

平成 21 年 3 月 31 日現在

研究種目：基盤研究 (C)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19560295
 研究課題名 (和文) 水中キャビテーション放電マイクロプラズマによる海洋細菌の殺滅
 研究課題名 (英文) Sterilization of Oceanic bacteria using micro-plasma produced in Water cavitation field
 研究代表者
 猪原 哲 (IHARA SATOSHI)
 佐賀大学・理工学部・准教授
 研究者番号：90260728

研究成果の概要：

本研究は、海洋細菌の殺滅を目指した研究であり、特に水中キャビテーション場で放電を形成し、水中にマイクロプラズマを形成、そのプラズマの作用によって活性ラジカルを生成する。本研究は、水中キャビテーション放電における放電状況、放電特性、放電によるラジカル生成の実証とその水処理効果の評価を行った。

交付額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|------|-----------|-----------|-----------|
| 19年度 | 2,900,000 | 870,000 | 3,770,000 |
| 20年度 | 700,000 | 210,000 | 910,000 |
| 21年度 | 0 | 0 | 0 |
| 22年度 | 0 | 0 | 0 |
| 23年度 | 0 | 0 | 0 |
| 総計 | 3,600,000 | 1,080,000 | 4,680,000 |

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学，電力工学・電力変換・電気機器

キーワード：キャビテーション，マイクロプラズマ，海洋細菌，パルスパワー，活性ラジカル

1. 研究開始当初の背景

バラスト水とは、船舶が安全航行を確保するために「おもし」として積載する海水である。バラスト水は世界各国の水域で排出されるため、海水中の生物、細菌類が世界の海域に拡散し、これによって生態系の破壊、赤潮発生などによる漁業活動への被害、魚介類を経由した人体への影響などが世界的規模で問題になっている。平成 16 年 2 月に開催された国際会議において、バラスト水処理基準が示されるとともに、バラスト水の処理装置を義務づけることなどが決定された。

バラスト水処理法として、オゾン処理、紫外線処理、加熱処理、加圧処理などが検討されてきたがコストの問題を抱えている。比較的大型の動物性プランクトン、小動物、甲殻類などについては、フィルタリングによる除去や、キャビテーションによって殺滅する方法が実用的であることが分かっているが、海洋細菌については有効な処理方法が確立されていない。

キャビテーション法は最も実用的な手法として注目されている。また、新しい処理手法として、パルスパワー放電（衝撃波）によ

る処理が提案されている。しかしながら、いずれの方法も比較的大型の小動物や甲殻類には効果的あるが、海洋細菌のように微小で弾力性を有している場合は効果が低い。

水中気泡内放電法は、水中の気泡内で形成される放電であり、反応性が強い化学的活性種を水中に直接生成できる次世代高度水処理法の一つである。申請者は、本手法によるラジカル生成とその作用による酸化・分解反応の実証を行ってきた。また不活化および殺滅が可能であることはすでに報告例がある。ハイブリッド法(キャビテーション法と水中気泡内放電法の併用)により、動物性プランクトン、小動物、甲殻類から海洋細菌までを効果的に処理できる可能性がある。

オゾンはその強い酸化力と環境への影響も少ないことから殺菌、消毒、漂白、脱色、有機物分解など様々な用途に用いられている。しかしながら、オゾンによる処理は、オゾン生成、排処理のための費用が高いことや、ダイオキシンなどの難分解物質の問題を有している。

最近では、オゾンよりも酸化力が高いOHやOなどのラジカル(化学的活性種)を放電によって生成し、それを水中難分解性物質の分解に用いる試みがなされている。この場合、放電は水面近傍に形成された場合や、水中の気泡内に形成された例もある。によるラジカル生成を様々な方式が研究されているが、実用化されたものとしてオゾン処理工程にUV(紫外線)照射を付加した促進酸化法がある。この方法は、濃縮した酸素ガスに放電を発生させることによりオゾンを生じ、このオゾン在水中に溶解してUVを照射する。このとき、オゾンとUVとの反応によりOHラジカルが生成され、被処理物を処理するという手法である。しかし、この方法もオゾン発生までに余分なコストがかかってしまう。このため水中で直接ラジカルを生成する手法として、マイクロバブルを水中に注入し、バブル内で放電を発生させることでラジカルを生成する水中気泡内放電などが提案されている。

