

オゾン/光触媒反応におけるヒドロキシルラジカル生成の促進効果

東北学院大学 学生会員 ○佐々木 章聡
東北学院大学 学生会員 安部 達哉
東北学院大学 学生会員 伊藤 俊祐
東北学院大学 正 会 員 韓 連熙

【序論】

近年、有機化合物を迅速に分解・除去する方法として最も注目されているのは促進酸化処理法である。促進酸化処理では、主にオゾン処理が用いられている。一方、Payton[1]と Beltran[2]らは、オゾン処理に UV を併用し、有機物質の分解効率が向上したことを報告した。

そこで本研究では、プローブ物質としてヒドロキシル (OH) ラジカルとの反応性が高い *p*-クロロ安息香酸 (*p*-CBA) を用いて、オゾンと二酸化チタン (TiO₂)、光源にブラックライト (BL) を併用して OH ラジカルの生成に関する促進効果についての解析を行った。

【実験方法】

試料溶液は *p*-クロロ安息香酸 (*p*-CBA) の濃度を 5 mg/l とした。オゾン濃度を 1, 5, 10 mg/h とし、オゾン単独処理, O₃/TiO₂併用処理, O₃/BL併用処理, O₃/TiO₂/BL併用処理を行った。また TiO₂/BL併用処理も行った。反応時間は 60 分とし、10 分ごとに試料を採取した。

ブラックライト (BL, 東芝 ; FL10BLB) は最大波長 352nm, 10W を使用し、分析は高速液体クロマトグラフ (HPLC, 島津製作所 ; LC-9 A) を用いた。オゾンガスは純酸素をオゾン発生器に通しオゾンを発生させ、流量計を通して反応槽へ注入する。反応槽の容量は 1 l とし、中央にブラックライトを 1 本設置し、それを囲むように光触媒 (TiO₂) をコーティングしたガラスフィルム (幅 : 2 cm, 高さ : 28 cm) を配置してオゾンを試料に送るための散気チューブを反応槽の底に設置し、攪拌器を用いて拡散させた。また、実験に際してはブラックライトを用いた場合には光が反射するように、その他でも条件を同じにするため、反応槽の外側にアルミホイルを巻いた。

【結果・考察】

オゾン単独処理において、*p*-CBA 分解率はオゾン濃度依存性であることが確認された (図 1)。O₃/TiO₂ 併用処理と O₃/BL 併用処理の分解率をオゾン単独処理と比較したところ、分解率はわずかに増加し、増加量はオゾン濃度に依存する事が確認できた (data not shown)。

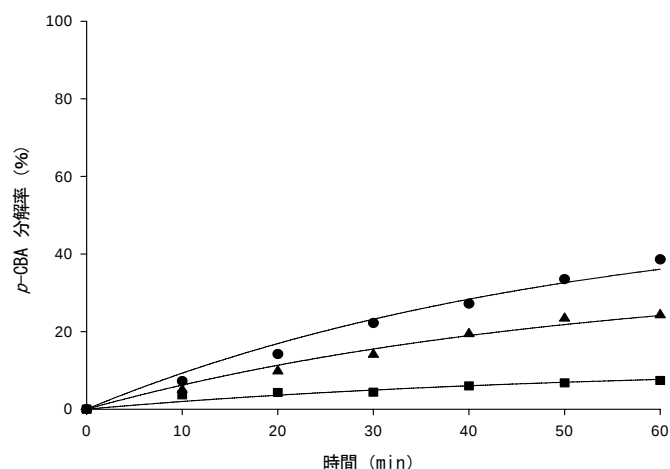


図 1. オゾン単独処理における *p*-CBA 分解率の近似曲線

● : オゾン単独処理 (10 mg/h),
▲ : オゾン単独処理 (5 mg/h),
■ : オゾン単独処理 (1 mg/h),

キーワード オゾン酸化反応 光触媒 ヒドロキシルラジカル *p*-CBA

連絡先 〒985-0873 宮城県多賀城市中央 1 丁目 13-1 東北学院大学工学部 環境建設工学科 TEL 022-368-7341

O_3 / TiO_2 /BL併用処理では、いずれのオゾン濃度の p -CBA の分解率も 100 % となり、 p -CBA が完全に分解された事を確認した。しかし、 O_3 / TiO_2 /BL 処理時の分解率は、オゾン単独処理や O_3 / TiO_2 、 O_3 /BL 併用処理時のようなオゾンの濃度による有意な差は見られなかった (図 2)。

