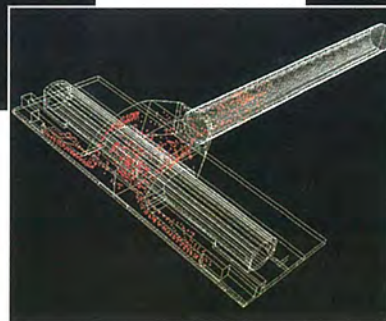
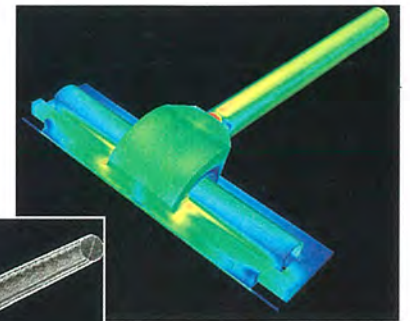
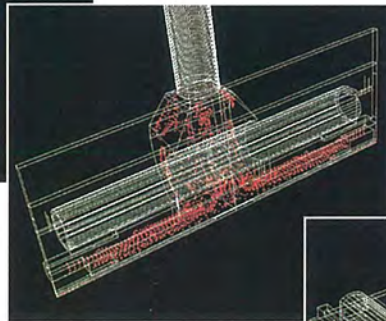
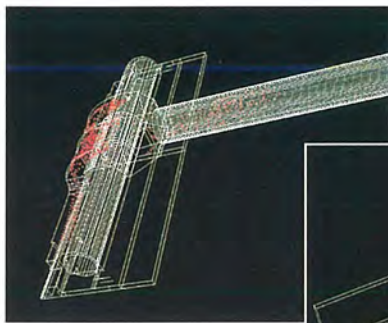


# MITSUBISHI

## 三菱電機技報 Vol.73 No.4

特集 “広がりゆくオゾン応用技術”  
“バーチャル数値実験室”

'99 4



## 特集 “広がりゆくオゾン応用技術”

### “バーチャル数値実験室”

#### 目次

#### 特集論文

##### 広がりゆくオゾン応用技術

広がりゆくオゾン応用技術 ..... 1  
宗宮 功

オゾン利用の移り変わりと将来展望 ..... 2  
中山繁樹・船谷邦宏・塩野 悟・鐘ヶ江裕三

円筒多管式オゾン発生器の性能進歩 ..... 6  
北山二朗・江崎徳光・小沢建樹

大容量積層平板型高濃度オゾン発生装置 ..... 10  
和田 昇・太田幸治・葛本昌樹・田畑要一郎・臼井 明・眼龍裕司

普及する浄水オゾン高度処理システム ..... 15  
小沢建樹・田村哲也・久川義隆・広辻淳二・山口昌二

オゾン利用による下水の消毒と水再生 ..... 20  
河相好孝・中崎幸一・M.Brahim・安永 望・田村哲也・真田欣将

乾式オゾン脱臭システム ..... 25  
松永直利・本多敏一

吸着技術を利用したオゾン発生システム ..... 29  
谷村泰宏・広辻淳二・宮 一普・白庄司直美・小川孝明・弓削 裕

オゾン併用型余剰汚泥低減システム ..... 33  
神谷俊行・広辻淳二・福長由起子・渡部徹雄・森 一晴

クリーンオゾンナイザと半導体プロセスへの応用 ..... 37  
葛本昌樹・宮本 誠・鷺谷明宏・眼龍裕司・笹井 寛

#### バーチャル数値実験室

バーチャルエンジニアリング実行環境 ..... 43  
伊藤利朗

バーチャルエンジニアリング実行環境(IEVE)ナビゲータ ..... 44  
井上彰夫・吉岡純夫・田宮洋一・古藤 悟・西中川勇人・山内英士

光・電子機能性材料の新しい電子モデルによる分子設計技術 ..... 48  
信時英治

放射光装置のビームシミュレーション(三次元磁界対応新手法) ..... 52  
田中博文

連成解析可能なEMIシミュレータ  
— FDTD電磁場解析とSPICE回路解析の融合 — ..... 56  
田邊信二・山中康弘

LSIパッケージ構造設計支援システム ..... 60  
佐藤 満・安田直世

ユーザーフレンドリなファンの設計支援システム ..... 64  
中島伸治・廣中康雄・山田彰二

WWW対応圧縮機軸振動計算システム ..... 68  
羽下誠司・福島康之・月居和英・橋本裕美・鈴木賢志

#### 特許と新案

「閉鎖ループ系冷却装置」「オゾン発生装置」 ..... 73

「有機性還元物質を含む排水の処理法」 ..... 74

#### スポットライト

1.3 $\mu$ m帯光ファイバ増幅器(PDFA) ..... 42

クリーンオゾン水製造装置 ..... (表3)

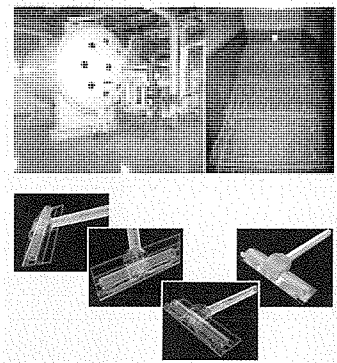
#### 表紙

##### 大阪府水道部納め村野高度浄水処理棟オゾン処理設備

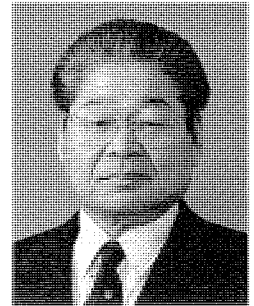
写真上段左は村野高度浄水処理棟(大阪府枚方市)のオゾン発生器で、国内最大級の1台当たり27.5kg/hのオゾンを発生する。上段右は効率良いオゾン処理を行う上下(迂)流構造のオゾン接触池で、かび臭物質などを分解する。これによって大阪府営水道では全量が高度処理されることになり、水道は安全とおいしさが両立した新しい時代を迎えた。

##### クリーナーヘッド内吸い込み流アニメーション

クリーナーヘッドの開発段階において、従来から行われてきた実機による試験に加え、新たにコンピュータによる流体シミュレーションを用いた性能予測手法を取り入れ、形状の最適化及び新規高性能吸い込み機構の提案を行った(成果は風神シリーズへ折り込み済み)。下段4枚の写真は吸い込み流の動きを可視化したもので、赤い粒子は気流を様々な方向から示し、色濃淡は圧力をビジュアルに表現している。



## 広がりゆくオゾン応用技術



京都大学大学院  
工学研究科環境工学専攻  
教授 宗宮 功

オゾンの利用は年々その適用域を広げていると言っても過言ではない。飲料水、工業用排水、下水、水族館やプールの水などの水処理から工場や道路などの大気処理、食品消毒、冷蔵庫や自動車での利用まで考えられ、大規模な工業的利用だけでなく、小規模なものが各家庭の中にまで入ろうとしている。

水処理におけるオゾン利用技術も、今、第二世代に入りつつある。第一世代の公害の時代には、身近な環境で人の健康に直接影響するものの低下を目指し、有機物低減と重金属汚染防止とが主目的で、環境基準を設定し、これを満足させるための道具やシステムの建設が進められた。この段階では、オゾン利用は余り顧みられず、単に、オゾン酸化の直接反応による処理水の色抜き、大気の臭気対策、又は一部消毒剤としての利用がなされたものである。