これまでの研究でキャビテーション微小気泡群に高電圧を印加することによって放電形成が確認され、インジゴカルミン溶液の脱色効果が確認された。またOHラジカルの生成を示唆する結果が得られている。しかし、放電特性や様々な条件下での脱色効果の違いなどの確認が不十分であった。そこで、電極間距離、電源周波数による脱色効果・放電特性の比較のために吸光度と放電波形の計測を行った。また、電源投入電力および放電電力に対する処理能力について検討した。

2. 研究の目的

本研究の目的は、キャビテーション法と水中気泡内放電法併用したハイブリッド法による処理の実証と処理装置開発のための基礎的知見を得ることである。本研究で提案されている手法は、高速水流によって極微小のキャビテーション気泡群を水中に形成し、その気泡群に高電圧を印加して放電を形成するというものである。本研究はこの手法を各種用水の処理に適用することを狙いとしている。この手法の特徴としては、促進酸化法のようにラジカルの発生にオゾンが必要とせず、装置内でキャビテーションを発生させるためマイクロバブルなどの気泡を外部から注入することを必要としない。また、放電によるラジカル、電界、紫外線だけではなくキャビテーションの衝撃力の効果も期待できるといった点である。

3. 研究の方法

(3・1) 実験装置

図1に実験装置の構成の概要図を示す。実験装置は、水槽、ポンプ、リアクター、水槽を循環する水路、インバータ、および高電圧電源で構成されている。放電リアクターはアクリル製であり、その内部にノズルを設置しており、循環する試料水の流れ方向に対して垂直の向きに対向電極を取り付けている。試料水(20L)がポンプによって循環される際にリアクター内部に設置されたノズルによって無数の微小なキャビテーション気泡群が形成される。電極間隔は、2mm、5mmの2条件とした。対向設置している電極の一方を高圧側電極とし、もう一方を接地側電極とした。印加電圧は1000:1の高圧プローブ(Tektronix製、P6015A)を用いて測定し、放電電流は接地側電極からアースの間に接続した電流プローブ(Pearson Electronics製、Model 2877)を用いて測定した。これらは、デジタルオシロスコープ(Agilent製、DSO80304B)を用いて測定した。試料水を循環させるためのポンプは、インバータによって駆動され、その設定によって、ポンプ吐出し圧や循環水量が調整可能である。試料水の吸光度(612nm)の測定には、多目的水質分析計(HACH社製DR2010)を用いた。

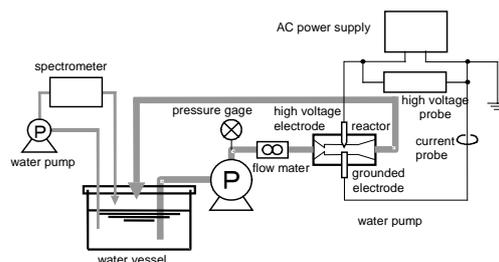


図1 実験装置構成

Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus.

