

# 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

## Relation between Ozone Generation Characteristics and Spatial Characteristics of Discharge Spots in Dielectric Barrier Discharge

○大澤直樹\*, 鈴木涼平\*, 河井茂充\*\*, 青木未知子\*\*, 田口正樹\*\*

\* : 金沢工業大学, \*\* : メタウォーター株式会社

### 論文要旨

誘電体バリア放電(DBD)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)を向上するために、DBD装置の構造最適化、DBDの電気的特性の解明や放電化学反応モデルの開発などが行われている。本研究では、高感度カメラと画像解析ソフトウェアを用いて、オゾン生成中の放電輝点数やその円相当径分布を評価した。また、オゾン生成特性との関係を調べた。その結果、オゾン生成効率の高い実験条件では、放電輝点数が少なく、1個の放電輝点に投入される電力が大きくなっていることがわかった。

In this research, we developed an evaluation method of circle equivalent diameter and counting of discharge spots in dielectric barrier discharge device, and investigated a correlation between ozone generation characteristics and discharge spots characteristics.

キーワード : 誘電体バリア放電, オゾン生成特性, 放電観察, 円相当径分布, 放電輝点数

### 1. はじめに

オゾンには高い酸化力と分解後は酸素に戻る性質があり、上下水道の浄水、食品・飲料品の殺菌清浄、半導体・液晶製造などで利用されている。大容量のオゾン生成には、オゾン生成効率の観点から誘電体バリア放電(以下、Dielectric Barrier Discharge: DBD と略す)が利用されている[1]。DBDとは、電極間に少なくとも1枚の誘電体を挿入し、交流電圧を印加したときに発生するストリーマ放電の集合体である。DBDによるオゾン生成では、オゾンの原料である酸素原子の生成効率の向上、低エネルギー電子の衝突によるオゾン分解反応の抑制、オゾンの熱分解反応の抑制には、DBD装置の短ギャップ化、放電空間のガス圧力の最適化、電極の冷却などが有効であることが示されている[2-4]。また、オゾン生成効率の更なる向上を目的に、DBD装置内で一様にストリーマ放電が発生すると仮定した放電化学反応モデルも提案されている[5]。一方、DBDそのものの基礎的な研究も数多く行われており、ストリーマ放電の発生様相は、ガス圧力、ギャップ長、誘電体の温度などの影響を受けることが明らかとなっている[6, 7]。オゾンは、主に、ストリーマ放電の中心部で生成されることから[8]、ストリーマ放電の発生様相が変わるとオゾン生成特性に影響を受けると予想される。本研究の目的は、オゾン生成中の放電輝点数やその円相当径分布の評価手法を構築することと、接地電極の冷却水温がDBDの放電様相やオゾン生成特性に及ぼす影響を調べることにより、オゾン生成効率の高くなる条件では、どのようなDBDが発生しているのかを明らかにすることである。

### 2. 実験方法

#### 2. 1 実験システム

図1に実験システムを示す。実験システムは、高電圧電源、ガス供給系、DBD装置、アクリル樹脂製チャ

ンバ、オゾン濃度計、チラー、放電観察系、電圧電流測定系などで構成されている。ファンクションジェネレータと交直両用高圧アンプリアイア(Model 10/40A-HS, Trek)を用いて 8 kVp の交流高電圧を発生させ、DBD 装置に印加した。2 台のマスフローコントローラーを用いて酸素流量を 0.200 L/min, 窒素流量を 1.00 mL/min に調整しチャンバに供給した。ニードルバルブを用いてチャンバ内の初期ガス圧力を 80 kPaG に調整した。紫外線吸収式のオゾン濃度計(EG-600, 荏原実業)を用いてオゾン濃度を測定した。オシロスコープを用いて印加電圧( $V$ )の波形, 電流波形ならびに電荷( $q$ )を測定した。電流波形は, 差動プローブ(700924, 横河電機)を用いて電流測定用抵抗(9.6 k $\Omega$ )の電圧降下から測定した。電荷は, 受動電圧プローブを用いて, 電荷測定用コンデンサ(0.05  $\mu$ F)の電圧降下から測定した。放電電力は,  $V$ - $q$  Lissajous 図の面積と印加電圧の周波数から求めた。チラーを用いて接地電極に供給される冷却水温を一定にした。放電の観察には, イメージインテンシファイア(C5100, 浜松ホトニクス)を装着したデジタル一眼レフカメラ(D800E, ニコンイメージングジャパン)を用いた。露光時間を 5 ms, 絞りを f/3.5, ISO 感度を 25600 相当に設定した。放電は DBD 装置の上部から観察した。