オゾン利用の変化のきっかけは、水道水の臭い水問題など人の五感に関する問題の提起、農薬やトリハロメタンなど発ガン性物質による汚染問題であり、従来の標準的な処理法(活性汚泥法処理や化学凝集砂ろ過処理技術)では対応できない極微量の汚染物が対象となり、従来より高度な処理が求められたところにある。化学酸化処理としてのオゾン処理が、吸着処理としての活性炭処理や固液分離操作のための膜処理とともに大々的に機能検討され始め、より効果的にオゾン処理を進めるために、ラジカル反応が中心

的反応となる第二世代となり、その制御性と反応特異性の検討が始まっている。

効率的なオゾン反応の実施は、当然、効率的なオゾン発生装置の開発と効果的な接触反応槽の開発にある。オゾン発生装置も、従来の無声放電式に加えて、沿面放電式や電気分解式などが開発されており、いずれもより低コスト、より高濃度のオゾン製造方式へと変化している。利用する原料ガスも、空気から酸素富化ガスへと変化している。一方、接触法も、従来の単純なばっ(曝)気方式によるオゾンガスの気泡吹き込みから、微細気泡の採用やエジェクタ方式の導入などがなされている。また、対象物の反応速度に合わせて、反応律速になるものか拡散律速になるものかによって使用装置が検討されている。さらに、反応としてラジカル反応による短時間反応を期待するときには、オゾンと紫外線照射や過酸化水素添加、又は酸化チタンの添加などが検討され、いつどの順番に化学酸化剤を投入したり照射するのが妥当かが、対象物ごとに検討されている。

いずれにせよ、自然水や下水処理水に極微量にしか存在しないと考えられる今話題の外因性内分泌かく(攪)乱物質(いわゆる環境ホルモン)を初めとする難分解性有機物群の分解には促進酸化法が最も効果的であるとの実験結果が幾つか出されつつあり、処理の最終段階での安全装置として、オゾンを含む促進酸化法の適用が注目されるところである。

# オゾン利用の移り変わりと将来展望

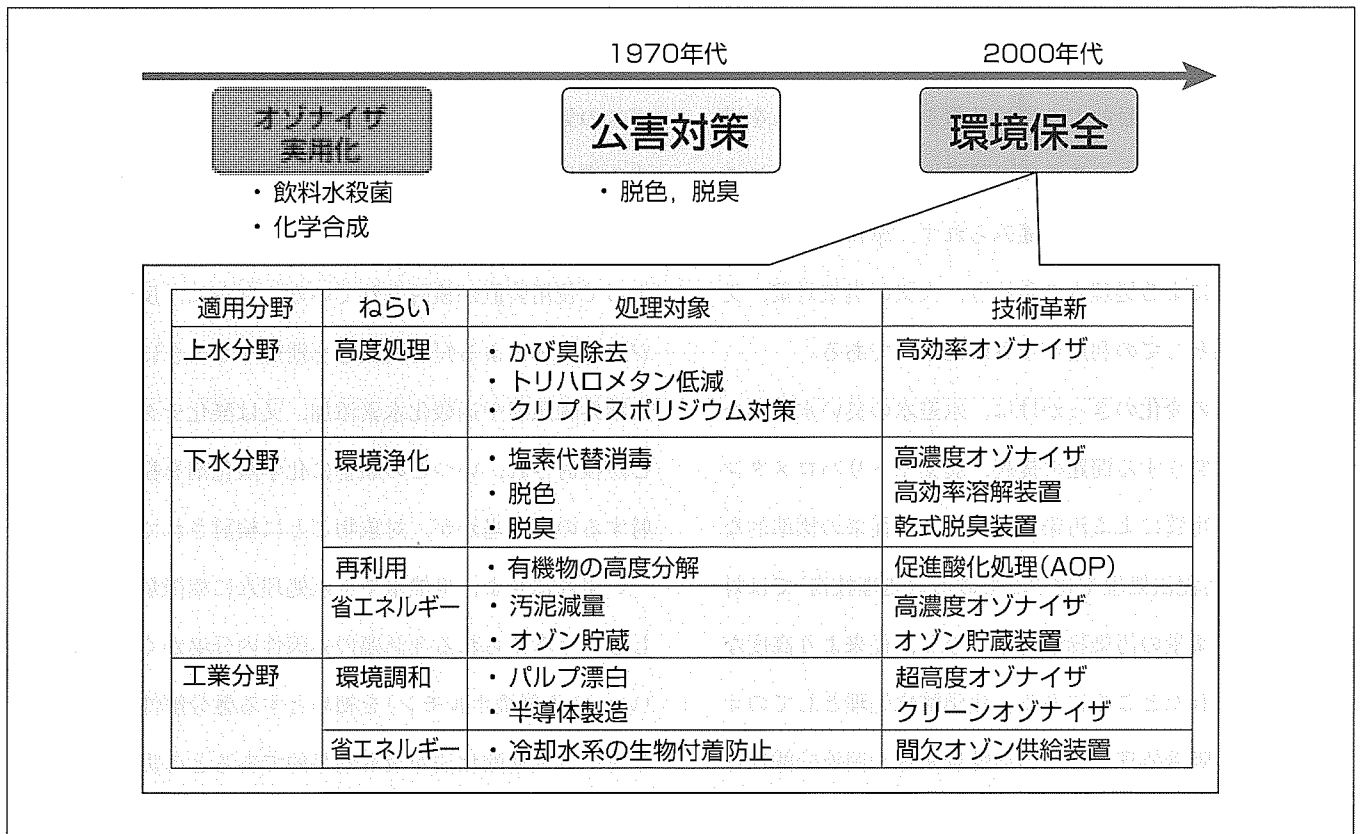
## 要 旨

オゾン利用の歴史は19世紀の飲料水の殺菌にさかのぼり、その後、選択的化学反应を利用した化学合成、1970年代の公害対策時代の排水の脱色・脱臭、水質保持へと進んできた。近年は、さらに種々の製品の製造プロセスなどにおいて環境負荷が少なく生産性の良いプロセスが求められており、その視点でも分解後無害の酸素に戻る酸化剤のオゾンの活用が期待を集めている。

技術面では、オゾン単独処理に加えて、過酸化水素や紫外線との併用による促進酸化処理、生物処理との併用処理など、反応速度の向上、非処理物質の拡大をねらった新し

い反応技術、大容量・高濃度オゾナイザ、クリーンオゾナイザなど、適用分野拡大を可能にするオゾン発生技術、ハードウェア技術の進歩が著しい。

最近では、この最新技術と他の技術との複合による新しい提案も多く出されており、水処理を中心として新プロセスに加えて、例えば、パルプ漂白プロセスや半導体製造プロセスなどへの適用が急速に広がる動きにあり、正に新しいシーズ技術が新しい分野をひら(拓)き、ニーズが新技術を興す正帰還の循環にあると言える。



## オゾン利用の変遷

オゾンは容易に分解して酸素に戻るため、環境に優しい酸化剤である。昨今、環境問題がクローズアップされているため、これからは、上下水処理はもちろん、パルプ漂白や半導体製造などの生産プロセスにも適用されると予想される。

## 1. ま え が き

オゾン利用の歴史は比較的早く19世紀末にまでさかのぼることができるが、その道のりは決して平坦な右肩上がりではなかった。しかし近年、オゾンの機能が浄水高度処理などの伝統的な分野でも改めて見直されるとともに、新技術開発に伴い利用分野が拡大され、半導体製造プロセスへの利用を含む多様な分野にも急速に浸透しつつある。その主な理由として、

