

二酸化チタンを塗布したコンクリート材料による微量化学物質の除去に関する研究

高知大学 学生会員○橋内博紀 正会員 藤原拓, 正会員 佐藤周之, 正会員 大年邦雄
開発コンクリート(株) 山田登志夫

1. はじめに

面源から排出される化学物質は、排出源が特定しにくく広く分散している、低濃度である、主な排出が降雨時に集中する、などの理由から処理施設での除去が困難であり、対策が急がれている。面源由来の微量化学物質の1つに水田施用農薬があり、水田からの排水は農業排水路を経由して河川や湖沼に流出する。本研究では、面的に広がる排水路コンクリートにより微量化学物質を除去する技術の開発を目的とし、TiO₂を塗布したコンクリートによる微量化学物質の除去速度およびその影響因子を検討した。

2. 実験方法

腰高シャーレにステンレス製の網を設置し、その網の上に4x4x1cmのコンクリート供試体(反応面を3x3cmとし、それ以外の面が反応に関わらないようにシリコンを塗ったもの)を配置した装置を実験に用いた。1100mlの試料溶液を装置に投入後、UV照射を行い試料溶液をスターラーで攪拌した。また、試料溶液の水温を25±2℃、pHを6.5~7.5に制御した。TiO₂によるAsulam、1,4-Dioxaneの分解特性および影響因子を検討する目的で、表1に示す一連の実験を行った。実験開始から0h, 3h, 6h, 12h, 18h, 24h後に採水し、Asulamについては高速液体クロマトグラフ、1,4-Dioxaneについてはガスクロマトグラフ質量分析計で液相中濃度を測定した。通常はTiO₂(20wt%)を塗布したコンクリート試料で実験を行ったが、RUN1-3についてはTiO₂を塗布していないコンクリート試料で実験を行った。また、RUN1-4およびRUN2-2についてはコンクリート試料を投入せずに実験を行った。影響因子として、UV照射強度およびTiO₂塗布量に着目し、これらが分解速度に及ぼす影響を検討した。本実験では、対象化学物質の揮発・反応系への吸着、UVによる分解、TiO₂への吸着、TiO₂による分解により、液相中の微量化学物質濃度が減少する。このため、各々の要因による反応速度定数を後述の方法により算出した。光触媒反応の反応速度定数に基づき、TiO₂によるAsulamの分解速度に及ぼす影響因子を評価した。

表1 回分式実験条件

RUN	1-1	1-2	1-3	1-4	1-5	1-6	1-7	1-8	2-1	2-2
対象物質	Asulam								1,4-Dioxane	
初期濃度(μg/L)	1000								600	
UV照射強度(μW/cm ²)	350	0	350	0	100	600	350	350	600	0
TiO ₂ 塗布量(μL)	750	750	0	0	750	750	150	450	750	0

溶媒量1100mL, 水温25±2(℃), RUN1-4およびRUN2-2に関してはpH制御なし

3. 結果および考察

図1に、RUN1-1~1-4におけるAsulam濃度の経時変化を示す。図より、光触媒にUVを照射したRUN1-1においてのみ、大きな濃度低下が見られた。各RUNの分解速度定数を式(1)および式(2)に基づき評価した。

$$\frac{dC}{dt} = -kC \quad \dots (1)$$

$$k = k_{pc} + k_p \cdot I_s + k_{ad} + k_{vo} \quad \dots (2)$$

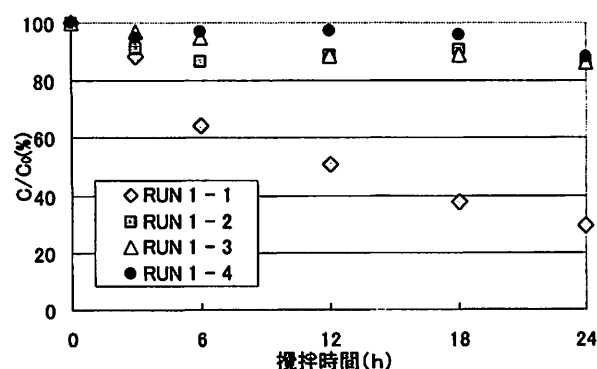


図1 Asulam濃度の経時変化

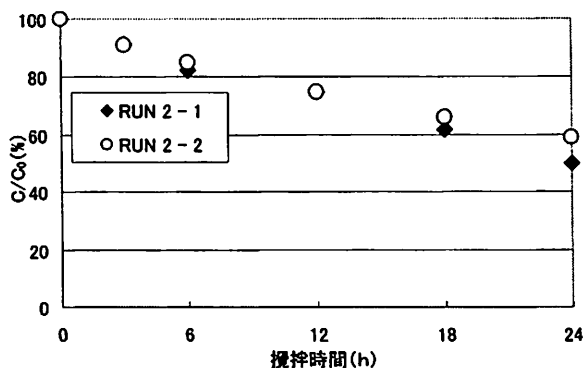


図2 1,4-Dioxane濃度の経時変化

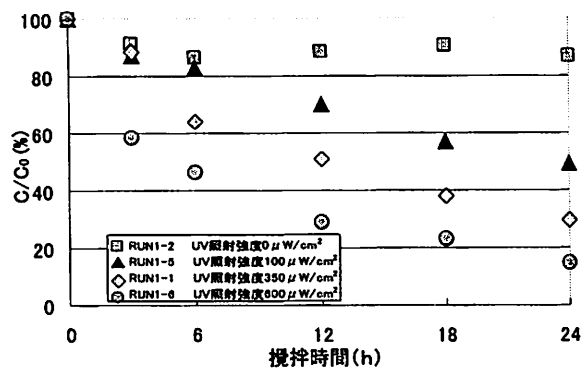


図3 UV照射強度が分解速度に及ぼす影響

ここで、

C:微量化学物質濃度($\mu\text{g/L}$)

k :分解速度定数(h^{-1})

k_{pc} :光触媒反応の速度定数(h^{-1})

k_p^* :照射 UV 強度あたりの速度定数($\text{h}^{-1} \cdot \text{cm}^2 \cdot \mu\text{W}^{-1}$)

