

## 水中パルス放電による難分解性有機物の酸化分解

千葉工業大学 学員 ○吉谷有希  
 千葉工業大学 講師 瀧 和夫  
 千葉工業大学 伊藤晴雄

### 1. はじめに

難分解性有機物に対する水処理にはオゾンを利用することが一般的である。しかしオゾンにおいても、難分解性有機物の分解が十分行われない場合がある。

そこでは、難分解性有機物の完全分解を目標として、水中プラズマを発生させ、OHラジカル(OH $\cdot$ )による難分解性有機物の分解処理の技術開発を試みた。その反応性および処理効果について報告する。

### 2. 実験装置及び方法

図1に実験装置を示す。本装置は、放電を起こすための回路系と反応槽とポンプ部分からなる反応系で構成されている。

電荷がある程度コンデンサに溜まると、スパークギャップを乗り越え、電極間で放電が起きる構造となっている。

反応槽はアクリル製のもので、縦6cm、横6cm、高さ10.5cmである。放電電極はステンレス鋼製注射針の内部に直径0.30mmの白金製のワイヤーを通したものを使用し、反応槽の底に設置されている。アース電極は5×5cmのステンレス製の金網を用いており、放電電極の真上に設置されている。さらに、水中での放電を起こしやすくするため注射針を通して、反応槽内に空気を注入するようにした。空気注入にはエアポンプを用いている。

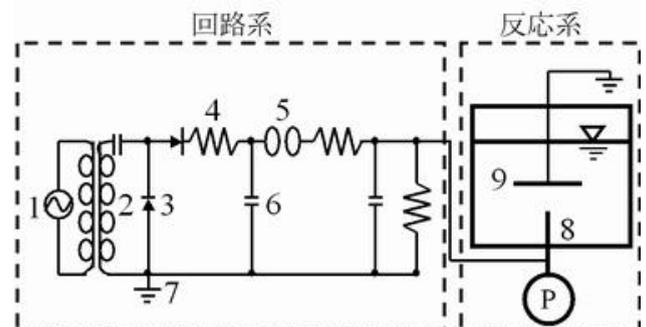
試料水は、酢酸を用いた。酢酸は分子量が60と有機物としては小さく、またオゾンの酸化力では切断しにくい炭素の一重結合を有するので、難分解性有機物のモデル物質として使われている。電極間距離を5mm及び7mmに調節し、反応時間をそれぞれ30分、60分とした。さらに、反応槽に流量0.6ml/lの空気を注入し、試料水の量を100ml、放電電圧を20kV、初期TOC濃度を5mg/lに設定した。

そして、反応槽に空気を注入しながら試料水を反応槽に入れ、放電を行った。放電後、処理水を攪拌・採取し、全有機炭素濃度計(TOC VCSH/CSN, SHIMADZU)を用いて処理水のTOCを測定した。その後、酢酸のTOC除去率を求めた。

### 3. 結果・考察

写真1は放電の様子である。針電極と平板電極の間で放電が起きていることが確認できる。

図2に電極間距離によるTOC除去率の経時変化を示す。図より、反応時間に比例してTOC除去率が増加していることがわかる。電極間距離5mmのとき、TOC除去率は30分で8%、60分で11%となり、電極間距離7mmでは、30分で3%、60分で5%となっている。よって、電極間距離が7mmより5mmの方が60分の場合6%TOC除去率が高いことがわかる。



1;交流電源 2;トランス 3;ダイオード 4;抵抗  
 5;スパークギャップ 6;コンデンサ 7;アース  
 8;放電電極(白金線) 9;アース電極(ステンレス製の