- (1) 特異な化学的性質を持った強力な酸化剤である。
- (2) 酸素分子に分解されて、残留しない。
- (3) 天然にも存在し、反応生成物が比較的安全である。
- (4) 多様な機能を持つ。

などの長が、新たな価値観でとらえ直されようとしているためと考えられる。

本稿では、オゾン利用の主流である水処理分野に焦点を合わせ、オゾン利用の流れについて概観し、今後を展望してみたい。

## 2. オゾン利用の変遷

### 2.1 利用分野

オゾンは地球上で酸素を必要とする生命が誕生したとき既にその周辺に存在していたと考えられるが、それが化学物質の一つとして認識されたのは、1840年にScönbeinがギリシャ語の“におう”を意味するozeinからozone(オゾン)と命名したときである。そして、1857年にvon Siemensによってオゾンを放電で人工的に発生させる商業用オゾン発生器が造られ、オゾン利用の歴史が展開される舞台ができた。

最初にオゾンが有用な化学物質として着目されたのは殺菌作用であった。オゾンが殺菌作用を持つことは既に1886年に知られており、1892年にはドイツでオゾンを使った浄水プラントが建設された。1936年までに、フランスを中心としたヨーロッパ諸国で130~140か所の浄水場にオゾン処理が導入されたと言われている。しかし、オゾンと比べて安価な殺菌剤である塩素の製造法が

開発され、殺菌剤としての主役は塩素に代えられた。

一方、オゾンは多くの有機物や無機物と特異な酸化反応をすることが分かり、1840年から1902年にかけて主として有機物と

オゾンの反応が研究された。その集大成として、1953年にCriegeeはオゾンと有機物の反応機構を確立した(クリーギー機構)。これらは化学工業での利用の道を開いた。オレイン酸のオゾン酸化反応で、合成樹脂や可塑剤の原料であるアゼライン酸やバルラゴン酸の製造がその例である。化学工業分野では、実態は必ずしも明らかでないが、今でも一部で大量に使われていると言われているが、広く使われている状況にはなっていない。その最大の理由は、オゾン製造コストが対抗技術のそれと比較して高いことにあるとされている。

オゾン利用は、経験を中心とした浄水の殺菌と、オゾン化学を基礎として化学工業の分野で利用が始まったわけである。両分野とも共通して対抗技術と比べて高いとされる製造コストが更なる発展の障害になった。

1970年代に入って公害対策のニーズが高まり、より高度な対策技術が求められるようになった。オゾンの酸化力が注目され浄水の殺菌以外への新たな利用の検討が始められたという意味で、復興・拡大期ということが出来る。我が国で本格的にオゾン利用が事業として始まったのもこのころである。

日本オゾン協会の調査によれば<sup>(1)</sup>、1975年1月から'92年1月の間に科学技術情報センターのデータベースに入力された内外のオゾン関連文献の中で、浄水・下水・用水及び廃水の水処理関連が2,631件である。これに対して、大気及び排煙をキーワードに含むものは138件で5%弱であるので、オゾン利用の主流は水処理分野であることを裏付けている。

図1は上記水処理4分野の文献数の比率の推移を和文論文と和文以外の論文に分けて示したものである。浄水分野が内外とも伸び、量において最大である。下水分野は国内では近年伸び、廃水処理は内外とも安定横ばいである。用水は内外とも伸びの傾向にあるが、国内の比率が相対的に低い。

1990年4月1日~'93年2月28日の公開特許の応用分野別集計結果を図2に示す<sup>(2)</sup>。上下水処理分野の比率が高い

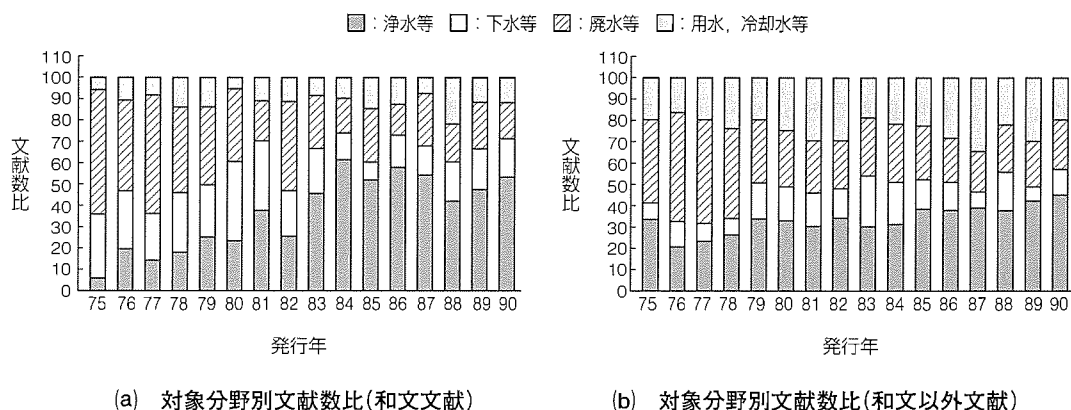


図1. 対象分野項目別文献数比の年推移

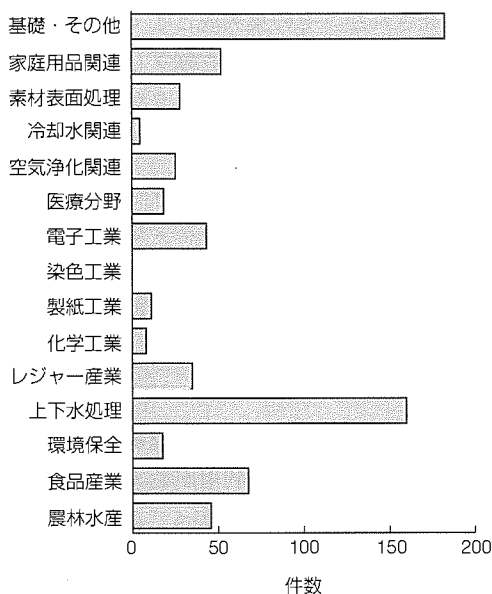


図2. 応用分野別公開特許件数

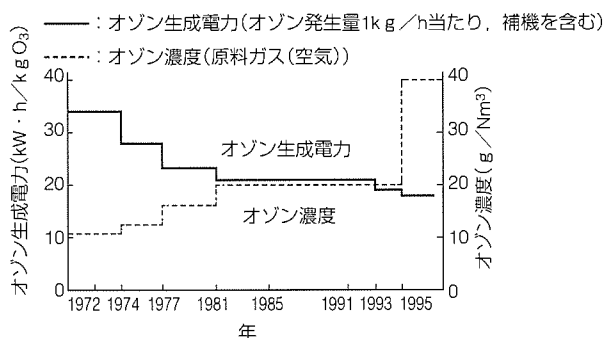


図3. オゾン生成電力、発生オゾン濃度の推移

のは前述の調査と同じである。食品、家庭用品、電子工業、農林・水産、電子工業、レジャー産業が相対的に多く、これらに水処理以外の潜在的なニーズがあると考えられる。

## 2.2 利用技術

### 2.2.1 オゾン発生器

現在オゾン発生器として市場に出ているのは気中放電方式と水の電解方式であるが、電力効率が重要になる比較的大容量の発生器は、気中放電方式の一つである無声放電方式が主流になっている。空気を原料として1kgのオゾンを製造するのに必要な全電力は、1970年代初期では32kW・h程度必要であったが、最近では20kW・h程度以下にまで低減されている。経済的な発生オゾン濃度も長らく20g/Nm<sup>3</sup>であったが、原料空気の高圧力化と電極の短ギャップ化などにより、空気原料でも従来と同じ電力効率の下で、40g/Nm<sup>3</sup>以上の濃度が得られる発生器が実用化されている。これらの推移を図3に示した。

