

.....
 論 文

正・負コロナ放電のオゾン生成特性に対する一考察

高倉 一千*, 久米 文貴**, 小林 達男**

早川 昌秋**, 関谷 昌久*, **

(2000年8月31日受付, 2001年1月31日受理)

Consideration for the Characteristics of Ozone Generation by Positive and Negative Corona Discharges

Kazuyuki TAKAKURA*, Fumitaka KUME**, Tatsuo KOBAYASHI**

Masaaki HAYAKAWA** and Yoshihisa SEKIYA*, **

(Received August 31, 2000; Accepted January 31, 2001)

For the application to a small and simple ozone generator, we investigated the characteristics of ozone generation by positive and negative point-to-plane corona discharges in dry air at atmospheric pressure. In generally, the concentration of ozone generated in positive corona discharges was lower than that generated in negative corona discharges. In this paper, typical characteristics of the corona currents and the ozone concentration generated in the point-to-plane gap corona discharges and consideration for the formation mechanism of ozone by positive and negative coronas were reported.

1. はじめに

フッ素に次ぐ強い酸化力を持つオゾン O_3 の優れた殺菌力・脱臭力・脱色力は、主にヨーロッパにおいて上水道における水処理、オゾン療法等に利用されてきている。我が国でも、浄水場における高度浄水処理過程や半導体製造過程でのウェハー洗浄等にオゾン処理が導入されるようになり、オゾン発生装置の高濃度・高収率化を目指した研究も進められている。

また、生活レベルの向上と相まって空気清浄装置の需要が急増するなど、身の回りの清潔さを求める風潮が際立ち、日常生活面においてもスポーツクラブのロッカールームや冷蔵庫内の殺菌・脱臭等へのオゾン利用が注目され、

今後オゾン発生装置の小型化と取り扱い易さが求められる。

一方、複写機等に利用されているコロナ放電を用いたイオン発生装置及び除電装置で生成されるオゾンは、機器内の部品を酸化劣化させ機器から漏れ出た場合、高濃度においては鼻や喉に強い刺激を与え生体に悪影響を及ぼす。

現在までに、日常生活面へのオゾン利用とその悪影響除去を目的として、広範囲な電極形態についてコロナ放電時のオゾン生成特性について調べてきた。通常、コロナ放電におけるオゾン濃度は正コロナ放電に比べて負コロナ放電の方が高いことが知られている。本論文では、正コロナ放電と負コロナ放電により生成されるオゾンの発生量に差が生じる要因について、オゾン生成機構の観点から検討した結果を報告する。

キーワード: コロナ放電, オゾン, オゾン濃度, 放電電流

* 大同工業大学大学院工学研究科電気・電子工学専攻 (457-8531 名古屋市南区大同町 2-21)

Department of Electrical and Electronic Engineering,
 Graduate School of Engineering, Daido Institute of
 Technology, 2-21 Daido-cho Minami-ku Nagoya 457-8531
 Japan

** 大同工業大学工学部電気工学科 (457-8531 名古屋市南区大同町 2-21)

Department of Electrical Engineering, Faculty of
 Engineering, Daido Institute of Technology, 2-21
 Daido-cho Minami-ku Nagoya 457-8531 Japan

2. 実験装置及び実験方法

実験装置の概略図を図1に示す。オゾン生成のための電極構成は、高さ 50 mm, 幅 60 mm, 長さ 170 mm のアクリル製長方体空間内に先端曲率半径 $r = 1$ mm の黄銅製丸棒電極と直径 40 mm のステンレス製円板電極を電極間隔 $d = 15$ mm で対向させている。オゾン生成用の原料ガスは、ボンベ入り酸素ガス (純度 99.95%) と窒素ガス (純度