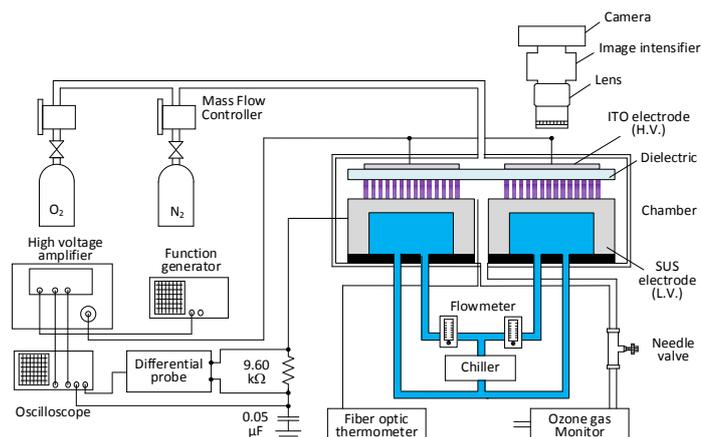


図 1 実験システム

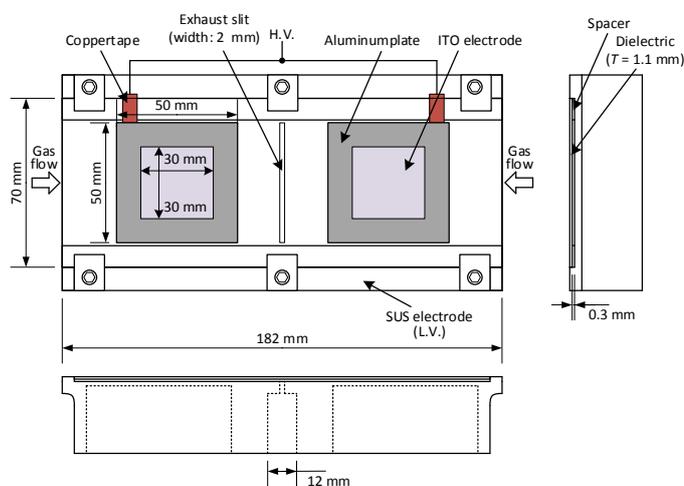


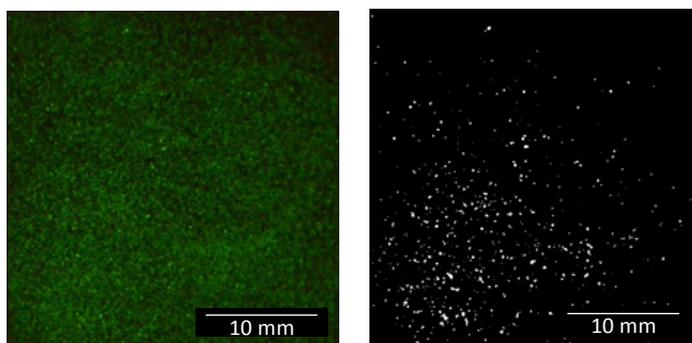
図 2 DBD 装置

図 2 は DBD 装置である。接地電極の材料はステンレス(SUS316L)であり, 誘電体材料は硼珪酸ガラスである。ギャップ長は, PTFE 製のシートを用いて 0.3 mm に調整した。装置の左右から原料ガスが供給され, 中央に設けたスリットからオゾンを含む未反応の原料ガスが排気される仕組みとなっている。誘電体の表面 2 カ所には, ITO(Indium Tin Oxide)が成膜されており, 30 mm  $\times$  30 mm の範囲で DBD を観察できる。

## 2. 2 画像処理方法

本研究では, 画像処理ソフトウェア(ImageJ)を用いてオゾン生成中の放電写真から放電輝点を抽出した。以下に画像処理の流れをまとめる。

- (1) 平滑化フィルタにより放電輝点以外の情報(ノイズ)を除去する。
- (2) ノイズ除去後の放電写真を二値化する。しきい値の設定にはトライアングル法を用いる。



