

論 文

回転式平行平板型オゾナイザによる  
オゾン生成効率の改善

野本幸治\*, 大久保利一\*, 足立宜良\*

(1988年12月5日受理)

Improvement in Ozone Generation Efficiency in a Parallel Plate

Ozonizer with a Rotating Plate Electrode

Y. NOMOTO,\* T. OHKUBO\* and T. ADACHI\*

(Received December 5, 1988)

The ozone generation efficiency in an industrial ozonizer is very low compared to the theoretical efficiency for instance, approximately 7.5% of the theoretical value for air. In this paper, in order to improve the ozone generation efficiency, a new type ozonizer with a rotating plate electrode is proposed. It is found that the ozone generation efficiency is improved when bright spots of ozonizer discharge on the glass disk move around with the rotating electrode and that the optimum rotational speed exists depending on the electrode spacing and applied voltage. As a result, the ozone generation efficiency is improved up to 35% higher by the effect of electrode rotation than that of the stationary electrode type ozonizer. Improvement in ozone yield is more effective for higher power operation in the ozonizer than for lower power operation.

1. まえがき

オゾンは通常無声放電を利用したオゾナイザによって操作られており、その酸化力が強いことにより水処理、排気ガス処理、脱臭、脱色、殺菌等に広く使用されている。通常の無声放電型オゾナイザのオゾン生成効率は酸素原料の場合約 200 g/kWh, 空気原料の場合約 90 g/kWh であり、これらの値はオゾン生成効率の理論値 1200 g/kWh に比べて非常に低い。この生成効率を改善するために、多くの試みがなされてきた<sup>1-4)</sup>。多量のオゾンを生成するためには高い放電エネルギーが必要であるけれども、エネルギーを増すとオゾナイザ内に発生する熱のために逆にオゾンが破壊されるので、オゾン生成効率が低下すると考えられている<sup>5)</sup>。また、井関は無声放電が数百 ns 前後の Townsend 機構による放電とそれに続くごく短時間の過渡グローとから形成され、オゾンの生成には前者の方が重要であり、強い発光とともにフィラメント状の過渡グロー放電の期間は放電柱内の

温度上昇が大きいためこれがオゾン生成効率を低めているのではないかと推論している<sup>6)</sup>。

本論文では、オゾン生成効率を改善するために回転電極を持った新しいタイプのオゾナイザを提案する。電極を回転することによってオゾナイザの誘電体表面に蓄積される電荷が均等化され、無声放電が電極面全体に一様に分布するようになり無声放電の放電形態になんらかの影響を与えることができると思われる。また通常のオゾナイザでは電極間隔は約 1 mm から 3 mm と非常に狭いため、生成されたオゾンが有効に流れないと考えられる。提案された新型のオゾナイザでは、電極の回転による遠心力のため、生成されたオゾンの電極の外側への有効な流れが生ずることが期待できる。

2. 実験装置

回転円盤型オゾナイザの試作装置の概略を図 1 に、実験回路図を図 2 に示す。オゾナイザは直径 60 mm の 2 枚のアルミニウム製の円盤電極で構成されている。上部電極の中央にあけた直径 6 mm の穴から乾燥空気が原料ガスとして送り込まれ、下部電極には直径 80 mm、厚さ 1 mm の石英ガラスを誘電体として張り付け、これを直流モータによって 0~3500 rpm で回転させた。電極間隔はマイクロメータにより 0.75 mm~3 mm に調節した。

キーワード：オゾン、オゾナイザ、無声放電

\* 大分大学工学部電気工学科 (870-11 大分市旦野原 700)  
Department of Electrical Engineering, Faculty of  
Engineering, Oita University, 700 Tanno-hara,  
Oita, 870-11 Japan

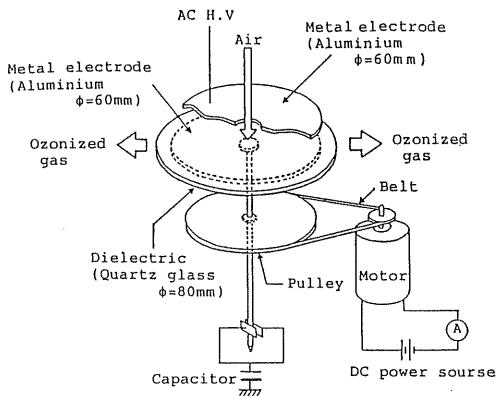


図 1 実験装置概略図

Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus for an ozonizer with a rotating electrode.