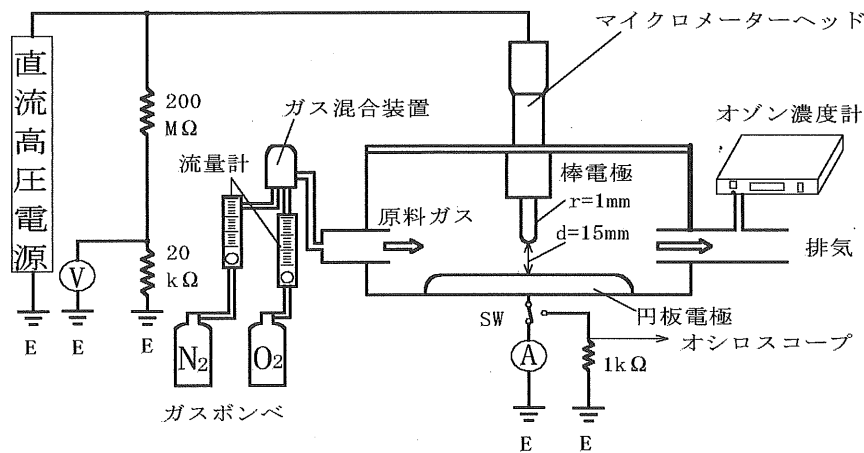


図1 実験装置概略図

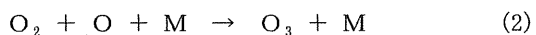
Fig.1 Schematic diagram of experimental apparatus.

99.99%) をそれぞれフロート式流量計を通して流量比により酸素濃度 σ を 21% に調整した後、混合装置内で均一に混合し、放電電極空間内にガス流量を毎分 20 リットル (以後、乾燥空気 $Q=20 \text{ L/min}$ と記す) 一定にて導入した。

オゾン濃度は、排気側に取り付けた紫外線吸収方式のオゾン濃度計 (セキエレクトロニクス社製 形式 SOZ3302) にて測定し、電極間の印加電圧は、200 M Ω と 20 k Ω の抵抗分圧により、また、コロナ放電電流は、アース側のステンレス製円板電極に接続した可動コイル形電流形にて平均値を測定している。放電電流波形は、電流計の一端に取り付けたスイッチ SW の切り替えにより、1 k Ω の抵抗を通して観測できる。

3. 実験結果及び考察

放電によるオゾン O_3 の生成は、主として酸素分子 O_2 への電子衝突による解離作用で生じた 2 個の酸素原子 O がそれぞれ他の O_2 と反応してできる。M を第三体物質として、



低濃度領域においては、この主要反応が支配的になる。そのため、コロナ放電により生成される O_3 濃度は、同一放電形態においては放電空間の電子数、したがって、放電電流に依存する。

3.1 正・負コロナ放電における放電電流特性

先端曲率半径 $r=1 \text{ mm}$ 、電極間隔 $d=15 \text{ mm}$ の放電電極空間内に流量 $Q=20 \text{ L/min}$ の乾燥空気を流したときの、正・負コロナ放電時における放電電流 (平均値) I と印加電圧 V の関係を図 2 に示す。

正・負とも電極間に加えた電圧を上昇させると、ほぼ 13 kV 付近でコロナ放電が観測され始め、印加電圧の上昇とともに放電電流は増加する。図 2 に示すように正コロナ放

電の放電電流は、負コロナ放電の放電電流より低くほぼ 1/2 である。このときの正コロナ放電の形態は、コロナ放電開始直後にのみストリーマパルスが観測され、以後全路破壊に至るまで電流波形が直流成分に連続パルス成分の重畳した脈動電流^{1), 2), 3)}を示す典型的な膜状コロナを呈する。これに対して負コロナ放電の場合、印加電圧が低い放電領域では、図中写真 (a) に示すように電流波形がパルス状のパルス性コロナ (以後、TP と記す) を示す。また、印加電圧が高い 22 kV 以上の領域では、図中写真 (b) に示すように電流波形がパルスのない一定な無パルス性コロナ (以後、PL と記す) を呈する。この電極条件の場合、TP から PL へ放電形態が遷移 ($V=22 \text{ kV}$) する過程では電流値が不連続的に降下⁴⁾する。

