

令和 6 年 6 月 20 日現在

機関番号：12401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04017

研究課題名（和文）界面密度を制御した球雷状放電の難分解性排水処理機構の解明

研究課題名（英文）Study of a waste water decomposition mechanism for the Ball lightning like discharge method controlling contact time duration and reaction areas

研究代表者

前山 光明 (Maeyama, Mitsuaki)

埼玉大学・理工学研究科・教授

研究者番号：00196875

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：「球雷」と呼ばれる大気圧下で発生し、大容積、長い持続時間を持つ放電を用い、それにより生成されるOHラジカルの強力な酸化力を利用した新しい水処理方法の実現に向けた基礎特性の解明を行った。電極材料を変えた測定により、銅以外では分解が全く起こらないか、処理速度が非常に小さくなり電極材料の選別が重要であることを見出した。ある印加電圧の極性において処理開始直後は処理速度が大きいが、その後低下する現象があり、溶液中に溶け出すCuイオンとの副生成物の濃度の増加がこれに大きく関わっていることを見出した。また、発生するOHラジカルの温度や密度の値を計測し、本放電が活性種生成源として有効であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

循環型社会の実現に向け、安全な水の確保、工業用廃液の無害化処理や、その再利用方法の確立が重要な課題となっている。従来の薬品を用いた方法とは違い放電法は、処理後に処理困難な物質の生成などの問題がなく、また、従来の化学反応では分解困難な物質の処理も可能という特徴を持つ。本研究で用いる「球雷放電」は、促進酸化法と呼ばれる水処理で利用される化学的活性種のOHラジカルを大量に生成できる可能性を持っているが、まだその性能の確認がされていなかった。本研究では、OHラジカルの生成密度の測定や、水処理性能の評価、性能を抑制している原因の解明を行ったもので新しい水処理手法の実現に必要な知見を得た。

研究成果の概要（英文）：Using a "ball lightning discharge" that occurs under atmospheric pressure and has a large volume and long duration, the basic characteristics of a new water treatment method that utilizes the strong oxidizing power of the OH radicals generated were studied in order to realize the method.

Measurements were made with different electrode materials, and it was found that with materials other than copper, decomposition did not occur at all or the treatment speed was extremely slow, indicating that selection of the electrode material is important. At an applied voltage polarity, the treatment speed was high immediately after the start of treatment, but then dropped dramatically, and it was found that the increase in the concentration of by-products with Cu ions dissolved in the solution is closely related to this phenomenon. In addition, the temperature and density of the OH radicals generated were measured, and it was shown that this discharge is effective as a source of active species.

研究分野：放電応用

キーワード：大気圧放電 活性種 水処理

### 1. 研究開始当初の背景

循環型社会の実現に向け、安全な水の確保、工業用廃液の無害化処理や、その再利用方法の確立が重要な課題となっている。薬品を用いた化学反応とは違い放電法を用いた反応は、処理後に処分が困難な物質の生成などの問題がなく、また、従来の化学反応では分解困難な物質の処理も可能という特徴を持つ。

従来の放電方法であるコロナ放電、グロー、アーク放電では、局所的、低圧力下、また、その生成時間がマイクロ秒程度と時空間的に非常に狭い領域での発生方法であるのに対し、本研究で用いる「球雷放電」は、大気圧下で生成され、空間寸法 10 cm 程、生成維持時間が 0.1 秒と従来のものに比べ数桁も値が大きく、また、化学的反応性が高い OH ラジカルも同じオーダーの時空間に生成可能であることが判明している。本研究では、この分解処理に大きなポテンシャルを持つ球雷放電であるが、まだ、その分解機構、生成機構など不明な点が数多く残っている。

### 2. 研究の目的

- (1) 活性種と処理溶液との接触面積制御による難分解性排水処理性能への効果評価と処理性能の向上
- (2) 分解生成物の実時間モニターを併用した処理経過の反応過程および球雷状放電による活性種生成機構の解明