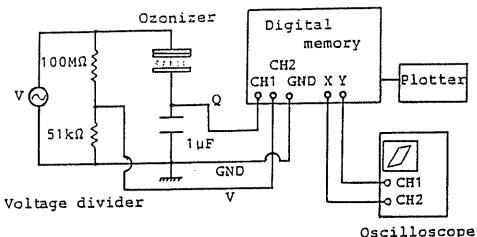


図 2 実験回路図

Fig. 2 Measuring apparatus of V-Q Lissajous's figure.

電極系はアクリル樹脂製の容器に収納されており、容器内のオゾン化ガスを毎分 21/min の割合でポンプによって紫外線吸収式オゾンモニタに引き込みオゾン濃度を測定した。上側電極に周波数 60 Hz の交流高電圧を印加し、下側電極はシリップリングとブラシを介し容量  $1 \mu\text{F}$  のフィルムコンデンサを通して接地した。コンデンサ間の電圧と印加電圧とのリサージュ图形の一例を図 4 に示す。このリサージュ図から求まる放電中のギャップ電圧  $V^*$  を使って図 3 に示す放電部をツェナーダイオードで表わしたオゾナイザの等価回路から放電電力  $W$  を算出することができ、次式で表わされる<sup>7)</sup>。

$$W = fC_g \cdot 2V^* \{2V_{op} - (1 + C_a/C_g) \cdot 2V^*\} \quad (1)$$

ここで、 $f$  は電源周波数、 $C_a$  および  $C_g$  はオゾナイザのギャップ部およびガラス部の静電容量、 $V_{op}$  は印加電

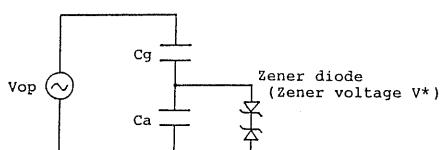


図 3 オゾナイザ放電の等価回路

Fig. 3 Equivalent circuit of ozonizer discharge.

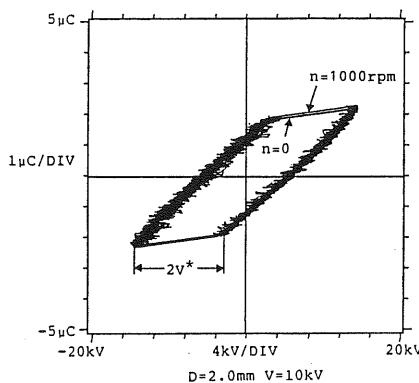


図 4 電圧-放電電荷リサージュ图形

Fig. 4 Voltage-charge Lissajous's figures for  $n=0$  rpm and  $n=1,000$  rpm.

圧の波高値である。

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 電極を静止させた場合の特性

電極を回転させないときのオゾナイザの放電電力  $P$  とオゾン発生濃度  $C_0$  (ppm), オゾン生成効率  $\eta$  (g/kWh) の関係をガス流量 21/min 一定の下でギャップ長をパラメータにして図 5 と図 6 にそれぞれ示す。放電電力は周波数を 60 Hz 一定の下で、印加電圧を増加させることによって増加させた。一定の放電電力の下ではギャップ長を増すほどオゾン発生濃度もオゾン生成効率も増加している。したがって、一定放電電力の下で多量のオゾンを効率よく生成するためには、ギャップ長を広げることにより放電体積を大きくして単位体積あたりの放電電力を減らすことが有効であるといえる。ギャップ長を一定にして放電電力を増すと放電電力が小さい間はオゾン発生濃度は放電電力には比例して増加し、放電電力が大き

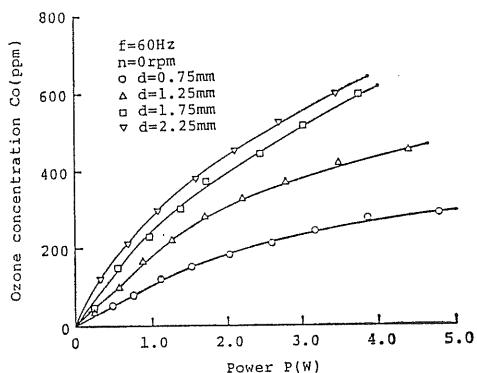


図 5 オゾン発生濃度と放電電力の関係

Fig. 5 Ozone concentration as a function of discharging power for various  $d$ .