最近、オゾン発生プロセスで、酸素分子から酸素原子を造るプロセスと酸素原子と酸素分子からオゾンを造るプロセスを分離する新しいタイプのオゾン発生器が提案されて

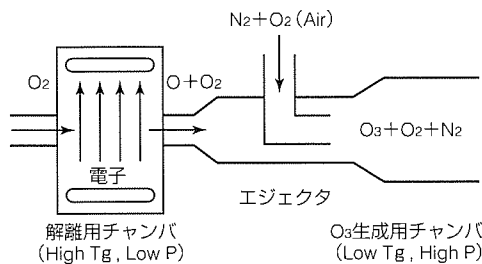


図4. O<sub>2</sub>/O<sub>3</sub>分離発生装置

いる<sup>(3)</sup>。図4はその原理を示したもので、34g/Nm<sup>3</sup>のオゾンが3.57kW・hの電力で得られ、従来よりも6倍近い効率になるものと期待される。

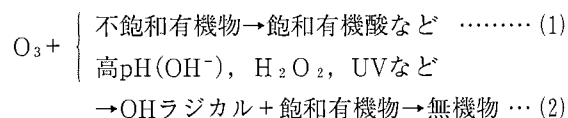
酸素原料オゾン発生器は、空気原料と比べて高いオゾン濃度を高い電力効率で製造することができる。オゾン発生器は一般に発生オゾン濃度を高めると発生電力効率が低下するが、電極を極短ギャップにすることなどにより、240g/Nm<sup>3</sup>のオゾンを10kW・h/kgO<sub>3</sub>の効率で発生させることができるようになった。酸素原料の高効率・高濃度オゾン発生器はオゾン製造コストの更なる低減のための有力な方向である。

別の観点からオゾンの製造コストを下げる努力もなされている。夜間電力を使ってオゾンを製造・貯蔵し昼間に使用するオゾン貯蔵システムである。現在検討されている方式は、冷却したシリカゲルにオゾンを吸着・貯蔵し、濃度を制御しつつ脱着させるものである。この技術は、ピーク時の電力負荷の低減にもつながり、オゾン利用の発展をサポートする技術として今後重要になると考えられる。オゾン貯蔵技術は、酸素リサイクルオゾン発生システム、高濃度オゾン発生システムでもあるので、超高濃度オゾン利用による新用途、経済効果も併せて期待できる。

### 2.2.2 オゾン反応技術

日本オゾン協会の調査をもう少し細かく見ると、以下の傾向が認められる。脱臭及びBOD、CODとTOC関連文献数は安定/横ばい傾向にある。これに対して、有機塩素化合物関連文献は1977年に急激に増加しており、浄水処理において塩素代替技術としての期待を反映している。続いて遺伝毒性関連が'84年に、副生成物関連は'86年に急増しており、塩素処理によるトリハロメタン生成問題に端を発した副生成物への関心の高まりを示している。活性炭、凝集、過酸化水素及び紫外線照射併用は'82年ころから増加傾向を示している。この辺りから新しい利用技術開発にも関心が向けられた。脱色、反応機構、反応条件依存性、反応速度論関連などの基礎的な文献も'80年を境に増加している。以上のオゾン反応技術の流れは、少し専門的になるが、次のように要約することができる。

水中でのオゾン反応は条件によって次の2系列がある。



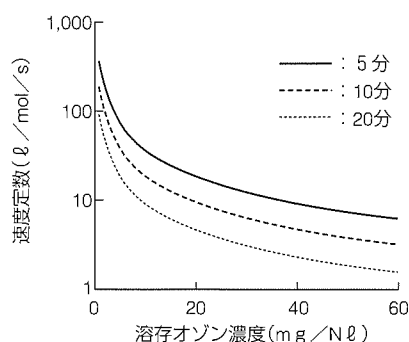


図5. 90%反応に必要な速度定数の溶存オゾン濃度依存性

(1) 直接オゾン反応

反応経路(1)は直接オゾン反応で、オゾン分子(O<sub>3</sub>)と対象を直接反応させるもので、クリーギー機構を基礎に置いている。図5は、反応時間をパラメータとして、オゾンとの直接反応で対象物を90%反応させるのに必要な速度定数と溶存オゾン濃度の関係を理論的に求めたものである。空気原料の標準的なオゾン発生器を用いた場合、溶存オゾン濃度は、反応器のオゾン吸収効率の関係で、1 mg/l前後になるよう操作される場合が多い。したがって、10分前後で90%の除去率を得るためには、対象物の速度定数は100 l/mol/s前後以上であることが必要である。脱色、脱臭と殺菌に関係する不飽和化合物分解の速度定数は100 l/mol/s以上であるので、直接反応が適用できる。最近の高濃度オゾン発生器を使うと実用的な適用範囲が広がる。

(2) ラジカル反応

直接オゾン反応では、反応速度の点から有機物を無機化できず、十分なCODやTOC(全有機炭素量)除去ができない場合が多い。1980年前後に、この限界を破る方法として、高pHオゾン処理法<sup>(4)</sup>、紫外線照射併用オゾン処理法<sup>(5)</sup>、過酸化水素添加オゾン処理法<sup>(6)</sup>が開発された。酸化の主役は、オゾンではなく、オゾンの前駆物質とするOHラジカルである。

OHラジカルと有機化合物の反応速度定数は、オゾンと異なり、有機物の種類によらず非常に大きい。OHラジカルは水素を引き抜き、続いてオゾンや酸素と反応して、最終的にはほとんどの有機物を無機化することができる。オゾンの前駆物質とするラジカル反応技術は促進酸化処理法(Advanced Oxidation Process: AOP)と呼ばれている。

(3) 併用技術

オゾン処理と他の単位処理技術とを組み合わせることによって相乗効果を出すことができる場合がある。次のような組合せがある。

- オゾン+凝集: 凝集剤添加量低減
- オゾン+ろ過: ろ過抵抗低減, ろ過効率向上, 逆洗頻度低減

オゾン+生物: 基質の生分解性向上

3. むすび

オゾンの主な工業的な利用は、飲料水の殺菌と化学合成の分野で始まった。前者は主として経験的に、後者は化学反応機構の解明をその起源として展開されたものである。これらは、その後に開発された対抗技術と比較して、相対的にコストが高いことがその後の利用拡大の制限要因になったことは事実であろう。

しかし、1970年代に入って水処理における公害対策技術として再び注目されるようになり、大容量オゾン発生器の開発に加えて、オゾン反応に関する新たな理論・技術が開発された。すなわち、オゾン発生器の信頼性向上、製造コストの大幅な低減が実現され、オゾン利用技術の高度化、ラジカル反応を利用する促進酸化処理技術などの新しい反応技術が開発された。オゾン利用分野が拡大され、水処理技術の基礎ができたわけである。

次の局面は、公害時代から環境重視時代に移行する中で、新たなニーズへの対応である。健全で安全な水資源の確保、環境中の微量残留有害物質分解、リサイクルに適した技術が必要になる。オゾンの持つ特性と機能は、これらの要求を実現させるポテンシャルを持っている。オゾンの機能を効率的に発揮させるための反応制御と反応器、より効果的な複合技術・組合せ技術の重要性が今後増すであろう。この新しい局面は水処理分野に限られるものではない。食品分野や半導体などの製造プロセスへの応用は既に大きく動き出している。