### 3. 研究の方法

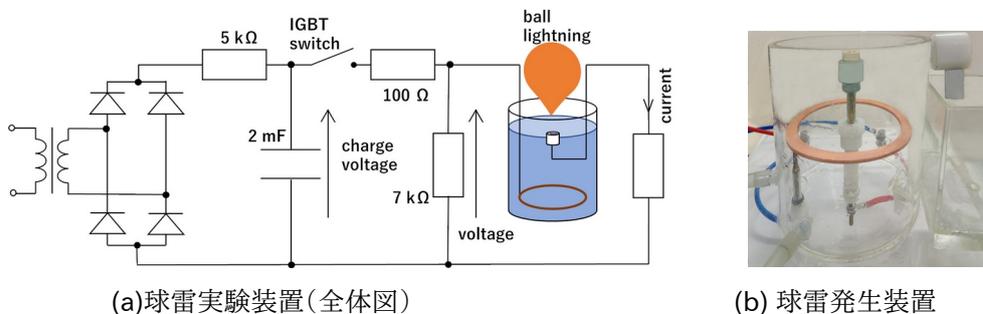
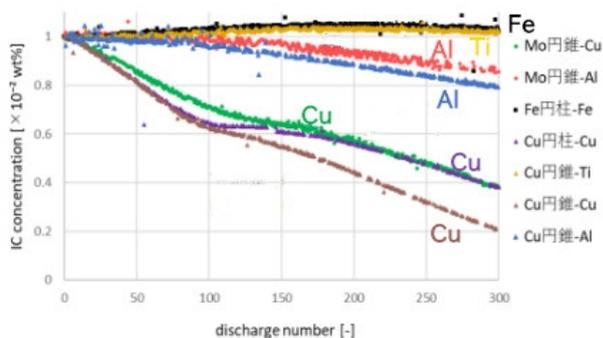


図1 実験装置

図 1(a), (b) に示す構成図の球雷装置、処理対象物質であるインジゴカルミン(以下 IC) のオンライン濃度計、および溶液に含まれる物質の吸収スペクトルを測定できる分光光度計、質量分析計を利用して IC の分解処理性能の評価を行った。なお、試料溶液が入った容器の上部の電極及び容器下部にあるリング状の電極の間に 3~4 kV のパルス電圧を印加することで球雷は発生し、上部の電極が陰極か正極かにより負極性放電/正



放電回数と IC 濃度(図中の Fe などは、正極材料を示す)

図 2 各種電極材料を用いた場合の IC 分解特性

極性放電としている。また、放電による発光を分光器および高速度カメラを利用し、放電形態の撮影、生成される放電中の電子密度、温度、活性種である OH ラジカル密度、温度の計測を平行して行った。

#### 4. 研究成果

##### (1) 電極材料による分解処理性能の影響

針-平板電極を利用した従来の水中放電において、電極材料がその放電処理に有意な影響があるという研究報告が無かったこともあり、電極材料として工作加工が容易で、また、導電性の高い銅を用いて実験を行っていたが、電極材料の影響について指摘され、アルミ、鉄、モリブデンなどに変更しその分解特性を測定した。その結果、図 2 に示すように球雷放電の負極性放電において正極材料が”銅”以外では全く分解が起こらないか、処理速度が非常に小さくなるという結果となった。今後、後述の分光光度計の測定も入れ、この電極材料の違いが処理性能へ与える影響をさらに調べる計画である。

##### (2) 化学研磨などによる再現性の向上

電極の高さなどの固定、再現性を確実にするよう装置の構造を改良し、従来 2mm φ ほどの金属線を円形に丸めて作成していた下部リング状電極を、厚さ 1mm の円環に変更した(図1(b))。この結果、分解処理実験後の電極材料の酸化(表面汚損)が著しく、処理速度などの再現性が悪いこともこの酸化の影響と考え、化学研磨法およびそれによる再現性への効果を確認した。

