系活性炭による固定層活性炭カラムに非放射性セシウムを連続的に流入させた吸着実験と吸着平衡に至った後の脱着実験をそれぞれ行い、固定層活性炭におけるセシウムの吸着挙動と脱着挙動を検討した。

2. 実験方法

通水実験のフローを図-1 に示す。内径 25mm のカラムに充填厚さがそれぞれ 10cm になるように活性炭を充填した。空塔接触時間は実際の固定層吸着施設とほぼ同様に約 20 分とした。実験には、流入するフミン質の影響を排除するため活性炭による吸着除去後の水道水にセシウムを一定の濃度(1 μ g/L) となるように調整したものを Phase 1 の通水実験の供試水として用いた。カラムからの流出濃度が流入濃度に至った後、流入濃度を 5 μ g/L に上昇させた通水実験を再開し、完全破過まで継続した。これを Phase 2 と称す。Phase 2 の実験終了時に流入濃度をさらに 10 μ g/L に切り替え、Phase 3 として実験を実施した。Phase 3 の実験終了後に、セシウム添加なしの水道水（つまり、流入濃度 0 μ g/L）を供試水とした脱着実験を行った。吸着実験と脱着実験は下降流方式に従い、流量はポンプによって制御した。

活性炭は、市販されている活性炭から細孔分布の異なる 3 種類の石炭系活性炭(Carbon A, Carbon B, Carbon C と称す)を用いた。粒径は 1.0-1.19mm に揃った。これら 3 種類の活性炭の細孔面積と細孔容積、及びゼータ電位を表-1 に示す。セシウムは、水環境中で放射性セシウム 134 や 137 と類似の挙動を示すとされている非放射性セシウム 133 を用いた。セシウムの濃度は ICP-MS によって定量した。

表-1 活性炭の細孔分布とゼータ電位

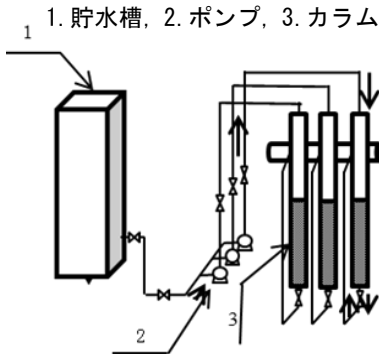


図-1 実験のフロー

細孔直径 (nm)	細孔表面積 (m ² /g)			細孔容積 (cm ³ /g)		
	Carbon A	Carbon B	Carbon C	Carbon A	Carbon B	Carbon C
0.35-1.0	1129	983	917	0.34	0.30	0.28
1.0-3.0	253	291	273	0.18	0.21	0.21
3.0-5.0	8	0	23	0.02	0.00	0.05
5.0-25	18	5	17	0.10	0.04	0.07
全体	1410	1279	1234	0.63	0.55	0.62
ゼータ電位 (mV)	-26.5	-18.8	-25.6			
標準偏差	5.7	8.1	6.6			

3. 結果と考察

セシウムの吸着挙動を Phase 1 の結果を例に図-2 (a)に示す。いずれの活性炭においても通水時間の増加に伴ってセシウムの流出濃度が上昇する。完全破過に至るまでの通水時間は活性炭によって大きく異なり、Carbon C の方が最短であった。積分法による累積吸着量の結果を図-3 に示す。累積吸着量は Carbon B が最も高く、Carbon B>Carbon A> Carbon C の順となっている。各活性炭の細孔分布に基づき、セシウムの累積吸着量との関連を調べた。正の関係が見られたのは細孔直径 0.35-1.0nm の領域の細孔表面積及び細孔容積であり、この領域の細孔が多く含まれている活性炭のほうセシウムに対する吸着能が高いことが示唆された。活性炭のゼータ電位とセシウムの累積吸着量の関係も調べた。3 種類の活性炭の中、ゼータ電位の負の値が

