

誘電体バリア放電型オゾン発生装置における

オゾン生成特性と放電特性の圧力依存性

Pressure dependence of ozone generation and streamer characteristics in dielectric barrier discharge type ozone generator

○北谷内達也*, 奥井宗一郎*, 渡部佳月*, 大澤直樹*, 松田伸太郎**, 田口正樹**
青木未知子**, 大戸時喜雄**

* : 金沢工業大学工学部, ** ; メタウォーター株式会社

論文要旨

誘電体バリア放電式のオゾン発生装置では、オゾン生成に必要なエネルギー効率（オゾン生成効率）の向上が課題であり、研究が続けられてきた。本研究では、イメージインテンシファイアを付けた静止カメラと画像処理ソフトウェアを用いて、放電電力や放電空間の圧力を変化させたときのオゾン生成特性とストリーマ放電の発生特性を調べた。その結果、オゾン生成特性が良好であった圧力条件では、正極性のストリーマ放電の発生本数が多く、負極性のストリーマ放電の発生本数が少なくなることがわかった。

キーワード：誘電体バリア放電, 圧力依存性, 放電観察

1. はじめに

オゾンは、強い酸化力を持ち、自然分解後は無害な酸素に戻るといった性質を有していることが広く知られている。また、上下水道分野ではオゾンを活用した高度水処理技術への適用が進んでいる。大容量のオゾンの生成には誘電体バリア放電（Dielectric Barrier Discharge : DBD）が適している。DBDはストリーマ放電と沿面放電で構成されており、オゾンはそれらの放電部で生成される。このオゾンは、電子衝突による酸素分子の解離反応と、解離して生成された酸素原子と酸素分子による三体衝突反応によって生成される。また、生成されたオゾンは、電子衝突や他の分子との反応によって分解する。そのため、オゾン生成の高効率化には、オゾンの分解反応よりもオゾンの生成反応を優先的に発生させる必要がある。以上のことから、オゾン生成を議論する上で放電空間のストリーマ放電の発生様相を明らかにすることが重要である。

これまでに、著者らのグループでは、イメージインテンシファイア（Image Intensifier : I.I.）付き静止カメラと画像処理ソフトウェア（ImageJ）を用いて、DBDを形成している無数のストリーマ放電と沿面放電の評価手法を構築した[1]。また、開発した手法を用いて、放電電力や接地電極に供給される冷却水の温度がオゾン生成特性と放電特性の関係に及ぼす影響を明らかにした[2]。放電空間の圧力がオゾン生成特性に影響を及ぼすことが明らかになっていることから[3]、本研究では、開発した手法を用いて、放電空間の圧力がストリーマ放電とオゾンの生成に及ぼす影響を明らかにした。

2. 実験方法

図-1に実験システムを示す。実験システムは、高電圧電源、ガス給排系、DBD装置、接地電極冷却系、測定系で構成されている。DBD装置はチャンバー内に設置されており、チャンバーには酸素（流量:0.2 L/min）と窒素（流量:1 mL/min）の混合ガスを供給した。チャンバー内のガス圧力を120, 160, 200, 240 kPa-abs

(以後、kPa とする) に調整した。ファンクションジェネレータ (AFG-1022, Tektronix) と交直両用高圧アンプリア (Model 10/40A-HS, Trek) を用いて交流高電圧を DBD 装置に印加した。周波数は 3 kHz に設定した。印加電圧を 6~10 kVp に設定して放電電力を制御した。電流は、差動プローブを用いて電流測定抵抗 (4.51 kΩ) の電圧降下より測定した。接地電極に供給する冷却水の温度は、チラーを用いて 20°C に設定した。DBD の観察には、I.I. (C14245, 浜松ホトニクス) を付けた静止カメラを用いた。デジタル遅延パルス発生器 (DG535, Stanford Research Systems) を用いてファンクションジェネレータと I.I. を同期させ、パルス電流の極性が正または負のときの DBD を撮影した (ゲート時間: 166.7 μs)。撮影回数はそれぞれ 10 回とした。

図-2 は DBD 装置である。装置の左右から原料ガスが供給され、中央のスリットからオゾンと未反応の原料ガスが排気される。誘電体材料はホウケイ酸ガラス (厚さ: 1.1 mm) とした。接地電極の材料はステンレス (SUS316L) である。ギャップ長は 0.3 mm とした。誘電体には ITO (Indium Tin Oxide) が成膜されており、30 mm×30 mm の範囲で DBD を観察できる。なお、放電領域は 50 mm×50 mm である。

