

# 論文内容要旨（和文）

氏 名 能 勢 泰 祐 

## 論 文 題 目 気中パルス放電プラズマによる水滴噴霧型水処理装置の 効率化に関する研究

近年、世界人口の急激な増加に起因する環境問題の1つである水不足、水質汚染等の水環境問題がある。この問題は今後益々深刻さを増していくものと考えられ、この問題に対処するため、水環境の汚染を防ぎ、水を効率的に利用する技術の開発が益々重要になると考えられる。本論文では、このようなニーズに応えるための1つの高度水処理技術として、気中パルス放電プラズマを利用した水滴噴霧型水処理装置の効率化に関する研究について述べる。本処理技術は、ヒドロキシルラジカル( $\cdot\text{OH}$ )やオゾンなどの酸化力の強い活性種をパルス放電により生成させ、溶解する有機化学物質などの処理対象物質を含む水滴に対して活性種を作用させることにより効率良く分解させるものである。最終目標は水処理装置を開発することにあるが、本論文では特にその水処理技術の効率化を図るため、有機化学物質に活性種が作用する場としての反応槽に供給する混合ガス比率の効果、被処理水中に溶解する電解質の効果及び有機化学物質の分解性の検証に着目し検討した。

まず、反応槽に供給するガス種として酸素及び窒素を用い、インジゴカルミンの脱色及び水相中に溶解する生成物に対する酸素の効果について検討した。その結果、脱色速度は $\text{O}_2/\text{N}_2=50/50\sim 90/10$ の範囲でほぼ一定で最も高く、 $\text{O}_2/\text{N}_2=20/80$ と比較すると最大で約2倍になった。以上より、酸素比率が高いと脱色速度が向上し、酸素が脱色に重要な役割を果たしていることを明らかにした。さらに、水中生成物の生成経路及びその課程で反応に関与する活性種を推定した結果、ヒドロペルオキシラジカル( $\text{HO}_2\cdot$ )が水中の $\cdot\text{OH}$ の生成に重要な役割を果たしていると考えられる。

次に、被処理水に様々な量の電解質を添加することによりイオン濃度及び電気伝導率を変化させ、インジゴカルミンの脱色速度への影響及び過酸化水素生成量への影響について検討した。その結果、インジゴカルミンの脱色速度は5 mMまではほとんど影響を受けず、さらに濃度が高くなるに従い低下することを明らかにした。また、水相中の過酸化水素の生成量は、塩素イオンでは5 mMまで、硫酸イオンでは10 mMまではほとんど影響を受けず、それ以降イオン濃度の増加に従い減少することがわかった。以上より、脱色速度及び過酸化水素の生成量は、電解質の影響を受けることが明らかとなった。さらに脱色速度と過酸化水素の生成量に相関関係がみられたことより、脱色速度は $\cdot\text{OH}$ の生成量に依存していると考えられる。

次に、インジゴカルミンの脱色速度における鉄イオンの添加効果について、鉄イオンの添加量を変えることによって検討した。その結果、被処理水中に $\text{Fe}^{2+}$ を添加することにより、脱色速度は添加しない時に比べ向上し、最大の脱色速度は添加しない時と比較し1.5倍になった。その時の至適な $\text{Fe}^{2+}$ 濃度は95  $\mu\text{M}$ であった。また、鉄イオンを添加した時の脱色速度に及ぼすpHの影響を検討したところ、pHが4.7から8.0の範囲で安定的に脱色反応が起こることがわかった。以上より、脱色速度の上昇は、 $\text{Fe}^{2+}$ と過酸化水素とのフェントン反応によって生成する $\cdot\text{OH}$ の生成量が増加しているためであると考えられる。

最後に、処理対象物質として酢酸ナトリウムを用い、その分解特性と酸素の効果について検討した。その結果、酢酸イオン濃度が処理時間とともに減少し、水中にギ酸イオン、過酸化水素、硝酸イオン及びわずかな亜硝酸イオンの生成を確認した。さらに水中の全有機炭素量も処理時間とともに減少し、その分解率は、 $\text{O}_2/\text{N}_2=10/90$ 及び $\text{O}_2/\text{N}_2=50/50$ の条件下でそれぞれ48 %及び78 %であった。このことより酢酸イオンが分解され、無機化していることが明らかとなった。酢酸イオンの放電エネルギーに対する分解効率は、 $\text{O}_2/\text{N}_2=50/50$ 条件下の方が $\text{O}_2/\text{N}_2=10/90$ よりも2.2倍高かった。以上より、本処理技術により有機化学物質の分解が可能であり、酸素が有機化学物質の分解の向上に重要な役割を果たしていることを明らかにした。