オゾンはいわゆる“環境に優しい”酸化剤であり、多様なニーズにこたえるポテンシャルを持ち、それに対応して発展する化合物であることが歴史的な経緯から読み取れるのではなかろうか。

参考文献

- (1) 高度水質環境創出のための技術調査報告書, 日本オゾン協会 (1992-11)
- (2) 最新オゾン利用技術・分野の動向, 流通システム研究センター (1993)
- (3) Tabata, N., Tanaka, M.: Ozone Generator in the Future, Proceedings of 13th Ozone World Congress, Kyoto, 2, 833~840 (1997)
- (4) 中山繁樹, 吉安いく世: 日本化学会春季年会, 仙台, (1975)
- (5) 中山繁樹, 江崎謙治: 用水と廃水, 19(11), 1351 (1977)
- (6) Nakayama, S., Esaki, K., Namba, K., Taniguchi, Y., Tabata, N.: Ozonation in Aqueous System, Ozone Science and Engineering, 1, 119~131 (1979)

# 円筒多管式オゾン発生器の性能進歩

## 要 旨

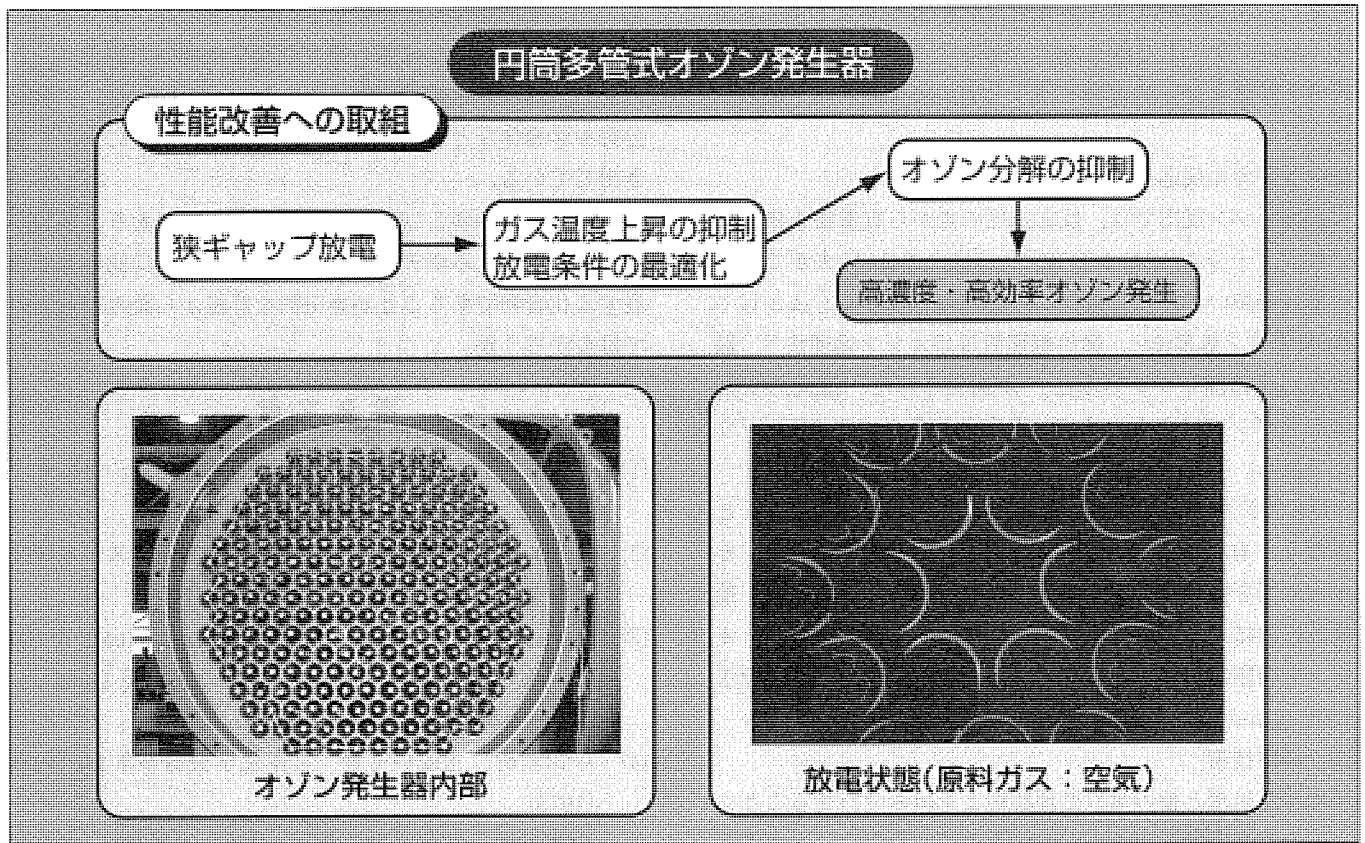
オゾンは、その強力な酸化力による殺菌、脱臭、脱色や有機物除去等の複合的な効果を持ち、しかも自然分解して酸素に戻り残留しないので、環境問題の根本的な解決に役立つ物質として、近年大きな注目を浴びている。浄水処理分野では、従来の塩素処理によって生成されるトリハロメタン (THM) の危険性が指摘されているが、オゾンを用いた高度水処理によってこれらの前駆物質を低減し“安全でおいしい水”を提供できることが広く一般に認められてきている。

オゾンの利用は水処理にとどまらず様々な分野への適用が検討され、オゾン処理の需要はますます高まっている。三菱電機ではオゾン設備の更なる普及と利用分野の拡大を

推進するため、設備の中核機器であるオゾン発生器の性能向上、具体的には省電力・省スペース化を目的とした開発を継続して進めている。

円筒多管式オゾン発生器に関する当社のこれまでの開発成果と現在の開発テーマは以下のとおりである。

- (1) 放電ギャップ長の狭隙化と原料ガスの高圧力化によってオゾン発生阻害要因となる窒素酸化物の生成を抑え、高濃度・高効率オゾン発生を実現した省電力・省スペースタイプの新型空気原料オゾン発生器を開発し、製品化した。
- (2) 独自の高精度電極による狭ギャップ放電により、 $200 \text{ g/Nm}^3$ 以上の高濃度オゾン発生と省電力・省スペースを実現する円筒型オゾン発生器の開発を推進している。



## 三菱円筒多管式オゾン発生器

誘電体電極に独自の高精度ガラス管を使用し、均一な狭放電ギャップが形成されている。これにより、空気、酸素のいずれを原料ガスに使用した場合でも従来機に比べてより高濃度・高効率のオゾン発生が可能であり、装置の小型化及び省電力化に大きく貢献している。



## 1. ま え が き

オゾンはその強力な酸化力によって殺菌、脱臭、脱色や有機物除去等の効果が複合的に得られ、その上自然分解して酸素に戻り残留毒性を持たないため、環境問題の根本的な解決に役立つ物質として注目されている。特に近年、水や大気を始めとする環境汚染問題への関心の高まりから、オゾンの利用分野が急速に拡大しつつある。