3. 実験結果

3. 1 オゾン生成特性

図-3 にオゾン濃度とオゾン生成効率の関係を示す。全ての圧力において、放電電力を大きくしてオゾン濃度を高くすると、オゾン生成効率が低くなった。オゾン生成効率 90 g/kWh 付近に着目すると、圧力を 120 kPa から 200 kPa にするとオゾン濃度が 191 g/m³ から 217 g/m³ に上昇したが、240 kPa にすると 209 g/m³ に低下した。以上のことから、高濃度のオゾンを高効率で生成できる圧力条件は 200 kPa であり、最もオゾン生成特性が悪かった圧力条件は 120 kPa であることを確認できた。以後、200 kPa と 120 kPa の条件に注目して、ストリーマ放電を解析した。

3. 2 ストリーマ放電の発生本数

図-4 に、1 周期分のストリーマ放電の発生本数、正のパ

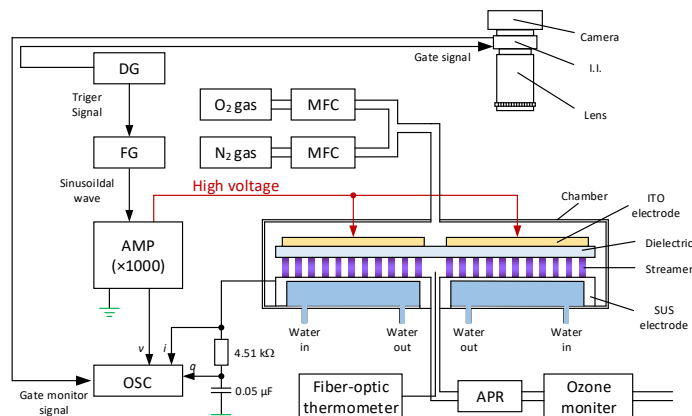
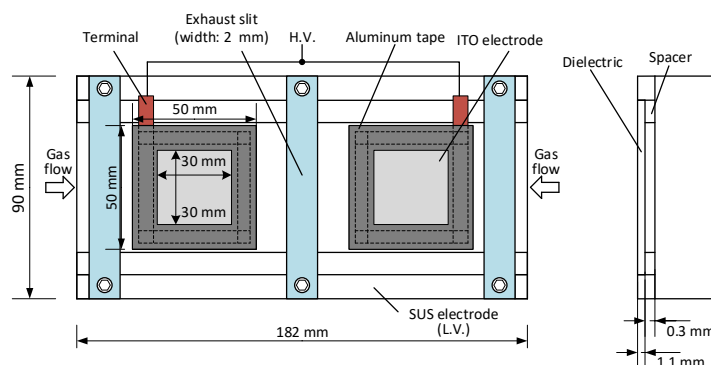


図-1 実験システム



(a) 上面図

(b) 側面図

図-2 DBD 装置

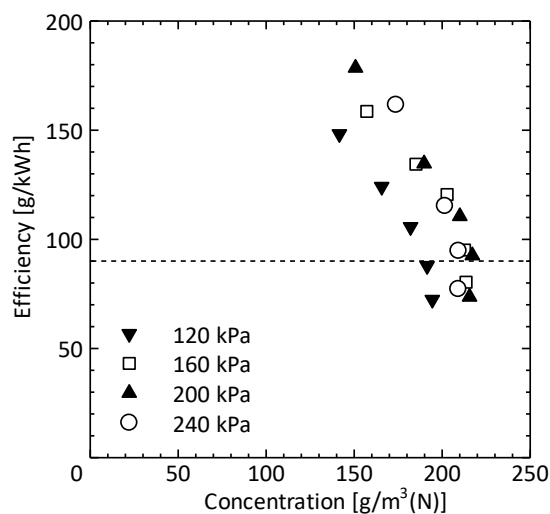


図-3 オゾン濃度とオゾン生成効率の関係

ルス電流（以後、正極性と呼ぶ）が発生したときや負のパルス電流（以後、負極性と呼ぶ）が発生したときのストリーマ放電の発生本数を示す。図-4(a)より、1周期分のストリーマ放電の発生本数は放電電力を大きくすると増加した。一方、圧力を変えた場合は、ストリーマ放電の発生本数は影響を受けなかった。図-4(b)に着目するとオゾン生成特性が良好であった200 kPaでは、正極性のストリーマ放電の発生本数が多く、負極性のストリーマ放電の発生本数が少ないことを確認できた。