〈3・2〉 実験方法 インジゴカルミン溶液脱色実験には、試料水として精製水 20L にインジゴカルミン 9mg/Lの割合で溶解させたものを用いた。ポンプを用いてリアクターと流路内に試料水を循環させ、インバータにより流量を 20L/minに設定した。電源周波数を、所定の周波数に設定し、リアクター内にキャビテーションの発生を確認したら高電圧電源により電極間に電圧を印加した(電極間隔をあらかじめ調整しておく)。電源の一次側に接続したパワーメータにより電源に投入されている電力を測定し、約 100Wまで上昇させる。その後の吸光度の推移を記録する。電源周波数 10, 12, 15, 17, 20kHzの 5条件と電極間距離 2, 5mmの 2条件を組み合わせるこの実験を行った。

4. 研究成果

〈4・1〉 放電状態 図 2 に電極間の放電発光の写真を示す。写真において、水流は図面左側から右側へ向いている。ノズル先端部でキャビテーションが発生し、それによる気泡群が下流方向へ移動する。電極先端は、水流に対して垂直に挿入されている。電極間において強い放電発光が観測されている。

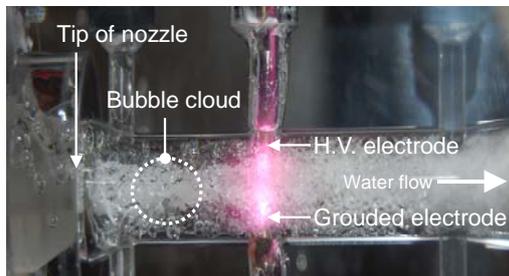


図2 電極間の放電発光

Fig. 2. Photograph of discharge emission at the electrodes.

〈4・2〉 放電特性 図 3 に放電が発生していない時の電極間の印加電圧波形(1周期分)を示す。印加電圧は両極性の交流高電圧であり、ピーク付近においてパルス状になっている。図 4, 5 は、それぞれ電極間距離が 2, 5mmのときの典型的な電圧・電流波形(放電発生時)を示している。放電は、電圧波形のパルス状に立ち上がる領域で発生している。2mmの場合は、放電開始電圧は約 1.5kV、放電電流のピーク値は約 4Aである。5mmでは、放電開始電圧は約 1.6kVとなっている。5mmの場合は放電開始電圧が高くなるため、印加電圧が正負のどちらかの極性において放電が発生しない場合がある。

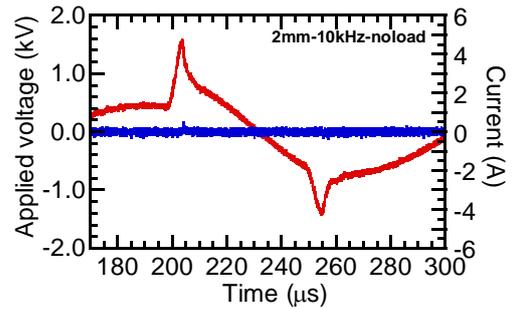


図3 電圧電流波形(無放電時)
(電源周波数 10kHz, 電極間距離 2mm)

Fig. 3. Voltage and current waveforms without discharge at a frequency of 10kHz and a gap distance of 2mm.

図 6 は、図 4 で電圧が正極性の時間領域について時間軸を拡大したものである。放電電流は約 200ns程度のパルス幅をもっている。本実験で用いた電源は、負荷に対する印加電圧のコントロールをしておらず、常時負荷へ電力供給をしているため、放電が消弧し、放電部のインピーダンスが回復すると、電極間電圧が再び立ち上がり、放電開始電圧に達すると再び放電電流が立ち上がる。およそ数・s毎に間欠的に放電が発生しており、その時間間隔は、放電が消弧した後の印加電圧の立ち上がり時間に依存する。

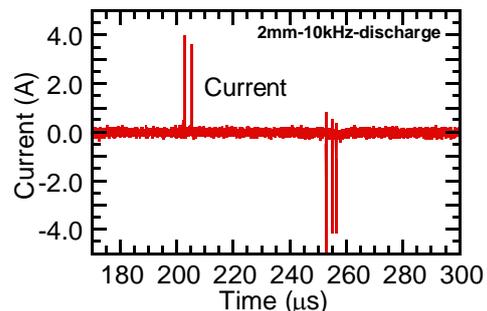
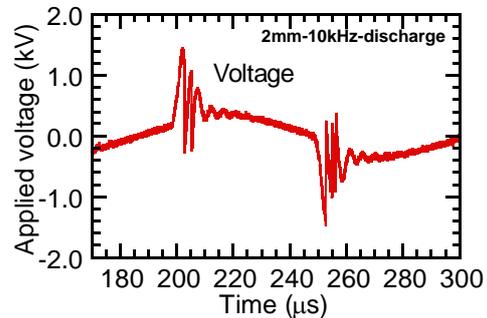