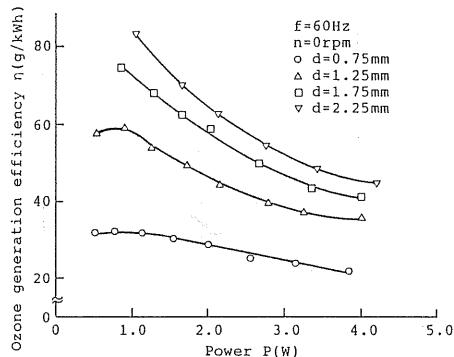


図 6 オゾン生成効率と放電電力の関係

Fig. 6 Ozone generation efficiency as a function of discharging power for various  $d$ .

くなると電力に対する増加の割合が鈍くなり飽和していく。他方、オゾン生成効率は図6から明らかのように放電電力の増加とともに減少している。これらの結果から、多量のオゾンを生成するためには高い放電電力が必要であるけれども、高い放電電力は電極を加熱するのでオゾン生成効率を低下させることがわかる。図7はオゾン生成効率とオゾナイザギャップ内の電界強度の関係をギャップ長をパラメータにして示す。電界強度が低い場合にはギャップ内の放電電力密度が小さく熱によるオゾンの破壊が無視できるのでオゾン生成効率は電界強度によってほとんど変わらず一定値をとる。その一定値はギャップ長が狭いほど小さくなっている。すなはち、 $d=0.75\text{ mm}$ に対して $30\text{ g/kWh}$ 、 $d=1.25\text{ mm}$ に対して $50\text{ g/kWh}$ 、 $d=1.75\text{ mm}$ に対して $62\text{ g/kWh}$ である。八木ら<sup>8)</sup>が指摘しているように、ギャップ長が狭い場合ガス粒子の電極内滞在時間が短くなるのでオゾン生成が制限され、ギャップ長が狭いほどオゾン生成効率が低下するものと思われる。電界強度の高い領域では電界が高いほどオゾン生成効率が増加する。

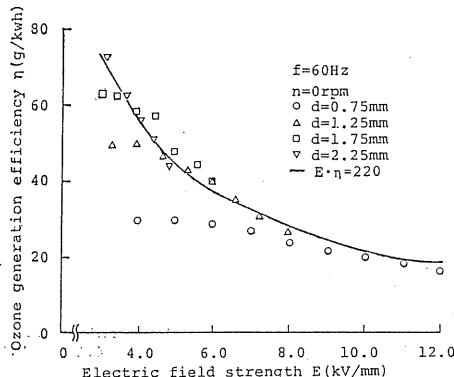


図 7 オゾン生成効率とギャップ内電界強度の関係

Fig. 7 Ozone generation efficiency as a function of electric field strength for various  $d$ .

の破壊の割合が増すのでオゾン生成効率 $\eta$ は電界強度 $E$ に逆比例して減少しており、ギャップ長に関わらず次の実験式で表わすことができる。

$$E \cdot \eta = 220 (\text{kV} \cdot \text{g/kWh} \cdot \text{mm}) \quad (2)$$

すなわち、オゾン発生濃度の高い高電界強度の下では $\eta$ は小さくなっている。図中の実線は(2)式を示している。オゾン生成密度は放電電流密度に比例し、放電電力密度は電流密度と電界の積に比例するので(2)式に示すようにオゾン生成効率 $\eta$ と電界強度 $E$ が逆比例するものと思われる。

オゾナイザ内の放電電力密度あるいは電界強度を増してオゾン収量を上げようするとオゾン生成効率が悪くなる。そこで、オゾナイザの高出力運転時のオゾン生成効率を改善することが重要な問題となる。