(a) 画像処理前

(b) 画像処理後

図 3 放電輝点の抽出

- (3) Watershed 処理により，つながった放電輝点を切り離す。
- (4) 放電輝点の発生個数とそれぞれの面積を求める。
- (5) 放電輝点を円と見なし，放電輝点の面積から円相当径を求める。

図 3 はオゾン生成中の DBD の写真を画像処理した例である。処理前は，霧がかかったような放電写真となっており放電輝点の判別は困難であるが，処理後は，ストリーマ放電やその周囲で発生する沿面放電が放電輝点として判別できる。

### 3. 結果

#### 3. 1 オゾン発生特性

図 4 にオゾン濃度とオゾン生成効率の関係を示す。この実験では，電源電圧の周波数を 0.6 kHz から 3.0 kHz に変えて放電電力を制御した。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下した。また，同一オゾン濃度では，冷却水温を低くするとオゾン生成効率が高くなった。

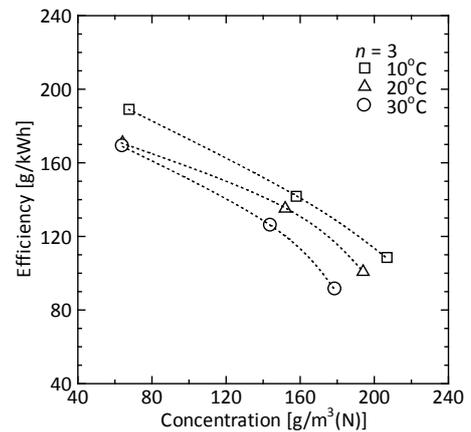


図 4 オゾン濃度と効率の関係

#### 3. 2 放電輝点の円相当径分布と放電輝点数

図 5 は，周波数や冷却水温を変えたときの放電輝点の円相当径分布である。それぞれの分布は，10 枚の放電写真から求めた。同図より，周波数を 0.6 kHz から 3.0 kHz にすると分布の形状がわずかにフラットになることや，最頻度円相当径が大きくなることがわかった。また，それぞれの周波数において，冷却水温を変えても円相当径分布の形状はほとんど同じであることがわかった。以上のことから，放電輝点のサイズは放電電力の影響を受けるが，冷却水温の影響を受けないことがわかった。

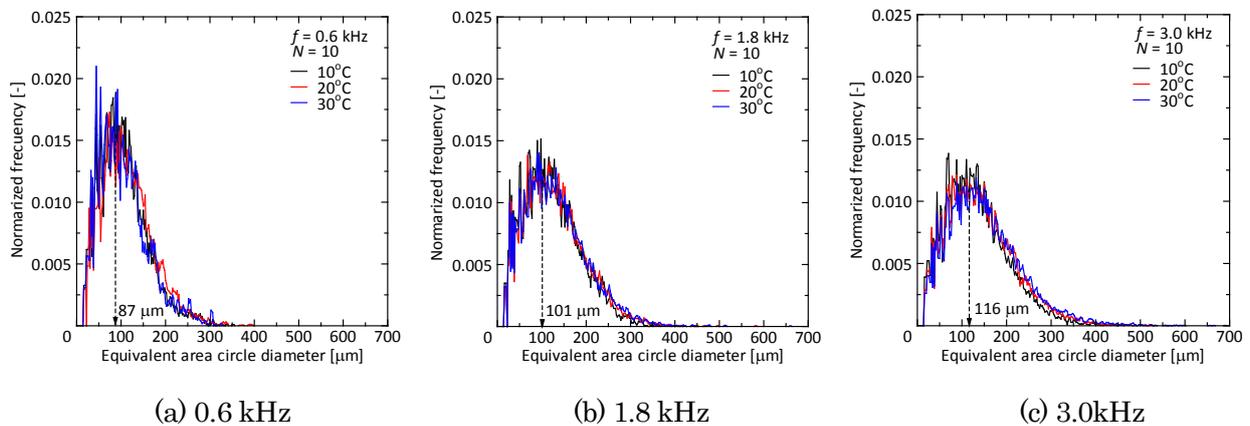


図 5 放電輝点の円相当径分布 (周波数と冷却水温の影響)