図4 電圧電流波形(放電発生時, 上: 電圧, 下: 電流)

(電源周波数: 10kHz, 電極間距離: 2mm)

Fig. 4. Voltage and current waveforms with discharge when the frequency was 10kHz and the distance between electrodes was 2mm.

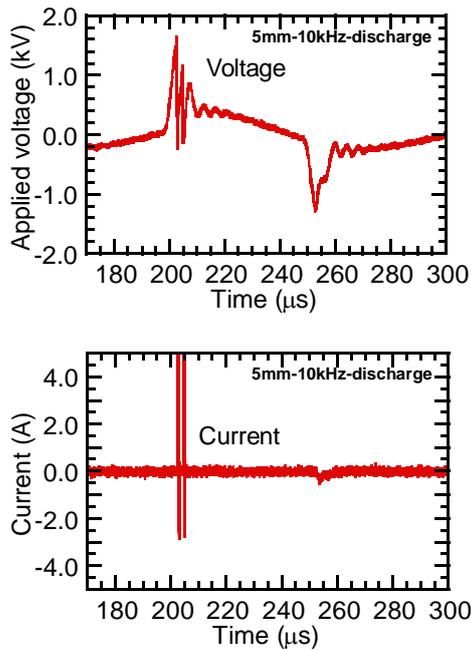


図5 電圧電流波形（放電発生時，上：電圧，下：電流）
（放電時，電源周波数：10kHz，電極間距離：5mm）

Fig. 5. Voltage and current waveforms with discharge when the frequency was 10kHz and the distance between electrodes was 5mm.

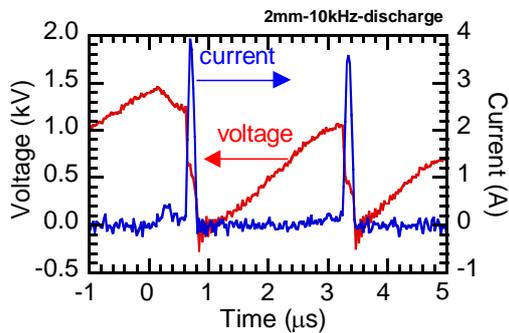


図6 電圧電流波形（図4の拡大図）
（放電時，電源周波：10kHz，電極間距離：2mm）

Fig. 6. Voltage and current waveforms with discharge when the frequency was 10kHz and the distance between electrodes was 2mm.

図6の波形から，放電電流ピーク時での放電部の抵抗値の概算すると，185Ω（1回目の放電），133Ω（2回目の放電）となった（ただしインダクタンスは無視した）．典型的には2回目以降の抵抗値は，1回目の値よりも低い傾向にある．これは，放電路に残存した荷電粒子，金属粒子などが後続の放電に影響している可能性を示唆している．放電部での平均流速は7.4m/s（=試料水流量/流路断面積）であり，この値を用いると，図6の電流

パルスの時間間隔（2.6μs）での試料水の平均移動距離は約20μmとなる．図7は，図4，5のような電圧電流波形から，単位時間あたりの放電回数をカウントし，平均放電電力に対してプロットしたものである．1つのプロットは任意に記録した20個の波形についての平均値である．1個の波形には印加電圧10周期分が記録されているため，合計200周期分の平均値である．また，平均放電電力は，放電によって消費された電力の平均値を意味し，図4～6に示されている電圧・電流の積の積分値から算出した．