### 3.2 電極を回転させた場合の特性

図8はオゾナイザの下側電極を静止させたときおよび、1260 rpmで回転させたときの電圧電流特性をギャップ長をパラメータとして示す。ギャップ長を一定にして印加電圧を高めると印加電圧に比例した平行平板電極の静電容量によって定まる交流電流が流れる。電圧4~5 kVでオゾナイザ放電が開始すると電圧に対する電流の傾きが不連続に大きくなっていることがわかる。オゾナイザ放電の開始電圧はギャップ長が長いほど高い。この図から電極を回転してもオゾナイザの電圧電流特性はほとんど変わらないことがわかる。また図4から分かるようにオゾナイザ放電時の電圧電荷リサージュ图形も電極の回転によってほとんど影響を受けないことが確かめられた。これらのことから、電極を回転させてもオゾナイザ放電の放電電力は電極静止時と変わらないと考えることができる。

前述したように、オゾン生成効率は一般に放電ギャップ長が狭く放電電力密度が大きい場合あるいはオゾナイ

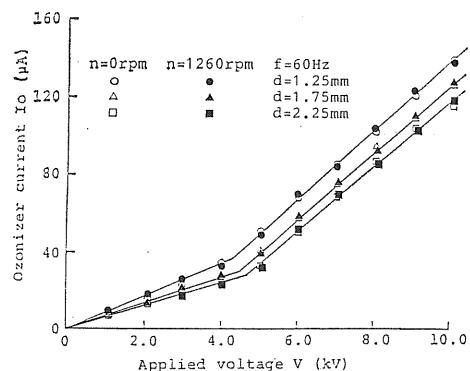
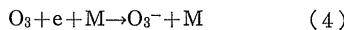
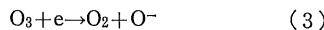


図 8 オゾナイザの電圧電流特性に対する電極回転の影響

Fig. 8 Current-voltage characteristics of the ozonizer for various  $d$ .

ザ内の電界強度が大きい場合には低くなる。この理由として次の3点が考えられる。①放電電力が大きくなるとオゾナイザ内の温度が上昇し生成されたオゾンが破壊される。②オゾナイザのギャップ長が通常1mm程度と狭いので生成されたオゾンが電極外に流れ去りにくい。③(3)式、(4)式に示すように無声放電によって生成されたオゾンが電子の衝突によって酸素あるいはオゾンの負イオンをつくり解離する<sup>9)</sup>。



最初のマイクロ放電によってオゾンが生成され、同じ場所で第二、第三のマイクロ放電が起これば電子の衝突によるオゾンの破壊の確率が大きくなると考えられる。したがって電極を回転させることによりマイクロ放電の重なりを減少させマイクロ放電を電極全面に均質に発生させるようにできれば電子の衝突によるオゾンの破壊を減少させることができると考えられる。また電極の回転によって発生する空気流により電極が冷却されること、電極の回転による遠心力によって電極内で生成されたオゾンが電極外へ効率よく流されることによりオゾン生成効率の改善が期待できる。

図9と図10は電極の回転数とオゾン発生濃度およびオゾン生成効率の関係をギャップ長をパラメータとしてそれぞれ示す。印加電圧  $V=8\text{kV}$  の場合、電極回転数を増すとオゾン発生濃度およびオゾン生成効率は回転数  $N_{op}=1000\text{rpm}$  付近で最大値  $C_{0max}$  と  $\eta_{max}$  をとる。この場合、電極を回転させることによって静止電極の場合に比べてオゾン生成効率を約20%高めることができた。

図11(a), (b)はギャップ長  $d=0.75\text{mm}$  と  $d=2.25\text{mm}$  の場合について電極回転数  $n$  とオゾン生成効率  $\eta$  の関係を印加電圧をパラメータとして示す。電極の回転数

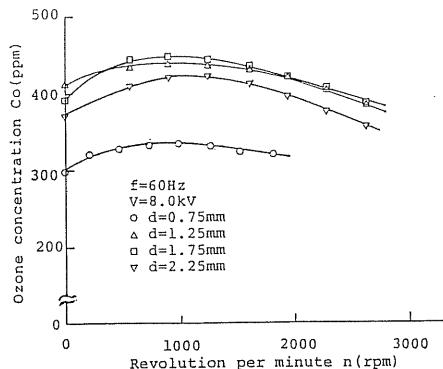


図9 オゾン発生濃度に対する電極回転数の影響

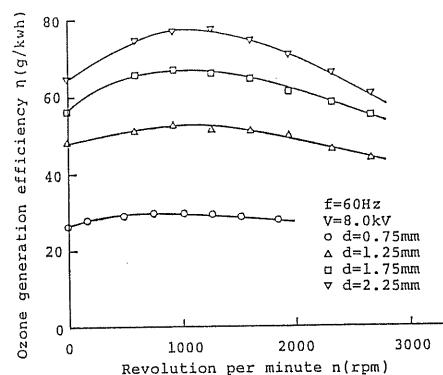
Fig. 9 Effects of rotational speed on ozone concentration for various  $d$ .