放電電流が時間に対して一定な PL の場合、電磁波ノイズ発生要因にはなりにくく、このコロナ放電形態によるオゾン生成は、日常生活面への応用に適していると考えられる。

3.2 正・負コロナ放電におけるオゾン濃度特性

正コロナ放電と負コロナ放電のオゾン生成特性を比較するため、図 2 のコロナ放電電流特性と同時に測定した典型的な正・負コロナ放電におけるオゾン濃度特性を図 3 に示す。

正・負コロナ放電とも電極間印加電圧 V の上昇とともにオゾン濃度 δ は増加するが、負コロナ放電の場合、パルス性コロナ TP から無パルス性コロナ PL へのコロナ放電形態の遷移時にオゾン濃度 δ は不連続的に降下する。このオゾン濃度が不連続的に低下する要因としては、TP が棒電極先端部前面に広がる線状放電であるのに対して、PL は負イオン空間電荷により棒電極先端部付近の電界が定常的に弱められることによって棒電極中心軸に沿って生じる極めて狭められた放電形態であることが挙げられる。

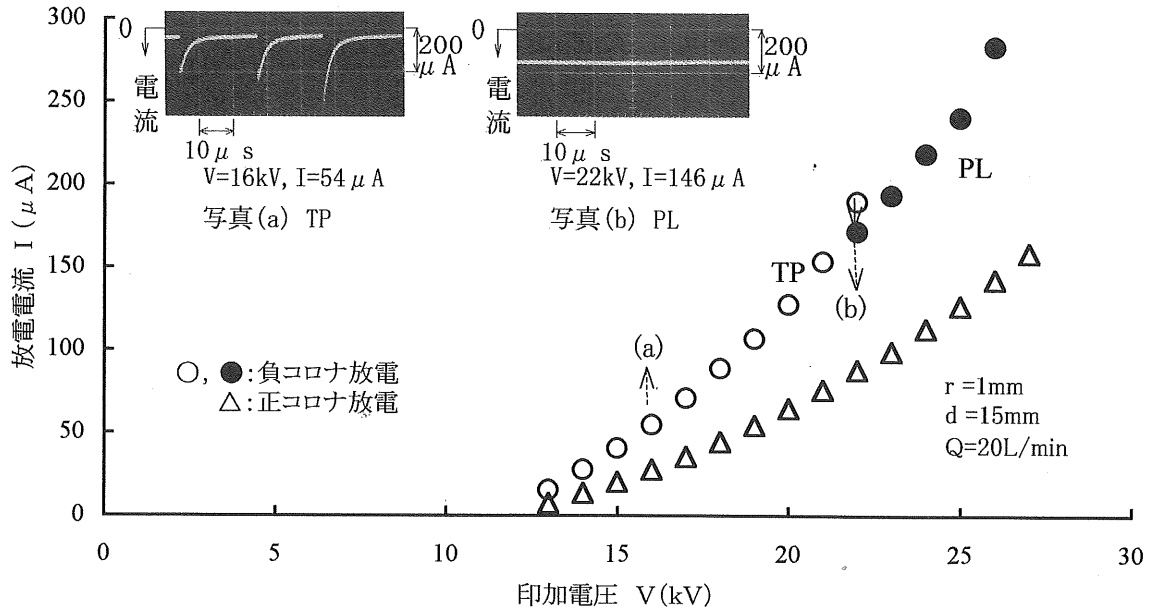


図2 典型的な正・負コロナ放電電流特性

Fig.2 Typical characteristics of positive and negative corona currents versus applied voltage.