特に上水分野に関しては、“安全でおいしい水”への要求の高まりから、オゾンによる高度処理設備の導入が相次いでいる。さらに下水処理分野でも再利用などに適用されているが、最近問題になっている耐塩素性菌クリプトスポリジウムの対策にオゾンが有効であるとの報告もあり、オゾン処理の導入の加速化が期待されている。また、上記水処理分野のみならず、塩素削減の社会的な動きを受けて紙パルプの漂白や、さらには半導体製造の分野にもオゾンが利用される機運にある。

近年の技術開発によってオゾン発生器の性能は大幅に改善されてきているが、オゾンの製造コストは依然として高く、また装置も大きな設置スペースを必要とする。このことが、オゾン設備の様々な分野への適用拡大の加速化を鈍らせている主要因となっている。

当社では、オゾン設備の更なる普及と利用分野の拡大を推進するため、オゾン設備の中核をなすオゾン発生器の省電力・省スペース化の実現を目的とした技術開発を継続して進めている。

本稿では、その開発内容と成果について述べる。

## 2. 空気原料オゾン発生器

### 2.1 無声放電によるオゾン発生

産業用途に用いられるオゾン製造法としては、生成されるオゾンの濃度及び効率の面から、無声放電(Silent Discharge)によるものが一般的である。無声放電は、誘電体を介した電極間に交流やパルスなどの時間的に変化する電圧を印加することによって得られる。円筒型オゾン発生器の概略構成を図1に示す。誘電体電極として、内周壁面に導電層を持つ高誘電率・低誘電損失のガラスが用いら

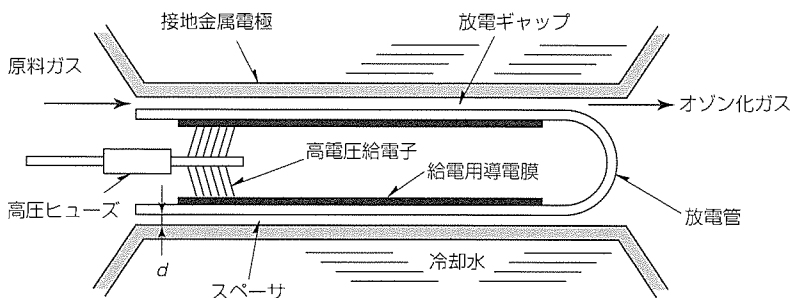


図1. 円筒型オゾン発生器の構造(片面冷却式)

れ、図示した給電子を介して交流高電圧が給電される。また、接地電極には、耐オゾン性の面から、ステンレス製の円筒管が使用される。接地電極外周部には冷却水が循環し、放電部で発生する熱を発生器外部に除去する。なお、この発生器は、接地電極のみを冷却する片面冷却方式を採用している。

無声放電によるオゾン発生に対しその発生特性に影響する因子は図2に示すように数多く存在するが、放電空間のガス温度と電子エネルギーを決定するものと大別される。これらの双方にかかわるのが放電ギャップ長 $d$ (図1の電極間空隙長)であり、無声放電によるオゾン発生器の性能を決定する最も重要なパラメータである。

ガス圧力 $P$ は、放電ギャップ長 $d$ とともに放電空間の電子エネルギーに影響する。特に空気原料オゾナイザの性能向上に対しては、オゾン分解を促進する窒素酸化物( $\text{NO}_x$ )の生成を抑制する観点から、電子エネルギーを最適化する上で放電ギャップ長とともに重要なパラメータとなる<sup>(1)</sup>。 $\text{NO}_x$ は、原料ガスである空気中に含まれる窒素分子が電子との衝突によって窒素原子に解離され、この窒素原子が酸素やオゾンと反応することによって生成される。窒素原子の生成速度は、衝突する電子のエネルギーによって決定される。電子のエネルギーは放電空間内のガス圧力 $P$ と放電ギャップ長 $d$ の積である $P \cdot d$ 値の一義的な関数で表されるので、 $\text{NO}_x$ の生成特性はこの $P \cdot d$ 値に大きく影響される。

### 2.2 性能向上に対する取組と成果

前述のように、無声放電によって効率良くオゾンを生成するためには、①低いガス温度、②適正な電子エネルギーが必要とされる。これらの条件を満足し高効率オゾン発生を実現するため、放電ギャップ長と放電ガス圧力がオゾン発生特性に与える影響について検討を行ってきた<sup>(2)</sup>。

図3に、実験的に得られたオゾン収率と $P \cdot d$ 値の関係を示す。この図より、①最大収率が得られる $P \cdot d$ 値は放電ギャップ長 $d$ によらず一定であり、 $20\text{kPa} \cdot \text{cm}$ ( $\approx 150\text{Torr} \cdot \text{cm}$ )近傍に最適値が存在すること、②最適な $P \cdot d$ 値におけるオゾン収率は放電ギャップ長 $d$ の減少に

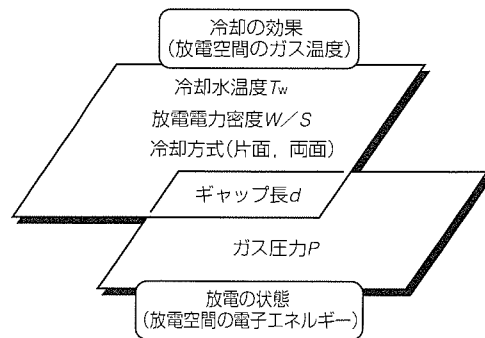


図2. オゾン発生特性に影響を与える諸因子

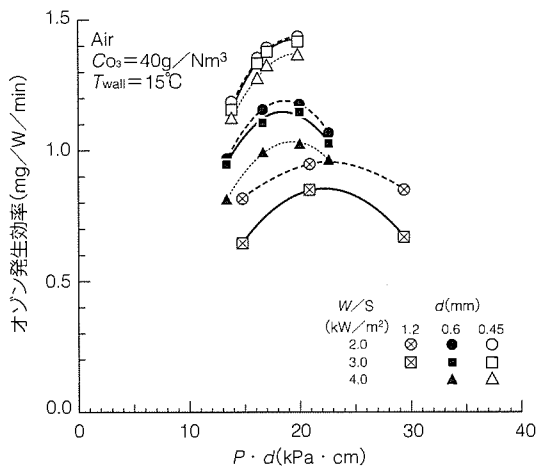


図3. オゾン発生効率とP・d値の関係

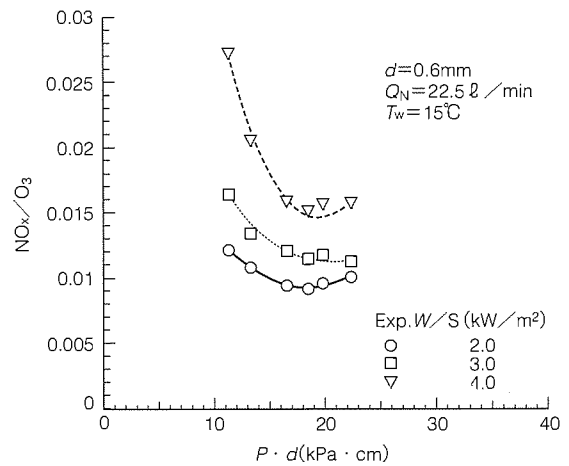


図4. NO<sub>x</sub>生成とP・d値の関係

表1. 高圧力型オゾン発生装置と従来型装置の性能比較

	高圧力型オゾン発生装置	従来型オゾン発生装置	高圧力型オゾン発生装置の特長
	型式：OS-1000J	型式：OT-1F	
定格オゾン濃度 ( )内は最大製造可能値	40gO <sub>3</sub> /Nm <sup>3</sup> (50gO <sub>3</sub> /Nm <sup>3</sup> )	20gO <sub>3</sub> /Nm <sup>3</sup> (25gO <sub>3</sub> /Nm <sup>3</sup> )	●高オゾン濃度の要求にこたえることが可能。
定格オゾン化ガス量	25Nm <sup>3</sup> /h	50Nm <sup>3</sup> /h	●ガス流量が小さいため、空気源設備の省電力化及び反応塔設備の小型化が図られる。
定格オゾン化ガス圧	1.9kg/cm <sup>2</sup> G	0.7kg/cm <sup>2</sup> G	●高圧力のため、オゾン化空気配管口径を従来式に比べて小さくできる。
設置スペース	63%	100%	●オゾン濃度が従来型の2倍であるため、空気風量は1/2となり、空気源設備が小型化される。
オゾン発生量 1kg/h当たりの消費電力	84%	100%	●省エネルギーを実現。