図10 オゾン生成効率に対する電極回転数の影響

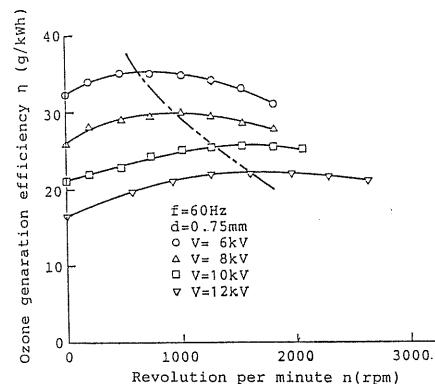
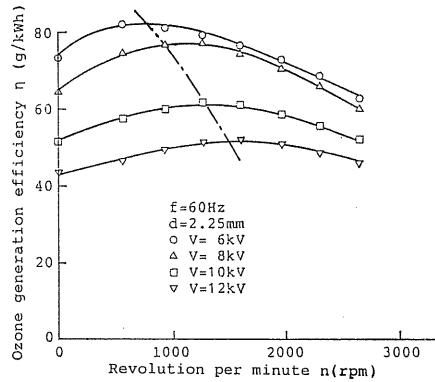
Fig. 10 Effects of rotational speed on ozone generation efficiency for various  $d$ .(a)  $d=0.75\text{mm}$  の場合

図11 オゾン生成効率に対する印加電圧と電極回転数の影響

Fig. 11 Effects of rotational speed on ozone generation efficiency for various  $V$ .

を増すとともにオゾン生成効率は増し、さらに回転数を増すと生成効率は徐々に減少して来る。すなわち、生成効率を最大値  $\eta_{max}$  にする電極回転数の最適値  $N_{op}$  が

存在する。図中一点鎖線は  $\eta_{\max}$  の点を結んだものである。印加電圧が高いほど  $\eta_{\max}$  の値は小さくなり、それに対応する  $N_{op}$  は大きくなっている。 $N_{op}$  および  $\eta_{\max}$  は印加電圧とギャップ長に依存することがわかる。ギャップ長  $d$  と  $N_{op}$  および  $\eta_{\max}$  の関係を印加電圧をパラメータとして図 12 と図 13 にそれぞれ示す。 $V=8.0 \text{ kV}$  の場合には、 $N_{op}$  はギャップ長にはほとんど無関係に一定値 1000 rpm をとり、 $V=6.0 \text{ kV}$  の時はギャップ長を増すとき  $N_{op}$  は最大値をとり  $V=10.0 \text{ kV}$ ,  $V=12.0 \text{ kV}$  のときは  $N_{op}$  は逆に最小値をとっている。ギャップ長一定の下では印加電圧が高いほど  $N_{op}$  の値は大きくなっている。印加電圧を 6 kV から 12 kV に変化させるとギャップ長が  $d=0.75 \text{ mm}$  と  $d=$

$2.25 \text{ mm}$  の場合には  $N_{op}$  は広範囲に変わるが、 $d=1.5 \text{ mm}$  の場合には  $N_{op}$  は 950 rpm から 1150 rpm にわずかに変わるものである。すなわち、ギャップ長が 1.5 mm 付近では電極回転数をわずかに変えるだけで広範囲の印加電圧に対してオゾン生成効率を改善することができる。 $\eta_{\max}$  はギャップ長が短いほど、印加電圧が高いほど小さくなっている。すなわちオゾン生成効率はギャップ内の電界強度が大きいほど悪くなっている。このことは図 7 において得られた結果と一致している。