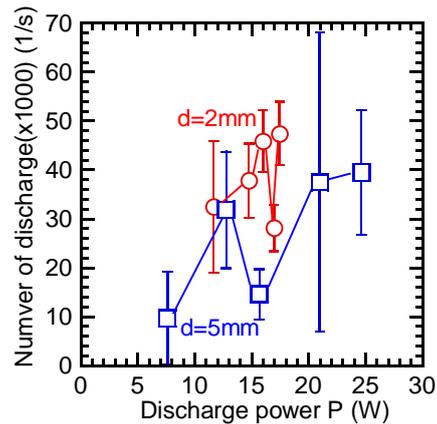


図7 平均放電電力に対する単位時間あたりの放電回数（○：電極間距離2mm，□：電極間距離5mm）

Fig. 7. Characteristics of the number of discharge on average discharge power.

この実験条件においてもっとも少ない放電回数は，電極間距離2mmの場合は $28 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ （平均放電周期は36・s），5mmの場合は $10 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ （平均放電周期は100・s）である．上記の平均流速を考慮すれば，試料水の平均移動距離は，電極間距離2mmおよび5mmの場合でそれぞれ，約0.3mm，約0.7mmとなり，平均移動距離は電極間距離に対して十分短いことが分かる．以上のことから，放電路は，前駆の放電路に沿って形成されている可能性がある．

〈4・3〉 吸光度の推移 図8は，インジゴカルミン溶液の脱色実験結果の1例を示している．横軸は放電処理時間を表し，縦軸は吸光度（対数表示）を表す．電極間距離が2mmおよび5mmの場合について示している．電源周波数は10kHzであるであり，両者ともに平均放電電力は約16Wである．図8から，電極間距離2mmの方が吸光度の減少勾配が大きい，つまりインジゴカルミンの脱色効果が高いことが分かる．また，放電処理時間にわたってほぼ一定の減少勾配で吸光度が減少していることから，一定の反応速度定数のもとで脱色反応が進んでいることが分かる．

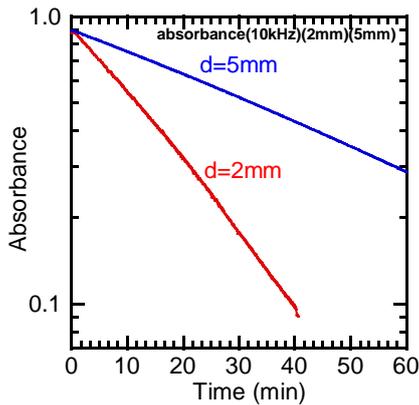


図8 放電時間に対する吸光度の変化
(電源周波数: 10 kHz,
電極間距離 2mm および 5mm の場合)

Fig. 8. Evolutions of absorbance on discharge time at $d=2$ mm and $d=5$ mm when the frequency was 10 kHz

図9は、図8の結果を元にして、平均放電電力に対する吸光度の減少勾配をプロットしたものである。ここで減少勾配とは、吸光度の放電処理時間ゼロから20分までの間の平均勾配を表している。また、これらの実験結果は、平均放電電力の変化について整理したものであるが、電源への総投入電力は100W一定に設定している。図9の結果から、電極間距離2mmのほうが放電電力に対する処理効率が高いことが分かる。これは、平均放電電力に対する単位時間あたりの放電回数が2mmのほうが多いことが一因であると考えられる(図7)。しかし、図7と図9から、吸光度減少勾配と放電回数との間に完全な相関はないので、今後の検討が必要である。また、放電現象の観点からは、5mmの方が放電開始電圧が高く、印加電圧の一方の極性のみしか放電しない場合がある(図5参照)ため、時間的な放電の均一性が低いということも原因の1つとして考えられる。目視での放電観測においても、5mmの場合は放電が間欠的に発生しているおり、一方2mmの場合は、放電が連続的かつ安定に形成されていることが確認された。