図1. 実験装置図

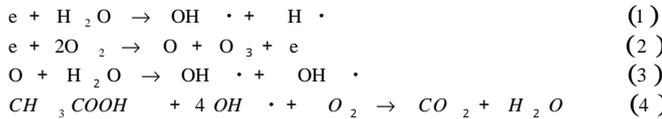
キーワード 水処理 難分解性有機物 放電プラズマ

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

反応時間に比例してTOC除去率が上昇した原因について、以下のように考えられる。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水分子の解離を式(1)、さらに酸素と電子による  $\text{OH}\cdot$  の生成を式(2)、(3)、 $\text{OH}\cdot$  による酢酸との反応を式(4)に示す。式(1)、(2)、(3)の反応より  $\text{OH}\cdot$  が生成され、式(4)の反応で酢酸が二酸化炭素と水に完全分解された。そして、生成された二酸化炭素は気体として溶液から揮発する為、水中の有機炭素濃度が減少したと考えられる。よって、反応時間が長いほど式(1)から(4)の反応が多く起こるので、除去率が上がったと考えられる。



写真1. 放電の様子  
(電極間距離 5mm)



次に、電極間距離により除去率に差がみられた原因として、 $\text{OH}\cdot$  が多量に生成されたことによる過酸化水素の生成が考えられる。電極間距離 7mm の場合では、5mm の場合に比べて高エネルギーの電子がより多く生成されている。さらに水とプラズマが接している部分が大いので、 $\text{OH}\cdot$  の生成が 5mm の時と比べて多いと考えられる。そして、 $\text{OH}\cdot$  の寿命は式(5)によって決定される。また、式(3)の反応速度は式(6)より表すことができる。

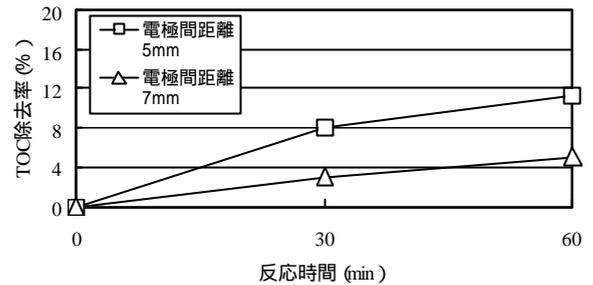


図2. TOC濃度の経時変化



ここに、 $r$ ; 反応速度、 $k$ ; 反応速度係数、 $[\text{OH}\cdot]$ ;  $\text{OH}\cdot$  の密度を示す。

この式(6)より、 $\text{OH}\cdot$  の消滅反応速度は  $\text{OH}\cdot$  密度  $[\text{OH}\cdot]$  の二乗に比例していることがわかる。よってこの反応により、 $\text{OH}\cdot$  が消費され  $\text{OH}\cdot$  と酢酸との分解反応にまで至らなかったと考えられる。

さらに過酸化水素は式(7)の反応をおこす。



$h\nu$  は紫外線を示している。過酸化水素は紫外線との反応によって  $\text{OH}\cdot$  に光解離する。しかし、生成された  $\text{OH}\cdot$  の密度が過剰になってしまったため再び式(5)の反応が進行し、効率的な  $\text{OH}\cdot$  と酢酸の反応が起こらなかったと考えられる。

#### 4. まとめ

水中放電により難分解性有機物である酢酸の酸化分解を試みた結果、以下のことが明らかになった。

- (1) 放電によって  $\text{OH}\cdot$  が生成され酢酸の TOC が除去できた。
- (2) 電極間距離 7mm の場合においては  $\text{OH}\cdot$  の生成量が過剰であり、過酸化水素が生成され効率的な処理が行われなかった。

本研究の遂行にあたり装置全般について千葉工業大学電気電子情報工学科林喬久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) 飯島崇文, 久保貴恵, 沖田裕二, 村田隆昭, “パルス・コロナ放電によるラジカル・インジェクション処理” 日本オゾン協会年次研究講演会講演集, (2004) pp.145-148
- 2) 八木紀和, 瀧和夫 (2006) 放電プラズマによる水中の難分解性有機物の酸化分解, 第34回土木学会関東支部技術研究発表会講演概要集, 土木学会, CD-ROM