##### (3) 分光測定による発生 OH ラジカルの密度・温度の絶対値測定及び空間分布測定

生成された球雷の放電の基本パラメータとして、電子密度および電子温度を H $\alpha$  線のシュタルク広がり、及び Ca のスペクトル強度のボルツマンプロットから測定し、それぞれ 4 000 ~ 5 000 K、 $5 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$  を得た。これらの値は、他の研究者らの報告の値とほぼ同程度の値となった。さらに、広帯域紫外線吸収分光法を利用することで OH ラジカルの密度およびその空間分布を計測し、放電期間中  $10^{22} \text{ m}^{-3}$  のオーダーであり、また、放電終了(放電電流 0A) から 35 ms 経過時でも OH ラジカルが存在し続けることを見出した。これらの OH ラジカル密度の測定結果は、初期の目論見通りこの球雷放電が化学活性種 OH ラジカルの大量発生源として非情に有望であることを示している。

##### (4) 銅電極利用の場合の溶融イオンとの副生成物生成による IC の分解測定低下への影響の解明

本球雷を用いた水処理速度は、銅電極を利用したこれまでの所、負極性の初期の段階で大きな処理速度を持つが、その後速度が停滞するか、速度が減少するという結果となり、この原因を解明し、処理速度の向上が実用化に向けた最大の課題であった。これまで分解処理過程で発生する副生成物の量の増加がこの処理速度低下の原因であろうとの仮定から質量分析計での測定など試みたが、半定量的な測定にとどまり、はっきりとした原因が見い出せないでいた。その後、分光光度計でのスペクトル分布の変化より、特に負極性、銅電極に置いて Cu イオンの増加と共に、IC と Cu イオンによる複合物に由来する吸収が放電回数と共に増加し、これが影響し IC の濃度が見かけ上大きくなっている可能性があることを見出した。今後、この Cu イオンによる複合物の効果を含めた IC 濃度の測定、およびこの複合物の生成を抑制する方法などを見出す方向で研究を進める計画である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Mitsuaki Maeyama
2. 発表標題 Effects of electrode geometries and materials on a water purification using the ball lightning discharge
3. 学会等名 International Conference on Phenomena in Ionized Gases ICPIG XXXV (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 渋谷 侑平
2. 発表標題 吸収分光法による球雷放電内のOHラジカル絶対密度分布測定
3. 学会等名 令和5年 電気学会 基礎・材料・共通部門大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 佐藤 正騎
2. 発表標題 サブナノ秒インパルス発生器の実現に向けたパワーSiC MOSFETの活用
3. 学会等名 令和5年 電気学会 基礎・材料・共通部門大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 張 子陽
2. 発表標題 平板型並列MCS放電を用いたオゾン生成特性の測定
3. 学会等名 令和5年 電気学会 基礎・材料・共通部門大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 宿谷佳介
2. 発表標題 球雷放電を用いた水処理への電極表面状態の影響
3. 学会等名 令和6年電気学会全国大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 渋谷 侑平
2. 発表標題 球雷放電内における温度とOHラジカル密度分布の分光測定
3. 学会等名 電気学会研究会資料(放電・プラズマ・パルスパワー研究会) EPP-22-047
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 前山 光明
2. 発表標題 球雷状放電の電極材料による水処理への効果
3. 学会等名 電気学会令和5年度全国大会 1-057
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 佐藤正騎
2. 発表標題 無線給電技術を活用した半導体化インパルス発生器
3. 学会等名 電気学会令和5年度全国大会 1-079
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 横倉健児・渋谷侑平・前山光明・稲田優貴
2. 発表標題 球雷放電を用いたインジゴカルミンの分解に対する温度の影響
3. 学会等名 令和4年電気学会全国大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 地主勇輝・稲田優貴・前山光明・山納 康・大坊 昂・浅利直紀・丹羽芳充
2. 発表標題 真空アーク遮断後の微小粒子に起因したNSDD現象の観測
3. 学会等名 令和4年電気学会全国大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石塚 励, 稲田優貴, 前山光明
2. 発表標題 大気圧プラズマ生成に向けた小型高機能な半導体化インパルス発生器の開発
3. 学会等名 2022 年度静電気学会春期講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------