

## 放電プラズマによる水中の難分解性有機物の酸化分解

千葉工業大学 学員 ○八木紀和

千葉工業大学 フェロー 瀧 和夫

千葉工業大学 伊藤晴雄

### 1. はじめに

上水道で塩素消毒する際、水中に有機物が含まれると発ガン性の前駆物質であるトリハロメタンを生成する問題がある。

本研究では、実用化された浄水処理のオゾンよりも酸化力の高い OH ラジカルを用いて、水中の有機物を二酸化炭素と水まで分解した。OH ラジカルは放電により生成し、OH ラジカルと検水を接触させた。本研究では、有機物初期濃度の変化による、分解効率を確認した。

### 2. 実験装置及び方法

水中パルス放電、空中パルス放電、持続放電の実験系により、試料水中の難分解性有機物分解の検討を行った。試料水として分子量が 60 と有機物としては小さく分解しにくい酢酸を用いた。

表 1 に各濃度の酢酸の TOC、EC、pH を示し、表 2 に各実験条件を示す。以下に各実験装置の概要および実験手順を示す。

図 1 に水中パルス放電装置を示す。放電電極はノズル中に直径 0.28mm のワイヤーを通し反応槽の底に設置し、アース電極は  $5 \times 5 \text{ cm}^2$  の網を用いた。反応槽に空気を注入した後、試料水を反応槽に入れ、放電を開始した。水中パルス放電回数は 80 回/min (酢酸濃度: 25mg/L)、10 回/min (酢酸濃度: 75mg/L) とした。

空中パルス放電装置は水中パルス放電装置回路(図 1)に空中持続放電装置用反応槽(図 2)を組み合わせた。平板を反応層底部に沈め、アース電極とした。手順は水中パルス放電とほぼ同様だが空気は放電開始前に注入した。空中パルス放電回数は 60 回/min (酢酸濃度: 25mg/L) とした。

図 2 に空中持続放電装置を示す。空中持続放電の場合のみ放電により水温が明らかに上昇したので水温上昇を防ぐため、反応槽を冷却水に浸した。手順は空中パルス放電と同様である。

放電後は処理水を攪拌し、採取した。酢酸の TOC 濃度は全有機炭素計(TOC VCSH/CSN, SHIMADZU)を用い測定した。式(1)により酢酸の TOC 濃度比を求めた。

**表1 酢酸のECとpH**

| 酢酸濃度(mg/L) | TOC(mg/L) | EC( $\mu\text{S}/\text{cm}$ ) | pH        |
|------------|-----------|-------------------------------|-----------|
| 25         | 10        | 30.2~31.2                     | 4.11~4.20 |
| 75         | 30        | 52.9~56.4                     | 3.85~4.02 |

**表2 各放電での実験条件**

|        | 水中パルス放電                              | 空中パルス放電       | 空中持続放電        |
|--------|--------------------------------------|---------------|---------------|
| 反応槽    | 四角いアクリル箱                             | 円筒ガラス         | 円筒ガラス         |
| 反応槽サイズ | $10 \times 10 \times 9 \text{ cm}^3$ | 高さ13cm, 直径8cm | 高さ13cm, 直径8cm |
| 検水量    | 400ml                                | 200ml         | 100ml         |
| 電極間距離  | 5mm                                  | 5mm           | 5mm           |
| 電圧     | 15kV程度                               | 15kV程度        | 15kV程度        |
| 空気注入量  | 0.5L/min                             | 0.1L/min      | 0.1L/min      |

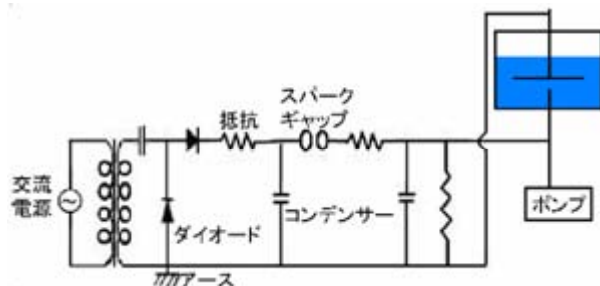


図1 水中パルス放電装置

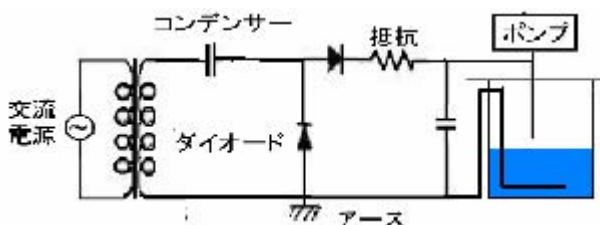


図2 空中持続放電装置

$$\text{TOC 濃度比} = \frac{t \text{ 時間の TOC 濃度 (mg/L)}}{\text{初期 TOC 濃度 (mg/L)}} \dots (1)$$