本論文の結論として、気中パルス放電プラズマによる水処理において、反応槽への酸素の供給と被処理水への鉄イオンの添加が有機化学物質の処理効率向上に重要であり、被処理水中の電解質濃度は水処理フローの設計過程で考慮される必要があることを明らかにした。

# 学位論文の審査及び学力確認の結果の要旨

平成25年 2月18日

理工学研究科長 殿

論文博士論文審査委員会

主査 南谷 靖史



副査 杉本 俊之



副査 木島 龍朗



副査 會田 忠弘



副査



学位論文の審査及び学力確認の結果を下記のとおり報告します。

## 記

### 1. 論文申請者

氏 名 能勢 泰祐

### 2. 論文題目

気中パルス放電プラズマによる水滴噴霧型水処理装置の効率化に関する研究

### 3. 審査年月日

論文審査 平成25年 1月23日 ～ 平成25年 2月 8日

論文公聴会 平成25年 2月 8日

場所 工学部5号館301号室

学力確認 平成25年 2月 8日

### 4. 学位論文の審査及び学力確認の結果

(1) 学位論文審査 合格

(2) 学力確認 合格

### 5. 学位論文の審査結果の要旨

別紙のとおり

### 6. 学力確認の結果の要旨

別紙のとおり

別 紙

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |       |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------|
| 氏 名                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | 能勢 泰祐 |
| 学位論文の審査結果の要旨                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |       |
| <p>本論文では水環境問題に対応するため大気圧中でパルス放電を発生させて・OH やオゾンなどの酸化力の強い活性種を生成させ、水滴状にした水中に溶解する有機化学物質などの処理対象物質に活性種を作用させることにより分解する技術の効率化を目指している。</p> <p>第1章は緒論で地球の水環境の現状、水環境を改善するために用いられる水処理技術の特徴、放電プラズマの水処理への応用のために必要となる活性種と被処理物質との反応についての考え方、反応電極―反応場の形態について述べている。</p> <p>第2章では気相中でパルス放電を発生させるとき反応槽に供給するガスに酸素及び窒素を用い、その比率を変化させることによりインジゴカルミンの脱色及び亜硝酸イオン、硝酸イオン、オゾン及び過酸化水素の水相中に溶解する物質の精製に対する効果について検討し、酸素と窒素の混合比率が変わるとインジゴカルミンの脱色速度及び効率、水中溶解生成物の濃度が変化し、至適な酸素と窒素の混合比率が存在することを明らかにしている。</p> <p>第3章では気相中でパルス放電を発生させるとき、被処理水中に電解質を添加することによる放電波形に及ぼす影響、インジゴカルミンの脱色速度及び効率と過酸化水素水の生成に対する影響について検討し、電解質濃度の上昇によりピーク電圧、ピーク電流及び放電エネルギーに影響することを明らかにしている。</p> <p>第4章では気相中でパルス放電を発生させるとき、被処理水中に鉄イオンを添加することによるインジゴカルミンの脱色速度及び効率に対する効果について検討し、添加する鉄イオン量により脱色速度及び効率が上昇し、至適な鉄イオン濃度が存在することを明らかにしている。また、鉄イオンを添加した時の脱色速度に及ぼす pH の影響についても検討している。</p> <p>第5章では処理対象物質として酢酸ナトリウムを用い、酸素及び窒素雰囲気下でパルス放電を発生させ処理したときの酢酸ナトリウムの分解性と酸素の効果について検討し、酢酸ナトリウムが分解可能であり有機化学物質の分解に酸素が重要な役割を果たしていることを明らかにしている。</p> <p>第6章では本論文の総括し水滴噴霧型無図処理装置の効率化のための最適な条件について考察を加えている。そして本水処理装置を水処理フローの中でどのように適応すべきかについて考察している。</p> <p>本論文の内容は電気学会論文誌基礎材料共通部門誌2件及びアメリカ電気技術者協会のプラズマ科学論文誌2件にて公表、掲載されている。</p> <p>実験項目の組み立ては周到で、本論文の結果の呈示と考察は論理的かつ明解である。論文内容については口頭でも審査を行ったが回答は適切であった。したがって本博士論文審査委員会は本博士論文を合格と判定する。</p> |       |
| 学力確認の結果の要旨                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |       |
| <p>学力の確認は放電プラズマ化学、パルスパワー工学について口頭質問にて行った。質問に対する回答は的確で、専攻分野に対して十分な学力を持っていることが確認された。外国語科目については放電プラズマ化学、パルスパワー工学関係の英語について口頭質問及び筆答で行った。質問に対する回答は的確で、やはり十分な学力を備えていることが確認された。したがって本博士論文審査委員会は学力確認の結果は合格と判定する。</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |       |