このため、PLの放電領域がTPに比べ大幅に狭まり、オゾン濃度が低下するものと考えられる。

また、正コロナ放電のオゾン濃度は、負コロナ放電の1/8~1/10程度であり、正コロナ放電のオゾン生成効率が負コロナ放電に比べ非常に低いことがわかる。

このコロナ放電の極性の違いによりオゾン濃度に差が生じる要因としては、正コロナ放電に比べ負コロナ放電の方が放電領域（電離領域）が広いことを指摘する報告⁵⁾がある。しかし、この放電領域の差により生じる正・負コロナ放電電流の差は、図2に示したように同一印加電圧のもとで正コロナ放電電流が負コロナ放電電流の1/2に低減す

る程度である。電流値と電子数は比例することから、酸素分子の解離に寄与する電子生成総数も正コロナ放電は負コロナ放電の1/2である。したがって、放電領域の差だけでは、オゾン濃度が1/10に低下することを説明できないように思われる。

この差が生じるもう一つの要因として、正コロナ放電と負コロナ放電では酸素分子の解離に寄与する電子の電極形態に対する進行方向が異なることが挙げられる。この電子の電極形態に対する進行方向の違いにより不平等電界であるが為に電極間に介在する電離可能領域（したがって、解離も可能）と解離可能領域（解離のみ可能）の両領域の

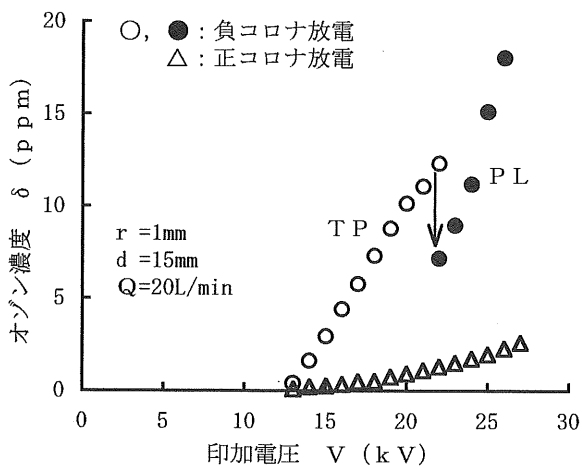


図3 典型的な正・負コロナ放電のオゾン濃度特性

Fig.3 Typical ozone concentration characteristics of positive and negative coronas versus applied voltage.

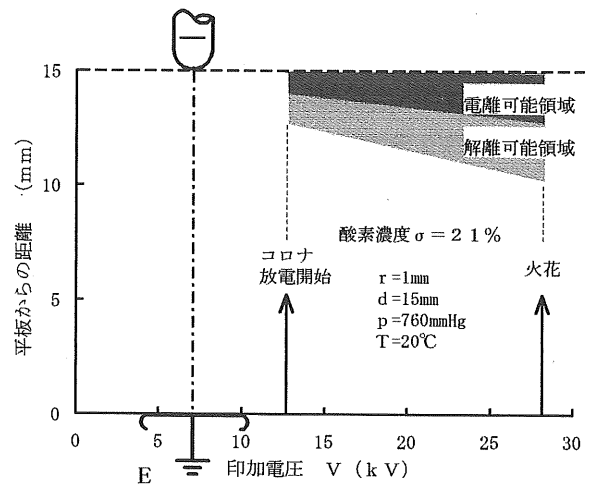


図4 棒電極先端における酸素分子の解離可能領域

Fig.4 Dissociation domain of O_2 by electron in front of the rod electrode versus applied voltage.

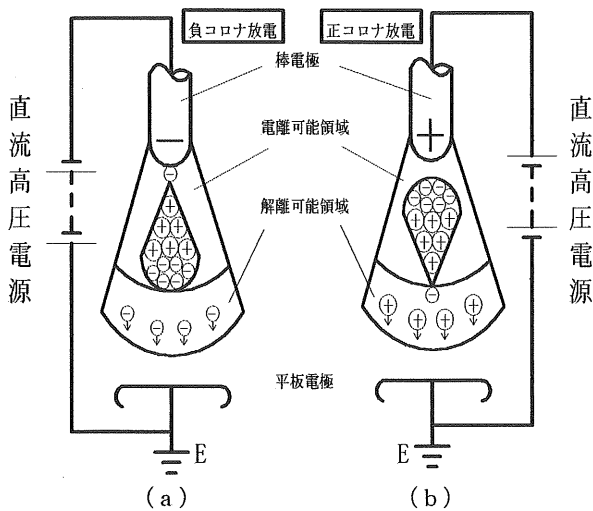


図5 正・負コロナ放電のオゾン生成機構

Fig.5 Formation mechanism of ozone by positive and negative corona discharges.