図 6 は冷却水温と放電輝点数の関係である。0.6 kHz のときは，冷却水温を変えても放電輝点数はほとんど同じであったが，1.8 kHz や 3.0 kHz の条件では，冷却水温を低くすると放電輝点数が減ることがわかった。なお，0.6 kHz において放電輝点数が冷却水温の影響を受けなかった理由は，放電の発光がかなり弱く，画像処理時の平滑化フィルタによって，放電輝点の情報がノイズとして除去されてしまったためである。

#### 3. 3 放電輝点当たりの電力とオゾン生成効率

図 7 に冷却水温と放電輝点当たりの電力の関係を示す。ここで，放電輝点当たりの電力とは，図 6 に示し

た放電輝点数に対する放電電力の割合である。1.8 kHz や 3.0 kHz の条件では、オゾン生成効率の高い冷却水温の低い実験条件では、電輝点当たりの電力が大きくなっていることがわかった。

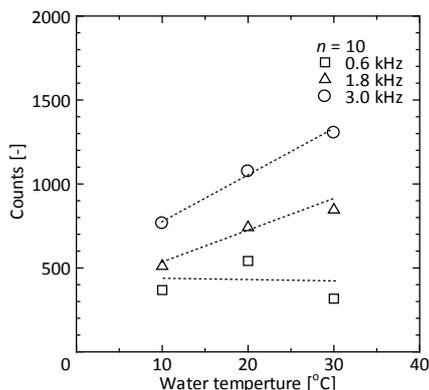


図 6 放電輝点数と冷却水温の関係

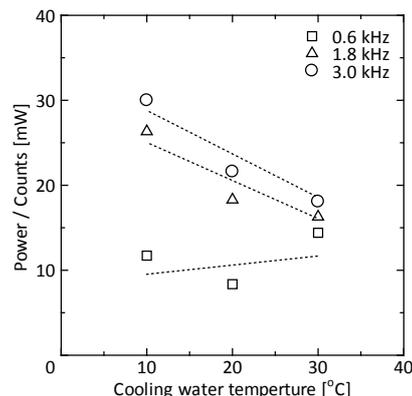


図 7 放電輝点当たりの電力と冷却水温の関係

#### 4. 考察

放電空間では、以下の(R1)~(R3)の反応によってオゾンが生成・分解される[3, 5]。放電輝点当たりの電力が増加すると、1本のストリーマ放電やその周辺で発生する沿面放電の電子密度が高くなるので、酸素原子の生成量が増加し(R1)、オゾンの生成量が増える(R2)。冷却水温を低くすると放電輝点当たりの電力が大きくなっていたことから、(R1)や(R2)が活発となりオゾン生成効率が高くなったと考えることができる。また、生成されたオゾンは、放電に接触することによって破壊される(R3)。冷却水温を低くすると放電輝点が少なくなっていたことから、生成されたオゾンが放電と接触する確率が低くなり、(R3)が抑制されたため、オゾン生成効率が高くなったと考えることもできる。



#### 5. まとめ

オゾン生成効率の高くなる実験条件ではどのような DBD が発生しているのかを明らかにすることを目的に、高感度カメラや画像処理ソフトウェアを用いた DBD の発生様相の評価手法を構築した。また、それを利用して、オゾン生成中の DBD の発生様相やオゾン生成特性との関係を調べた。オゾン生成効率の高い実験条件では、放電輝点数が少なく、1個の放電輝点に投入される電力が大きくなっていることがわかった。

#### 参考文献

[1] 山部長兵衛, プラズマ・核融合学会誌, Vol.74, No.2, pp.134-139 (1998)  
 [2] 石岡久道, 虎口信, 西井秀明, 山部長兵衛, 電学論 A, Vol.122, No.4, pp. 378-383 (2002)  
 [3] D. Yuan, Z. Wang, C. Ding, Y. He, R. Whiddon, K. Cen, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 49, 12pp (2016)  
 [4] 末廣純也, 高橋賢裕, 西祐也, 丁衛東, 今坂公宣, 原雅則, 電学論 A, Vol.124, No.9, pp.791-796 (2004)  
 [5] J. Kitayama, M. Kuzumoto, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 30, pp.2453-2461 (1997)  
 [6] R. Tschiersch, S. Nemschokmichal, M. Bogaczyk, J. Meichsner, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 50, 13pp (2017)  
 [7] 所山太二, 吉岡芳夫, 電学論 A, Vol.126, No.9, pp. 878-886 (2006)  
 [8] B. Eliasson, M. Hirth, U. Kogelschztz, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, pp.1421-1437 (1987)