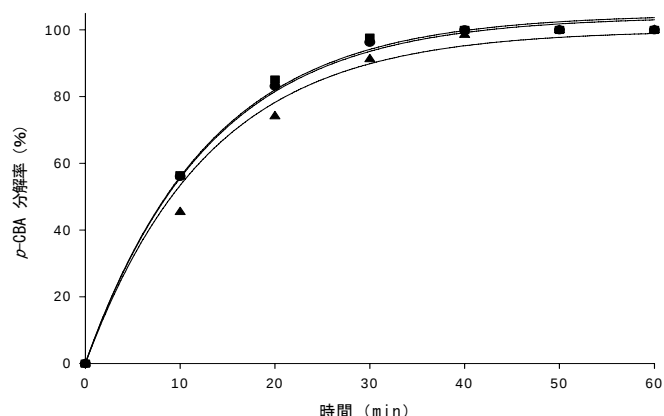


図 2. O_3 / TiO_2 /BL 併用処理における p -CBA 分解率の近似曲線

- : $O_3(10 \text{ mg/h}) /TiO_2 /BL$ 併用処理
- ▲ : $O_3(5 \text{ mg/h}) /TiO_2 /BL$ 併用処理
- : $O_3(1 \text{ mg/h}) /TiO_2 /BL$ 併用処理

TiO_2 /BL 処理時の p -CBA 分解率は 60 分で 78.6 % (40 分 : 62.0%) であった。この結果により、光触媒反応が p -CBA の分解に影響を及ぼすことが確認された。またオゾン (1 mg/h) 単独処理時の p -CBA の分解率は 7.4 % (40 分 : 6.2%) であった。この結果により、 $O_3(1 \text{ mg/h}) /TiO_2 /BL$ 併用処理時の p -CBA の分解率は算術的に約 90 % 前後 (40 分 : 70% 前後) であることが予想された。しかしながら、図 3 の結果によると、 $O_3(1 \text{ mg/h}) /TiO_2 /BL$ 併用処理時の p -CBA の分解率は 40 分で 100 % に達した。このことより、 $O_3(1 \text{ mg/h}) /TiO_2 /BL$ 併用すると反応時間 40 分で約 30% の分解促進効果が得られた。この促進効果は、オゾンと BL、 TiO_2 の相互作用から生成された OH ラジカルによって促進されたと考えられる。

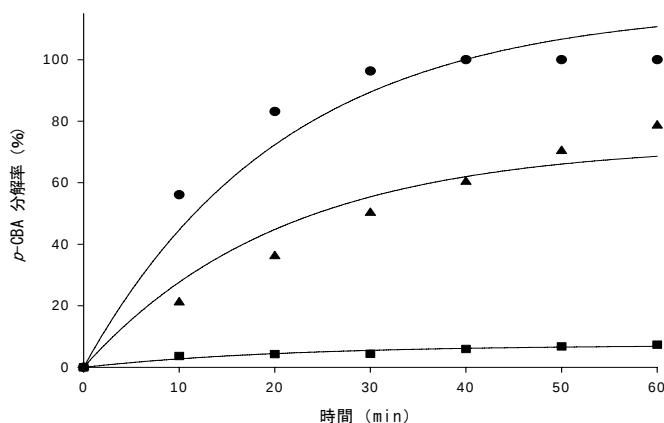


図 3. オゾン単独処理と TiO_2 /BL、 O_3 / TiO_2 /BL 併用処理の分解率の近似曲線

- : $O_3(1 \text{ mg/h}) /TiO_2 /BL$ 併用処理
- ▲ : TiO_2 /BL 併用処理
- : オゾン (1 mg/h) 単独処理

【結論】

オゾン単独処理では濃度依存性が見られた。しかし、 O_3 / TiO_2 /BL 併用処理では、分解率はほぼ同等であったことから、これらを併用することで、低濃度のオゾンでも同等の効果を得ることができ、副生成物質やコスト面でも効果的な処理法であることが示唆された。

【引用文献】

- [1] Payton G.A. and Galaze W.H., Destruction of pollutants in water with ozone in combination with ultraviolet radiation. 3. Photolysis of aqueous ozone, Environ. Sci. Technol., 22(7), pp.761-767, 1988.
- [2] Beltran F.J., Garcia-Araya J.F. and Acedo B., Advanced oxidation of atrazine in water—II. Ozonation combined with ultraviolet radiation, Water Res, 28(10), pp.2165-2174, 1994.