

活性炭の Cs 吸着能を向上させる大気圧非平衡プラズマ処理法の検討

九州大学工学部 学生会員 ○鈴木俊資 九州大学大学院工学府 学生会員 山崎絢 李詩
九州大学大学院工学研究院 正会員 藤林恵 久場隆広

1. 序論

東北地方太平洋沖地震により福島第一原発で事故が発生した。この事故により環境中に多量の放射性物質が放出された。特に、 ^{137}Cs の半減期は約 30 年と長く、長期的に環境へ負荷を与え続けるため、環境中の Cs を除去する技術が必要とされている。

Kodama ら¹⁾は、活性炭に大気圧下での非平衡プラズマ処理を行うことでその表面に陽イオン吸着に有効とされる酸性官能基が導入されることを明らかにした。大気圧下でのプラズマ処理は減圧などの操作が必要なく簡便なこと、試料の比表面積にほとんど影響を与えないことなどの利点を持つ。また、石田ら²⁾は、プラズマ賦活処理を行った活性炭では未処理の活性炭に比べ Cs 吸着能が向上することを明らかにした。しかし、ゼオライトなど他の吸着材と比べるとその吸着能は劣っているため、吸着能を向上させるための工夫が必要である。

以上のことより、本研究では大気圧非平衡プラズマを用いた活性炭の Cs 吸着能を向上させる手法の検討を行った。

2. 実験方法

2-1. 試料について

市販のヤシ殻活性炭を用意した。この活性炭はヤシ殻を 700~800°C で炭化後、900°C で水蒸気賦活を施されている³⁾。

2-2. プラズマ処理時間についての実験

石田ら²⁾は活性炭にプラズマ賦活を 60 分間行うと Cs 吸着能が向上することを明らかにした。より時間を長くした場合の賦活処理時間と Cs 吸着能の関係を調べるため、2-1 の試料を対象としてプラズマ賦活を行った。プラズマ賦活装置はガラスを誘電体とした誘電体バリア放電によりプラズマを発生させる仕組みである⁴⁾。酸素ガス雰囲気下、酸素ガス流量 20ml/min、放電電圧 15kV、処理時間 10 分、30 分、60 分、90 分、120 分の 5 条件でそれぞれ試料に対し放電を行った。

2-3. Cs 吸着実験

2-2 で作成した賦活処理試料を対象に、100mg-Cs/L の塩化セシウム溶液を用いてバッチ方式で吸着実験を行った。実験条件は、固液比 1:100、25°C 恒温下、140rpm、振とう接触時間を 1 時間とした。振とう接触後の溶液中の Cs 濃度を、原子吸光分光光度計 (SHIMADZU、AA-7000) を用いて測定し、得られた結果から吸着率と吸着量を求めた。

2-4. プラズマ処理と温度の関係についての実験

次に、プラズマ処理中の温度についての簡易的な検討を行った。試料は 2-1 と同じものを使用し、プラズマ賦活を行う前に、前処理として乾熱滅菌器を 100°C に設定し、20 分間加熱した後、取り出してすぐにプラズマ賦活を行ったものと常温の 2 種類を用いた。乾熱滅菌器から取り出した後、試料の温度が急激に低下するため、処理時間を 10 分間と短く設定した。酸素ガス雰囲気下、酸素ガス流量 20ml/min、放電電圧 15kV で放電を行い、Cs 吸着実験については 2-3 と同様の条件で行った。

2-5. 酸素ガス流量に対する依存性についての実験

酸素ガス流量に対する依存性を調べるため、賦活処理中の流量を変えた実験を行った。試料は 2-1 と同様のものを使用し、酸素ガス雰囲気下、放電電圧 15kV、処理時間 60 分、酸素ガス流量 0ml/min、10ml/min、20ml/min、30ml/min の 4 条件で放電を行った。Cs 吸着実験については 2-3 と同様の条件で行った。

3. 実験結果

プラズマ賦活後の試料の Cs 吸着能を図-1 から図-3 に示す。

処理時間について、図-1 より、初期の 30 分で急激に Cs 吸着能が増加した。60 分までは Cs 吸着能力の向上が確認できたが、90 分、120 分と処理時間を長くしても吸着能の向上はあまり見られなかった。

プラズマ処理と温度の関係について、図-2 より、試料を加熱した状態と室温の状態では Cs 吸着能に大きな差異は確認できない。したがって、この簡易的な検討においては、活性炭の表面温度を上昇させて