静止電極におけるオゾン生成効率  $\eta_0$  と  $\eta_{\max}$  の比を電極回転によるオゾン生成効率の改善率と定義し、この改善率とギャップ長の関係を図 14 に示す。生成効率の改善率は短ギャップ長で高印加電圧の場合、すなわち高電界強度の場合に大きくなっている。印加電圧一定の下でギャップ長を増すと生成効率の改善率は徐々に低下し、印加電圧で定まる最小値をとり、さらにギャップ長を増すと改善率は再び増加していく。印加電圧が低いほど改善率の最小値は小さく、それに対応するギャップ長は短くなっている。このギャップ長は図 12 で  $N_{op}$  を最大あるいは最小にするギャップ長とほぼ一致するようである。同図に破線で示すようにギャップ長があまり大きすぎる場合には、ギャップ内の電界強度が低すぎてオゾンの発生が不安定になると思われる。

ギャップ内の放電の様子を調べるために下部電極をガラスを張り付けない金属電極に、上部電極をガラス板の上に 5% 食塩水を張った透明電極に換えてオゾナライザ放電柱をイメージインテンシファイアを用いて観察した。この場合、電極回転数に対するオゾン生成効率の関係は誘電体を回転させたときの特性とはほぼ一致したのでギャップ内の放電の様子もどちらの電極を回転させるかに依存しないものと考えることが出来る。図 15 に 5% 食塩

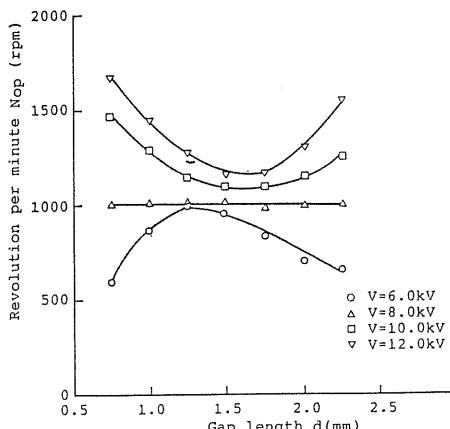


図 12 オゾン生成効率を最大にする最適電極回転数

Fig. 12 Optimum rotational speed  $N_{op}$  for  $\eta_{\max}$  as a function of gap length for various applied voltages.

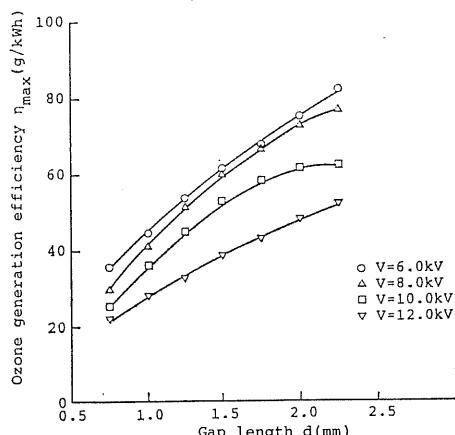
図 13  $\eta_{\max}$  とギャップ長の関係

Fig. 13 Relation between  $\eta_{\max}$  and  $d$  for various  $V$ .

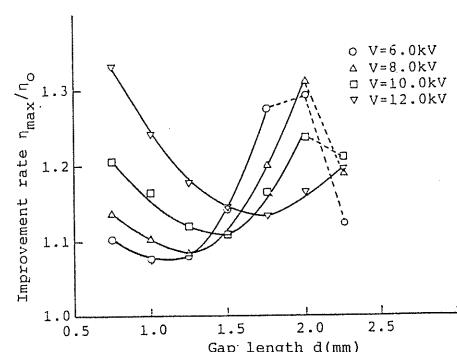


図 14 オゾン生成効率の改善率

Fig. 14 Improvement rate of ozone generation efficiency  $\eta_{\max}/\eta_0$  in the rotating electrode ozonizer.