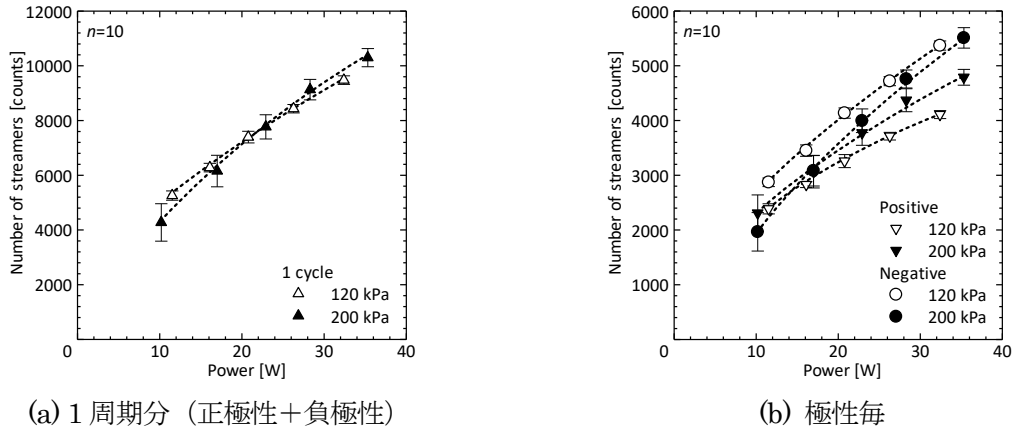


図-4 ストリーマ放電の発生本数

3. 3 ストリーマ放電の円相当直径の中央値

図-5 に、放電電力とストリーマ放電の円相当直径の中央値の関係を示す。パルス電流の極性や圧力の影響を受けず、放電電力を大きくするとストリーマ放電の円相当直径の中央値が約140 μm から約120 μm になった。

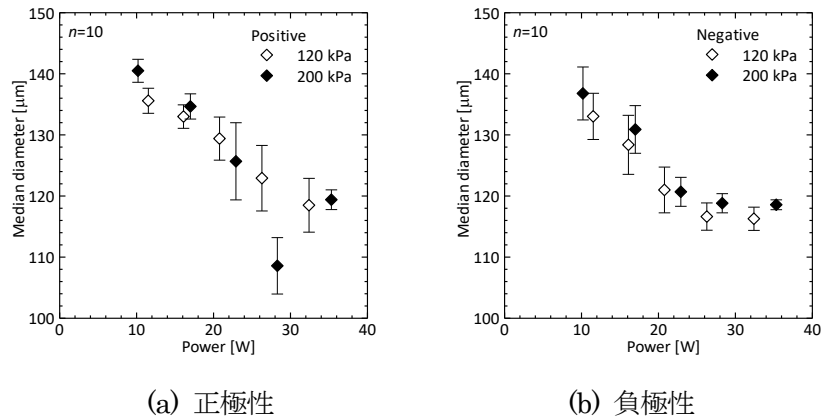


図-5 ストリーマ放電の円相当直径の中央値

3. 4 平均沿面放電長

図-6 に、放電電力と平均沿面放電長の関係を示す。パルス電流の極性、圧力ならびに放電電力の影響を受けず、沿面放電長は20 μm ~ 27 μm であった。

4. 考察

ここでは、ストリーマ放電の発生本数に着目して、オゾン濃度が120 kPaよりも200 kPaのほうが高くなった理由について考察した。オゾン生成特性が良好であった200 kPaは、正極性のストリーマ放電の発生