伴って上昇することが分かる。また、NO<sub>x</sub>濃度についても同時に測定した。図4に示すように、オゾン収率が最大となるガス圧力近傍でオゾン濃度に対するNO<sub>x</sub>濃度の比が最小となり、オゾン収率の向上がNO<sub>x</sub>生成量の低減によるものであることも示された<sup>(3)</sup>。

以上の取組から、空気原料オゾン発生器の大幅な性能改善を達成し、40 g/Nm<sup>3</sup>までの発生オゾン濃度に対して、構成補機を含めたシステムの消費電力を約15%低減することが可能になった。この取組の成果によって製品化された高圧力・短ギャップオゾン発生器と従来型オゾン発生器との性能比較を表1に示す。高濃度・高圧力のオゾン発生により、従来装置に比較して省エネルギー・省スペースに貢献していることが分かる。

### 3. 酸素原料オゾン発生器

#### 3.1 高効率オゾン発生原理

放電空間の平均ガス温度  $T_g$  (K) は、均一発熱を仮定した場合には次式で与えられる。

$$T_g = \frac{W/S}{3 \cdot k} \cdot d + T_w \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 $W/S$ ：放電電力密度(W/cm<sup>2</sup>)  
 $d$ ：放電ギャップ長(cm)  
 $k$ ：ガスの熱伝導率(W/cm/K)  
 $T_w$ ：冷却水温度(K)

したがって、狭放電ギャップによってガス温度の上昇が抑制されるので、オゾン発生特性の向上が期待される。さらに最近の研究で、狭ギャップ放電が放電場の電界強度(平均電子エネルギー)を増大し、オゾン分解を抑制する低エネルギー電子の発生を抑制することで、放電場でのオゾン分解反応を低減する効果があることが明らかになっている<sup>(3)</sup>。<sup>(4)</sup>すなわち、狭ギャップ放電は、放電場の冷却能力の向上と放電場でのオゾン分解を促進する低エネルギー電子の発生抑制との相乗効果による酸素原料オゾン発生器の大幅な性能改善が期待できる。

#### 3.2 検証結果

円筒型オゾン発生器では、放電ギャップの精度は、高圧電極及び接地電極の内外径精度と両電極の同心性に大きく依存する。このため、一様な狭ギャップを形成することは難しいとされてきた。当社では、高圧電極及び接地電極の加工精度の向上と独自の狭ギャップ保持用スペーサの開発

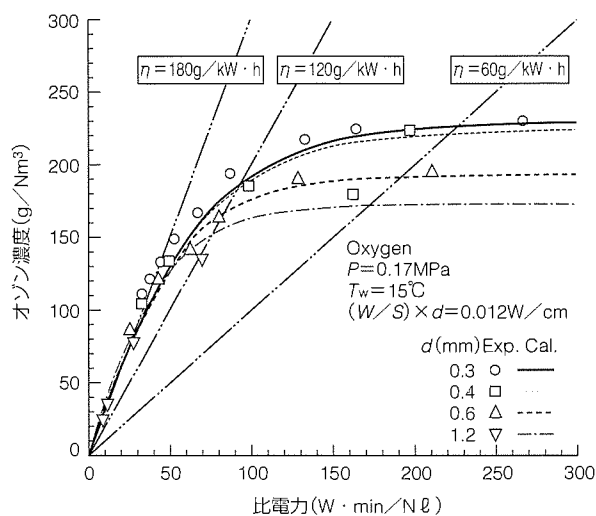


図5. オゾン発生器の性能向上

により、円筒型オゾン発生器においても、1mm以下の一様な狭ギャップの形成を可能とした。

ここでは、狭ギャップ円筒型オゾン発生器の基礎特性を把握することを目的に、単管試験機によって得られたオゾン発生特性を紹介する。

図5は、放電電力密度 $W/S$ とギャップ長の積 $d$ を一定とした条件で得られたオゾン発生特性を示したものである。図中の3本の直線はそれぞれオゾン発生効率を表しており、この直線の傾きが大きくなるほど高効率でオゾンが生成されていることを意味する。この条件では冷却水温度を一定(288K)としているので、式(1)から図5はガス温度一定でのオゾン発生特性とみなすことができる。

図から、最高オゾン濃度は放電ギャップの狭隙化に伴って増大し、さらに高濃度域でのオゾン発生効率も向上していることが分かる。また、電力密度を増大しているにもかかわらず、長ギャップ放電によるオゾン発生効率に対して、同等又はそれ以上の効率でオゾン生成が可能であることが示されている。これはすなわち、投入電力密度にほぼ比例して放電管1本当たりのオゾン発生量を増大することができるので、所定のオゾン発生量に必要な放電管本数を削減できることを意味する。したがって、オゾン発生器の小型化が可能である。例えば、放電ギャップ長を0.3mmとした場合には、従来機(ギャップ長0.6mm)と比較すると、放電管1本当たりのオゾン発生量を倍増できるため、半分以下の放電管本数で同等の性能を得ることが可能である。

このように、酸素原料オゾン発生器に対し、放電ギャップの狭隙化によって発生オゾン濃度の増大とオゾン発生効率の改善が可能であることを試験機レベルで確認した。こ

の成果を基に、更なる省スペース・省エネルギーを実現するオゾン発生器の製品化に向けた開発を継続している。

### 3.3 今後の課題

前述のとおり、狭ギャップ化によるオゾン発生器の性能向上に関する試験機レベルでの検証を終え、オゾン発生効率の向上とオゾン発生器の小型化が可能となることを実証した。多数の放電管で構成される大容量のオゾン発生器で前述の検証結果と同等の性能を実現するには、放電ギャップ精度のばらつきを抑制することが最大のポイントとなる。放電ギャップ精度のばらつきが狭放電ギャップオゾン発生器の性能に与える影響については、現在、定量的評価を進めている段階である。これにより、放電ギャップ精度の基準を明確にし、前述の単管機に匹敵した性能を持つ多管式オゾン発生器の製品化を目指す所存である。

## 4. むすび

円筒多管式オゾン発生器の省電力・省スペース化を目的とする当社の開発内容と最新のオゾン発生器の性能を紹介した。この開発成果を迅速に製品化に結び付けることにより、オゾン設備の更なる普及と利用分野の適用拡大の加速化に寄与し、環境問題の解決とより豊かな社会の実現に役立つことができれば幸いである。