I_s :UV 強度($\mu\text{W}/\text{cm}^2$)

k_{ad} : TiO_2 への吸着の速度定数(h^{-1})

k_{vo} :揮発および系内への吸着に関する速度定数(h^{-1})

RUN1-1 の k_{pc} , $k_p^* \cdot I_s$, k_{ad} , k_{vo} は各々 $0.0429(\text{h}^{-1})$, $0.0050(\text{h}^{-1})$, $0.0023(\text{h}^{-1})$, $0.0011(\text{h}^{-1})$ と算定された。以上より、RUN1-1 における Asulam 濃度の減少は光触媒反応によるものと考えられた。

1,4-Dioxane 濃度の経時変化を図 2 に示す。RUN2-1、2-2 のいずれにおいても実験期間中に 40~50% の濃度低下が見られた。RUN2-1 の $k_{pc} + k_p^* \cdot I_s + k_{ad}$ は $0.0061(\text{h}^{-1})$ 、 k_{vo} は $0.0217(\text{h}^{-1})$ と算出され、1,4-Dioxane のヘンリー則定数を勘案すれば、特に RUN2-1 では、揮発による濃度低下が生じ、 TiO_2 による分解の寄与は小さかったことが示された。

UV 照射強度および TiO_2 塗布量が分解速度に及ぼす影響を図 3 および図 4 に示す。図 3 より UV 照射強度および TiO_2 塗布量の増加にともない Asulam 分解速度が増加したことが示されている。実験結果および RUN1-1 で算定した k_p^* , k_{ad} , k_{vo} を用いて算定した k_{pc} と、UV 照射強度ならびに TiO_2 塗布量との関係を図 5、図 6 に示す。図 5 および図 6 より、UV 照射強度、 TiO_2 塗布量の増加にともない k_{pc} も上昇することが示され、これらが光触媒反応における重要な影響因子であることが示された。

4. まとめ

水温が 25°C かつ中性の条件下において、Asulam は TiO_2 による光触媒反応によって分解したが、1,4-Dioxane の濃度低下は揮発によるものが大きく、その他の要因の寄与は小さかった。また、UV 照射強度及び TiO_2 塗布量は光触媒反応における重要な影響因子であることが示された。

謝辞

本研究は科学技術振興機構平成 20 年度シーズ発掘試験(発掘型)課題番号 14-073 の補助により行われた。

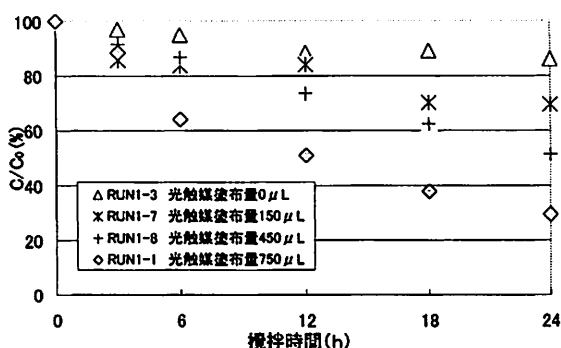


図4 TiO_2 塗布量が分解速度に及ぼす影響

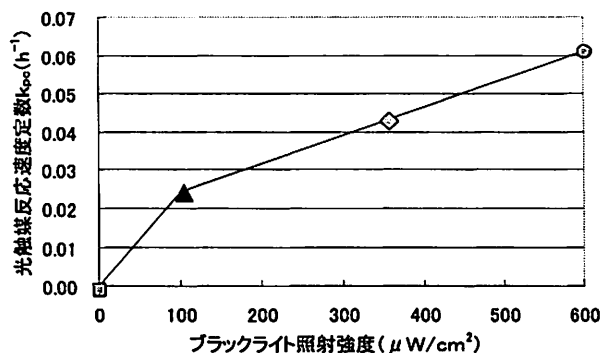


図5 UV照射強度と光触媒反応速度係数の関係

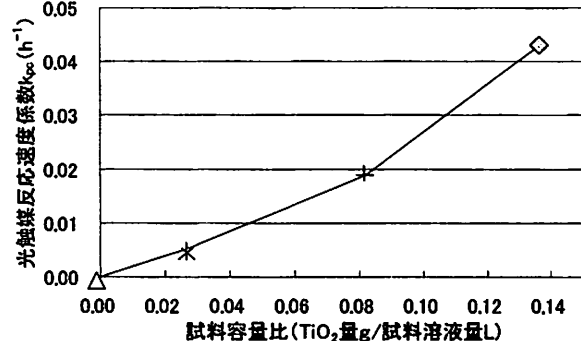


図6 TiO_2 塗布量と光触媒反応速度係数の関係