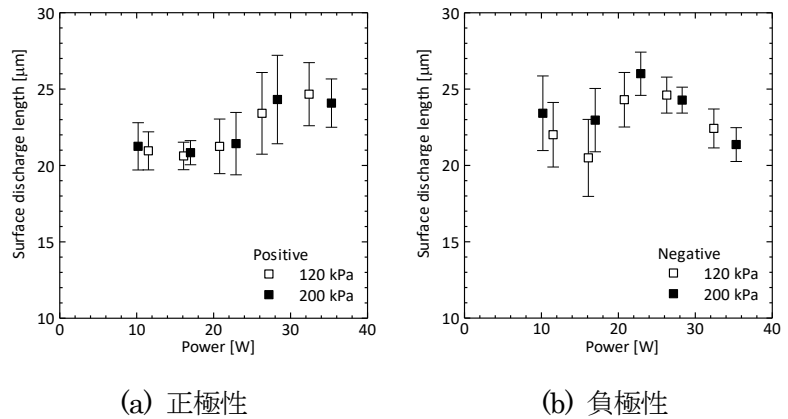


図-6 平均沿面放電長

本数が120 kPaより多く、負極性側では120 kPaより発生本数が少なかった。DBD空間中のストリーマ放

電によって生成される電子は、電子なだれによって進展方向に増殖することが報告されている[4]。このことから、正極性では、ストリーマ放電が SUS316L から誘電体へ径方向に増殖しながら進展し、負極性では、ストリーマ放電が誘電体から SUS316L へ径方向に増殖しながら進展したと考えられる。衝突電離作用により、電子密度は、ストリーマ放電の進展にともない増加することから、放電の始点より終点の方がオゾンの発生量が多くなると考えられる。ここで、SUS316L の主成分は、18Cr-12Ni-2.5Mo-低 C (0.03%以下) であることから、SUS316L の表面にはこれらの元素由来の酸化物が形成されていると考えられる。NiO はオゾン分解する性質を有することから[5]、NiO が表面に形成された SUS316L の表面では、オゾンの分解量が多くなると考えられる。200 kPa は 120 kPa に比べて、SUS316L に進展する負極性のストリーマ放電の発生本数が少なく、誘電体に進展する正極性のストリーマ放電の発生本数が多かったことから、オゾンの分解量が抑制されたため、オゾン濃度が高くなったと考えられる。

5. まとめ

本研究では、LI を付けた静止カメラと画像処理ソフトウェアを用いて DBD 空間で発生するストリーマ放電の発生本数、円相当直径ならびに沿面放電長を定量化し、オゾン発生特性との関係を調べた。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 90 g/kWh 付近のオゾン生成効率に着目すると、圧力を 120 kPa から 200 kPa にするとオゾン濃度が 191 g/m³ から 217 g/m³ に上昇したが、240 kPa にすると 209 g/m³ に低下した。本研究の実験条件では、高濃度のオゾンを高効率で生成できる圧力条件は 200 kPa であり、最もオゾン生成特性が悪かった圧力条件は 120 kPa であった。
- (2) 1 周期分のストリーマ放電の発生本数は、圧力の影響を受けなかった。しかし、極性毎にストリーマ放電の発生本数を整理すると、オゾン発生特性が良好な 200 kPa では、120 kPa よりも正極性のストリーマ放電の発生本数が多く、負極性のストリーマ放電の発生本数が少なかった。
- (3) 放電電力を大きくするとストリーマ放電の円相当直径の中央値が約 140 μm から約 120 μm になった。また、圧力を変えてもストリーマ放電の円相当直径の中央値は影響を受けなかった。
- (4) 平均沿面放電長はパルス電流の極性、放電電力ならびに圧力の影響を受けず、20 μm ~ 27 μm であった。金沢工業大学大学院工学研究科の堀隼太郎氏と森本翔太氏には、実験の実施とデータの解析にご協力頂きました。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- [1] 大澤直樹, 鈴木涼平, 河井茂充, 青木未知子, 田口正樹: 「誘電体バリア放電における放電輝点特性とオゾン発生特性の関係」, 第 30 回日本オゾン協会年次研究講演会講演集, pp.9-12 (2021)
- [2] 渡部佳月, 大澤直樹, 河井茂充, 松田伸太郎, 青木未知子, 田口正樹: 「誘電体バリア放電式オゾン発生装置におけるオゾン生成特性とストリーマ本数の関係」, 第 46 回静電気学会全国大会講演論文集, 9aA-13, p.153 (2022)
- [3] D. Yuan, Z. Wang, C. Ding, Y. He, R. Whiddon, K. Cen, “Ozone production in parallel multichannel dielectric barrier discharge from oxygen and air: the influence of gas pressure, J. Phys. D: Appl. Phys, 49, 455203 (12pp) (2016)
- [4] H. Höft, M. M. Becker, M. Kettlitz, R. Brandenburg, “Upscaling from single- to multi-filament dielectric barrier discharges in pulsed operation”, J. Phys. D: Appl. Phys., 55, 424003 (13pp) (2022)
- [5] S. Gong, A. Wang, Y. Wang, H. Liu, N. Han, Y. Chen, “Heterostructured Ni/NiO Nanocatalysts for Ozone Decomposition”, ACS Appl. Nano Mater., 3, pp.597-607 (2020)