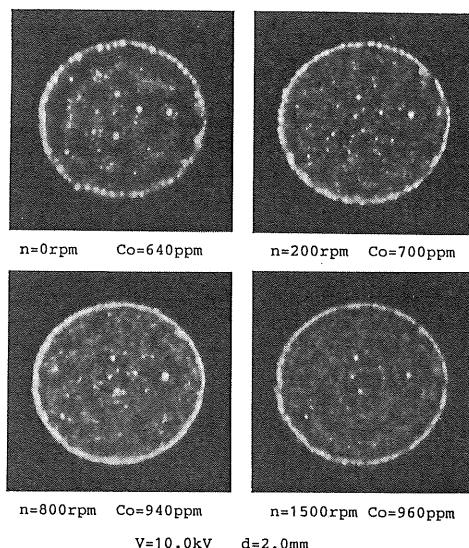


図 15 電極表面上の放電柱

Fig. 15 Ozonizer discharge column on the electrode.

水電極の上から見たオゾナイザ放電の写真を示す。電極静止時にはオゾナイザ放電の個々の輝点は電極回転時の輝点より大きく明るいけれどもその数は少なく電極表面上に不規則にまばらにはば静止して分布していた。電極を回転させると個々の輝点の大きさは小さくなり輝度は低下するけれども、輝点の数は増え電極とともに回転を始め、さらに半径方向にも激しく運動した。放電柱の運動が激しく起こっているとき、発生オゾン濃度の増加がみられた。さらに回転数を増すと輝度の強いフィラメント状の放電柱の数が減り、放電柱の運動は弱くなり、ほとんどの静止しているように見えた。この状態では、発生オゾン濃度は回転数に対して飽和し、その後徐々に減少した。放電によってガラス板上に蓄積する電荷が電極が回転することによってガラス板上に一様に分布するようになるため、放電自身が電極面全体で生じるようになり、このためオゾン生成効率がよくなるものと思われる。

#### 4. 結 論

オゾン生成効率を改善するために回転電極を有する新しい型のオゾナイザを提案した。平行平板型オゾナイザのオゾン発生濃度とオゾン生成効率に対する電極回転速

度の効果を実験的に調べ、次のような結論を得た。

- (1) 多量のオゾンを生成するには高い放電エネルギーを必要とするが、高い放電エネルギーはオゾン生成効率を低下させる。
- (2) オゾナイザ内の電界強度が大きい場合には発生オゾン濃度は高いが、オゾン生成効率は電界強度にはほぼ逆比例して低くなる。
- (3) オゾナイザの電圧電流特性やオゾナイザ内の放電エネルギーは電極回転の影響を受けない。
- (4) オゾン生成効率を最大にする電極回転数  $N_{op}$  が存在し、この  $N_{op}$  はギャップ長と印加電圧に依存する。
- (5) オゾナイザの電極回転によるオゾン生成効率の改善率は短ギャップ長、高印加電圧の場合、すなわち高電界強度、高放電電力密度の場合に大きくなっています。 $d=0.75\text{ mm}$ ,  $V=12\text{ kV}$  のとき約35%の改善率が得られた。
- (6) 電極の回転によってオゾナイザ放電のフィラメント状の放電柱が回転し、半径方向にも激しく運動を始め、このときオゾン生成効率が上昇する。

最後に常日ごろ適切な助言を賜りました九州大学総合理工、赤崎正則教授、九州大学工学部、原雅則教授に深く感謝します。また実験ならびにデータ整理に協力していただきました大分大学工学部技官赤峰修一氏と大学院生副裕宣氏に感謝いたします。

#### 参 考 文 献

- 1) S. Masuda, K. Akutsu, M. Kuroda, Y. Awazu and Y. Shibuya : Proc. IEEE/IAS 1985 Annual Conf., p. 1353 (1987)
- 2) S. Masuda and S. Koizumi : Proc. IEEE/IAS 1986 Annual Conf., p. 1173 (1986)
- 3) J. Salge and P. Braumann : Proc. 4th Int. Symp. on Plasma Chemistry, p. 735 (1979)
- 4) 近藤芳孝、梶田省吾、後藤澄夫：放電研究, No. 114 (1987) 12
- 5) 田畠則一、田中正明、八木重典：電気学会論文誌B, 97 (1977) 100
- 6) 井関 昇：静電気学会誌, 7 (1983) 142
- 7) 田中正明、八木重典、田畠則一：電気学会放電研究会資料, ED-82-27 (1982)
- 8) 八木重典、田畠則一：放電研究, No. 90 (1982) 24
- 9) J.S. Chang and S. Masuda : Pure & Appl. Chem., 60 (1988) 645