キーワード 水処理 難分解性有機物 放電 プラズマ

千葉県習志野市津田沼 2-17-1 (千葉工業大学) TEL;047-478-0452 FAX;047-478-0474

### 3. 結果及び考察

図3に各放電処理におけるTOC濃度比の経時変化を示す。放電方法に関わらずTOC濃度に大きな変化は見られなかった。図4に空中持続放電におけるpH変化を示す。放電処理後、pHは低下した。

本実験において放電により発生した高エネルギー電子による $H_2O$ の解離を式(2)に示し、励起、イオン化の反応式を式(3)に示す。pH低下の原因は式(3)に示す反応においてOHラジカルを生成する際、 $H^+$ が生成されpHが強酸性へ移行したと考えられる。

酢酸とOHラジカルにより式(4)に示すコルベ電解反応が起こると考えた。式(4)の反応によりメチルラジカル、 $CO_2$ 、 $H_2O$ が生成され、さらに式(5)の反応によりメチルラジカルはメタンもしくはエタンとなると考えられる。生成された $CO_2$ およびメタン、エタンは気体として溶液内から揮発するため、水中の炭素濃度が減少するはずである。しかし、放電処理後のTOC濃度に変化が生じていない。このことからOHラジカルはC-C結合を切断していないと考えられる。次にOHラジカルは炭素以外の場所と反応している場合を考える。式(6)の反応が起き、C-C結合の切断に至らなかったと考えられる。

以上の結果から、放電プラズマによる酢酸の分解には至らなかったが、OHラジカルの生成が確認できたといえる。

### 4. まとめ

3種の放電方法により難分解性有機物である酢酸の分解を試みた。結果、以下の事柄が明らかとなった。

- 1) 放電方法に関わらずTOC濃度に変化はなく、酢酸は分解されていない。
- 2) 放電の影響としてpHが低下した。
- 3) pH低下よりOHラジカルの生成は確認できた。

本研究の遂行にあたり装置全般について千葉工業大学工学部電気電子情報工学科林喬久先生と日本大学生産工学部中根偕夫先生にご助言をいただいた。記して感謝の意を表す。

### 参考文献

- 1) J. SIDNEY CLEMENTS, MSAYUKI SATO, ROBERT H. DAVIS, "Preliminary Investigation of Prebreakdown Phenomena and Chemical Reactions Using a Pulsed High-Voltage Discharge in Water" IEEE Transactions on Industry Applications, Vol. IA-23, No. 2, 1987, 224-235
- 2) 木下洋平, 池田宏允, 池田隆磨, 高島和則, 桂進司, 水野彰 "液面への放電によるインディゴカルミンの脱色" 静電気学会誌, 30, 1, 2006, 32-37

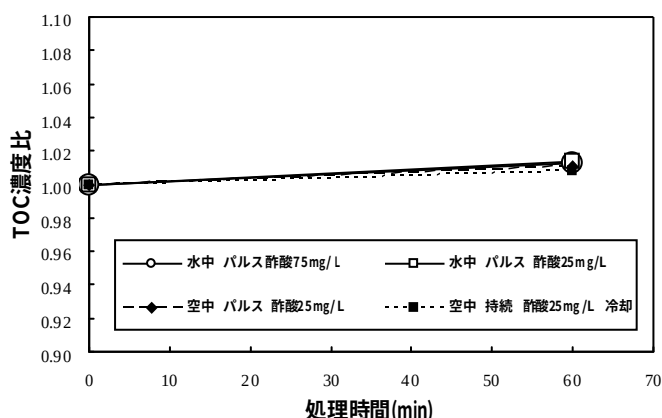


図3 各放電方法におけるTOC濃度比

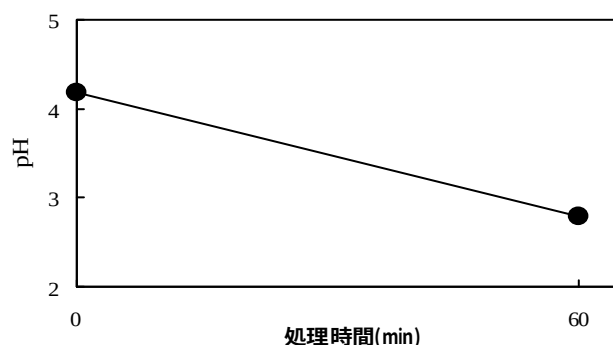


図4 空中持続放電におけるpH変化