も Cs 吸着能の向上は認められなかった。

処理中の酸素ガス流量の依存性の実験について、図-3 より、30ml/min までの範囲であれば、Cs 吸着能が線形的に向上していくことが確認できた。

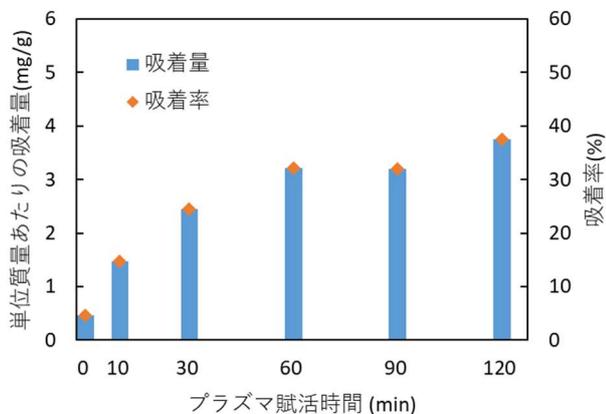


図-1. 処理時間別の Cs 吸着能

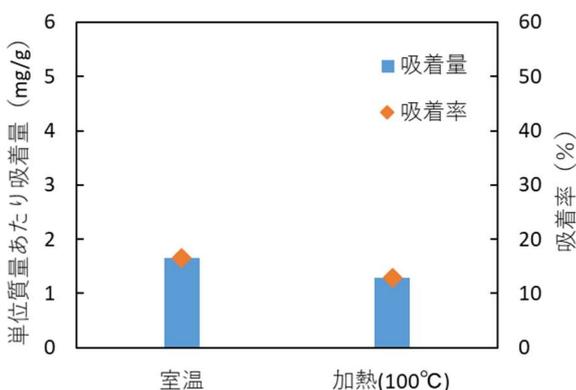


図-2. 熱処理条件での Cs 吸着能

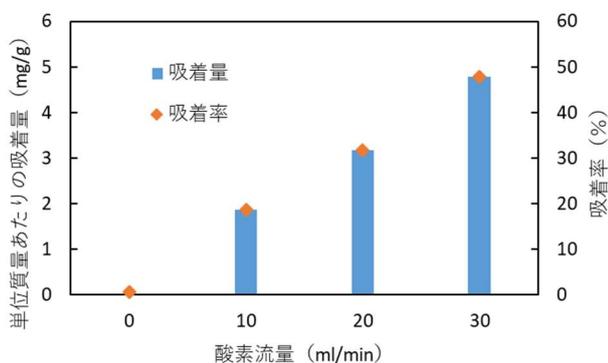


図-3. 酸素ガス流量に対する依存性

4. 考察

活性炭の Cs 吸着能が向上したのは、試料表面の酸性官能基の増加が主な原因である。また、処理時間

60 分以降の吸着能が向上しなかった原因として、プラズマ賦活の時間を長くしても Cs 吸着に有効なカルボキシル基(-COO-)といった酸性官能基量が増加しなかったことが考えられる。

一方、簡易的な実験ではあるものの、プラズマ処理中の試料温度は今回の実験条件下においては Cs 吸着能に影響しないと考えられる。

処理中の酸素ガス流量に対する依存性について、酸素ガス流量が大きくなったことで、活性炭と接触する酸素量が増加した結果、活性炭表面の酸性官能基の導入量が増え、Cs 吸着能の増加につながったと考えられる。また、今後の展望としてガス流量を段階的に大きくしていくと Cs 吸着能も向上していき、最終的には上限の値に達することが予想される。その値に到達する酸素ガス流量を調べることで、酸素ガス雰囲気下でのプラズマ賦活処理を施した活性炭の Cs 吸着能の上限を測ることができると予想される。加えて、Cs 吸着量に寄与する酸性官能基としてのカルボキシル基の量の増加を評価するため、XPS (X 線光電子分光法) などにより表面組成分析を行うことも必要である。

5. 結論

市販の活性炭にプラズマ賦活処理を行い、Cs 吸着能が向上する条件などを検討した。

- (1) 処理時間を 60 分間から 120 分間まで延長したが、Cs 吸着能の向上は認められなかった。
- (2) 簡易的に試料温度を上昇させてプラズマ賦活を行ったが、Cs 吸着能に変化は生じなかった。
- (3) 処理中の酸素ガス流量を 0~30ml/min まで変化させると、ガス流量が大きいほど Cs 吸着能が向上した。

参考文献

- 1) S. Kodama *et al*, Surface modification of adsorbents by dielectric barrier discharge (2002), Thin Solid Films, Vol.407, pp.151-155
- 2) 石田直也ら, 大気圧非平衡プラズマによる竹炭の賦活化処理が及ぼす Cs⁺吸着能への影響 (2019), 土木学会西部支部研究発表会講演概要集, Vol.53, pp.921-922, No.VII-57
- 3) 安部郁夫, 活性炭の製造方法 (2006), 炭素, Vol.2006, No.225, pp.373-381