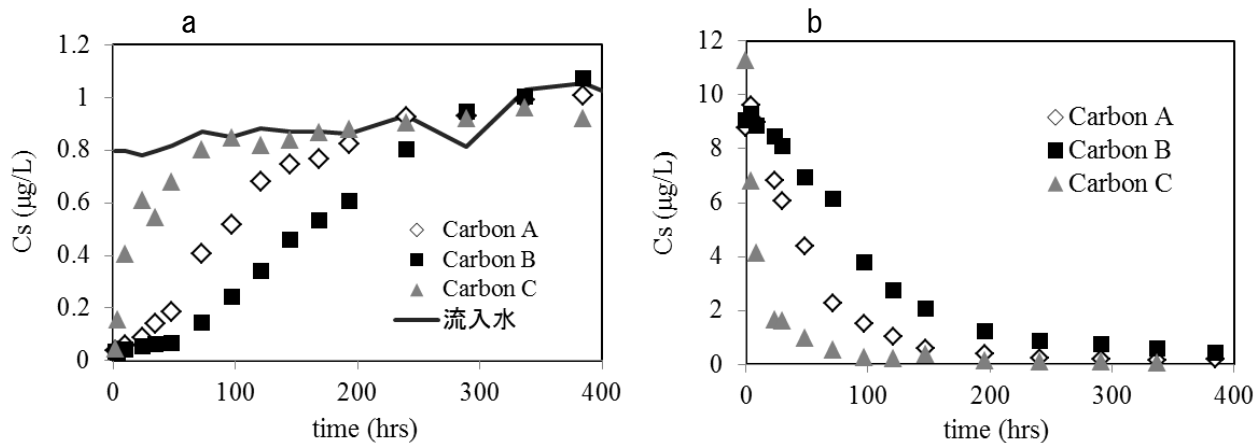


図-2 活性炭カラムによるセシウムの吸着挙動と脱着挙動

小さいものほどセシウムの吸着量が多くなる傾向がみられた．これはゼータ電位の負の値が大きいほどプラスイオンが吸着されやすいというイオン結合力に基づく予想に反しており，検討した3種類活性炭のゼータ電位特性の範囲では，活性炭の荷電特性がセシウムの吸着量へ与える影響は小さいことが示唆された．

吸着平衡に至った後に実施したセシウムの脱着実験の結果を図-2 (b)に示す．実験開始直後から流出水からセシウムが高濃度で検出され，以降徐々に流出濃度が低下した．累計脱着量は図-4のようにCarbon B>Carbon A>Carbon Cの順となっており，この順序は図-3に示した累計吸着量と同時であることが分かった．

セシウムを吸着させる前と吸着させたセシウムが約60%脱着された後の活性炭の細孔容積分布の測定結果を図-5に示す．セシウムの吸着により細孔容積が減少し，その減少は主に0.7nm以上の細孔領域内で生じており，セシウムの吸着サイドは全細孔表面積の約40%を占める同領域内に分布していることが分かった．

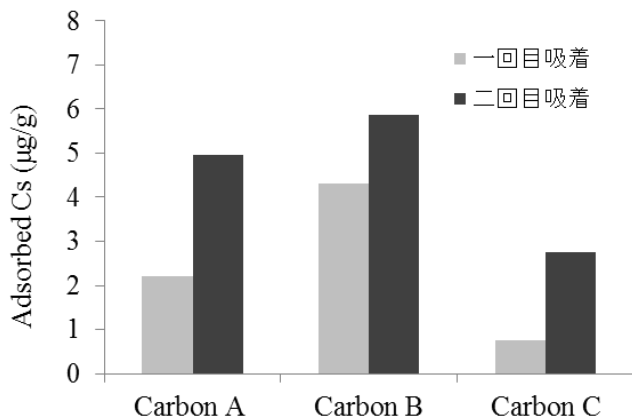


図-3 セシウムの累積吸着量

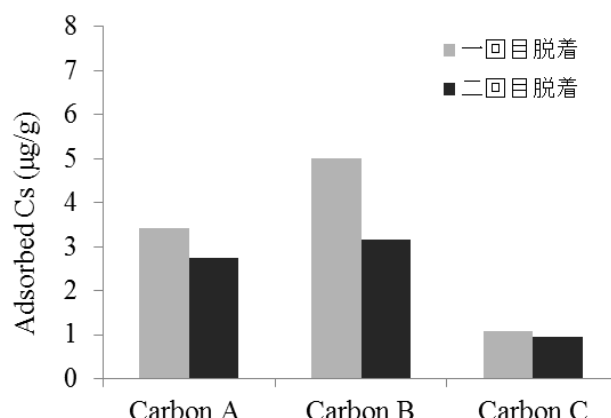


図-4 セシウムの累積脱着量

4. まとめ

3種類の活性炭を充填した固定層活性炭カラムによるセシウムの吸着挙動と脱着挙動を検討し，活性炭によって大いに異なることを明らかにした．また，セシウムの吸着サイドを細孔分布測定により評価し，主に0.7nm以上の細孔領域内に分布していることも明らかにした．今後はフミン質と共存した場合における吸着除去性や生物活性炭に生息した生物膜への付着について研究を実施する予定である．

参考文献：Kosaka K., Asami M., Kobashigawa N., Ohkubo K., Terada H., Kishida N. and Akiba M., (2012) Removal of radioactive iodine and cesium in water purification processes after an explosion at a nuclear power plant due to the Great East Japan Earthquake, Water Research. Vol. 46 pp 4397-4404

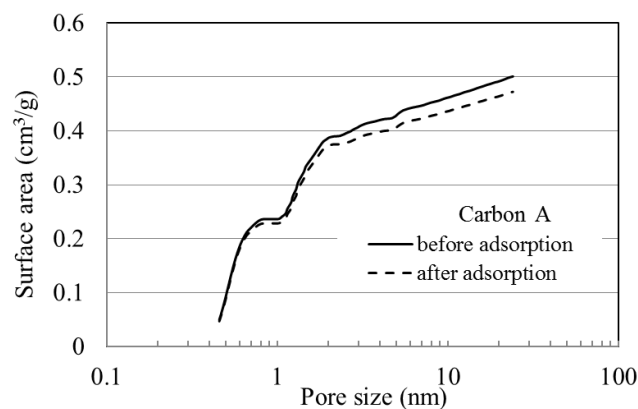


図-5 セシウム吸着による活性炭細孔容積分布の変化