図9の結果は、電源総投入電力が100W一定に設定されていることから、電極間隔2mmの方がシステム全体としての処理効率が高くなっていることが分かる。この結果は、本研究の目的において重要な点の一つであり、実験条件の選定によって処理コストの低減を実現できることを示唆するものである。

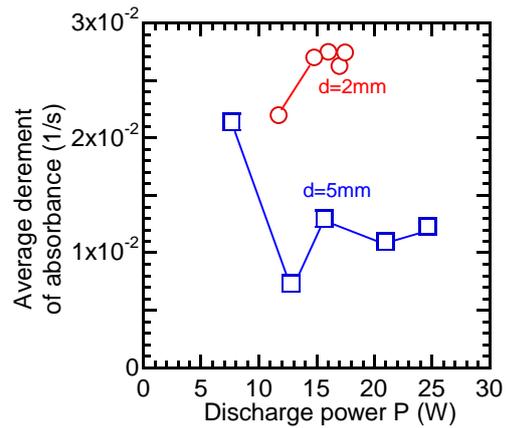


図9 平均放電時間に対する吸光度減少勾配の変化

(○: 電極間距離 2mm, □: 電極間距離 5mm)
Fig. 9. Characteristics of average decrement of absorbance on average discharge power at $d=2$ mm and $d=5$ mm.

海洋細菌の殺滅ならびに各種水処理への適用を念頭にして、キャピテーション放電の放電特性と水処理効率を評価することを目的とし、インジゴカルミン溶液の脱色実験を行い、平均放電電力および電源総投入電力に対する処理能力について実験的検討を行った。その結果以下のことが分かった。

- (1) 放電路の抵抗値(ただしインダクタンスは無視)は約100~200Ωになっており、後続の放電ほど、低くなる傾向が見られた。
- (2) 平均放電周期における試料水の平均移動距離は、電極間距離に対して十分短い。
- (3) 電極間距離2mmと5mmの場合とを比較すると、2mmのほうが放電電力に対する処理効率が高くなった。
- (4) 条件の選定により、システム全体の処理効率(電源効率も考慮)を向上させることが可能であることが分かった。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計2件)

- ① 廣幡, 小湊, 猪原, 山部, 吐合, 池, 平林, 玉川, 「キャピテーション微小気泡群放電による水処理の効果に関する基礎特性」, 電気学会パルスパワー・放電合同研究会資料, pp.41-44, 平成20年(2008), 査読なし。
- ② 猪原, 廣幡, 小湊, 山部, 池, 吐合, 平林, 玉川, 「キャピテーション微小気泡群放電を用いた水処理装置における処理効率と放電特性の検

討」, 電気学会プラズマ研究会資料,
pp.27-31, 平成 20 年(2008), 査読なし.

[学会発表] (計 3 件)

- ① 猪原哲, 廣幡大樹, 小湊佑一, 山部長兵衛, 池英昭, 吐合一徳, 平林和也, 玉川雅章, 「キャビテーション微小気泡群放電を用いた水処理装置における処理効率と放電特性の検討」, 電気学会全国大会, 講演番号 1-106, 平成 21 年(2009) 3 月 17 日発表, 北海道大学.
- ② 廣幡大樹, 小湊佑一, 猪原哲, 吐合一徳, 池英昭, 平林和也, 山部長兵衛, 玉川雅章, 「キャビテーション放電水処理装置における処理効率の検討」, 電気関係学会九州支部連合大会, 講演番号 05-1A-08, 平成 20 年(2008) 9 月 24 日発表, 大分大学
- ③ 猪原哲, 廣幡大樹, 吐合一徳, 池英昭, 平林和也, 山部長兵衛, 「キャビテーション微小気泡群放電による水処理の基礎特性」, 平成 19 年(2007)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

猪原 哲 (IHARA SATOSHI)

佐賀大学・理工学部・准教授

研究者番号: 90260728