内、解離可能領域が有効に利用できる場合とできない場合が生じる。このことがオゾン生成量の差を生じさせる要因として大きく関係しているものと考えられる。

この解離可能領域が電離可能領域に比べてどの程度の広がりを持つか知るため、図3の特性と同一印加電圧条件における電極間の棒電極中心軸上の静電界を伊佐氏の電界計算法⁶⁾を用いて求め、静電界中での棒電極中心軸上における電離可能領域と酸素分子解離可能領域を示すと図4のようになる。図に示した電離可能領域については、大気中での破壊電界が 30 kV/cm であることから、棒電極先端からこの 30 kV/cm の電界に低下するまでの領域で電離が可能であるとして定めた。また、解離可能領域については、酸素の電離エネルギーが 12.2 eV 、酸素分子の解離エネルギーが 5.1 eV であることから、この比をもとに 12.6 kV/cm の電界強度までは解離が可能であるとして定めたものである。電極先端から広がる電離可能領域の更に平板側に電離可能領域の約1.5倍の解離可能領域が広がっていることがわかる。ちなみに、この解離可能領域を通過する全ての電子と酸素分子との総衝突回数を電子の平均自由行程をもとに計算により求めると、電離可能領域におけるその15倍以上になる。この解離可能領域が、負コロナ放電の場合、オゾン生成に大きく寄与しているものと考えられる。

実際のコロナ放電時には、放電により生成された空間電荷により、棒電極先端付近の電界が弱められるため電離可能領域及び解離可能領域は狭められるが、両領域幅の比はそれほど変わらないものと考えられる。

すなわち、図5(a)に示すような棒電極が負の場合は、電離増殖によってできたすべての電子群が解離可能領域を通過しオゾン生成に寄与する。しかし、図5(b)に示すような棒電極が正の場合には、電子の電極形態に対する進行方向が負と異なるため電離増殖によってできた電子群が陽極である棒電極に向かって進行することから、解離可能領域がまったく利用されていない。このことが、正コロナ放電が負コロナ放電に比べオゾン生成効率の低い大きな要因であると考えられる。

4. まとめ

先端極率半径 $r=1 \text{ mm}$ 、電極間隔 $d=15 \text{ mm}$ の放電電極空間内に流量 $Q=20 \text{ L/min}$ の乾燥空気を流したときの、正・負コロナ放電におけるオゾン生成特性を調べオゾン生成機構について検討した。その結果をまとめると、

- ① コロナ放電によるオゾン生成においては、印加電圧の上昇とともに、オゾン濃度が増加する。
- ② 負コロナ放電の場合、パルス性コロナから無パルス性コロナへの遷移時に、オゾン濃度は不連続的に低下する。
- ③ 正コロナ放電によるオゾン生成時のオゾン濃度は負コロナ放電の場合のほぼ $1/10$ である。この要因として、正コロナ放電より負コロナ放電の放電領域が広いこと⁵⁾、正コロナ放電の場合、電子の電極形態に対する進行方向が負と異なるため解離可能領域が有効に利用されないことがもう一つの大きな要因であると考えられる。

参考文献

- 1) Herman W. Bandle : Phys. Rev., **84** (1951) 92
- 2) 長谷部堅陸, 河合治郎 : 電気学会雑誌, **84** (1964) 2015
- 3) 細川辰三, 三好保憲 : 電気学会論文誌 A, **93** (1973) 420
- 4) 酒井長武, 細川辰三, 三好保憲 : 電気学会雑誌, **78** (1958) 1413
- 5) 山崎憲明 : 静電気学会誌, **12** (1988) 418
- 6) 伊佐弘 : 電気学会雑誌, **91** (1971) 1730