## 参考文献

- (1) 北山二郎, 八木俊憲, 沖原雄二郎, 石田稔郎: 空気原料オゾンナイザの省電力・高濃度化技術, 三菱電機技報, 71, No.4, 423~428 (1997)
- (2) 荊原弘行, 田村哲也, 石田稔郎, 河相好孝, 北山二郎: 上下水道オゾン高度処理システムの技術動向, 三菱電機技報, 71, No.11, 962~968 (1997)
- (3) Kitayama, J., Yagi, T., Ishida, T., Gotoh, S., Esaki, N., Ozawa, T.: Effects of Discharge Gap Width and Gas Pressure on Ozone Generation Characteristics of an Air-Fed Ozone Generator, Proc. of 13th Ozone World Congress, 2, 791~796 (1997)
- (4) 葛本昌樹, 北山二郎, 和田昇, 田畑要一郎: 電子衝突によるオゾン分解効果, 第6回日本オゾン協会年次研究講演会講演集, 77~80 (1997)
- (5) Kitayama, J., Kuzumoto, M.: Theoretical and Experimental Study on Ozone Generation Characteristics of an Oxygen-Fed Ozone Generator in Silent Discharge, J. of Phys. D, 30, 2463~2461 (1997)

# 大容量積層平板型高濃度オゾン発生装置

和田 昇\* 田畑要一郎\*\*\*  
 太田幸治\* 臼井 明\*\*\*  
 葛本昌樹\*\* 眼龍裕司\*\*\*

## 要 旨

地球環境問題が深刻になるにつれ、オゾンが環境に優しいことから、産業界においてオゾンの必要性の認識が高まっている。“おいしい水”を目的に始まったオゾンによる浄水高度処理が認知され、現在では、より高濃度のオゾンを用いた次世代の下水処理、パルプ漂白が期待されている。これらの用途へ必要とされるのは好ましくは $200\text{g}/\text{Nm}^3$ 以上の高濃度で、しかも数百 $\text{kg}/\text{h}$ という膨大な量のオゾンであり、低コストでコンパクトな大容量オゾン発生装置の開発が待望されている。

本稿では、三菱電機が開発を進めてきた高濃度オゾンの高効率発生技術を生かし、次世代下水処理及びパルプ漂白に対応できる大容量オゾン発生装置の開発について述べる。

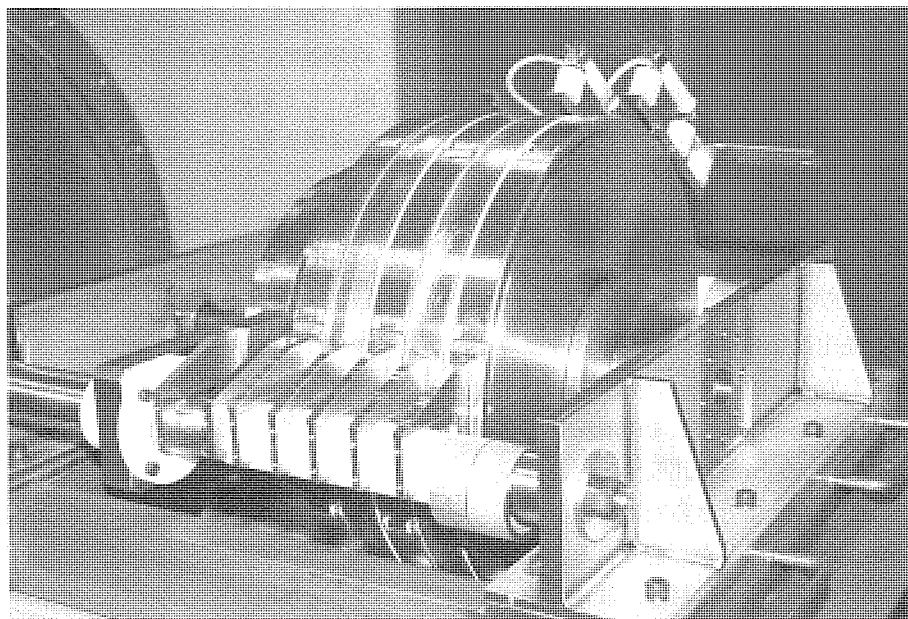
この大容量オゾン発生装置は、以下の技術を結集し、開発したコンパクト・大容量・高濃度オゾン発生装置である。

- (1) 高濃度オゾンの高効率発生技術
- (2) 電極の大口径化による大容量オゾン発生技術
- (3) 両面冷却方式による低コスト・コンパクト化技術

これらの技術により、大容量対応のオゾン発生装置の試作器で、高電圧電極がわずか1枚において、 $180\text{g}/\text{Nm}^3$ 以上の高濃度オゾンを1時間に約1 $\text{kg}$ 以上発生可能なことを確認した。今後、電極の高精度化を進め、更なる大容量・高濃度化を目指し、開発された基本技術に基づき、製品化検討を行う。

## 大容量・高濃度オゾン発生器

積層平板型 大口径電極 両面冷却式



## 大容量・高濃度オゾン発生試作器

次世代のパルプ漂白や下水処理を目指した大容量・高濃度オゾン発生器のプロトタイプであり、直径500mmの接地電極及び高電圧電極で構成される。発生オゾン濃度は $180\text{g}/\text{Nm}^3$ 以上、オゾン発生量は高電圧電極1枚で $1\text{kg}/\text{h}$ 以上である。

極短放電ギャップの高精度形成、電極の大口径化、両面冷却方式の導入により、コンパクトなオゾン発生器となっている。

## 1. ま え が き

米国において調印されたクラスタールール<sup>1)</sup>により、紙パルプ産業におけるダイオキシン、フラン、塩素化フェノール、クロロホルム、AOX(Absorbable Organic Halogens)に関する厳しい排出規制が実施されるようになり、パルプ漂白過程における塩素系漂白剤の大幅な使用量削減が要求されている。従来から、紙パルプ産業だけでなく、水処理や殺菌などの技術にも塩素が頻繁に使用されていたが、二次生成物として生成される塩素化合物が自然界に与える悪影響が懸念され続けてきた。ついに、その懸念に法的な規制が課せられることとなった訳である。この法律が日本の紙パルプ業界を規制することはないが、同様の規制が近く日本国内においても成立する可能性がある<sup>2)</sup>として、二酸化塩素やオゾンなどを用いるECF(Elementary Chlorine Free)法、塩素系は全く使用せずオゾン単独によるTCF(Total Chlorine Free)法が塩素代替漂白技術として注目されている。

また、パルプ漂白だけでなく、我々を取り巻く水環境においてもオゾンの適用は脚光を浴びている。浄水の高度処理では完全に市民権を得た感のあるオゾン処理であるが、現在は、将来の下水処理システムへの投入が待望されている。

旧来の塩素系による下水処理などでは、残留塩素の問題が指摘されているのに対して、有害な二次生成物を生み出さないオゾンに対する期待及び必要性の認識が急速に増加している。しかし、オゾン処理はコスト高という障壁のために、その処理量が膨大となるパルプ漂白及び下水処理には、浄水処理に比べ、その採用は国内では少ない。そこで、膨大な処理量を経済的にオゾン処理できる大容量の高濃度オゾンが必要であり、オゾン生成の低コスト化が急務とされている。

本稿では、当社の積層平板型オゾン発生装置の高効率・高濃度化を始め、近未来のパルプ漂白、下水処理への投入を可能とする高濃度オゾン発生装置の大容量化とコスト低減への取組について述べる。

## 2. 積層平板型高濃度オゾン発生装置の開発

### 2.1 概 要

近年、パルプ漂白や下水処理、また半導体プロセスにおけるオゾンの有意性が認知され、プラントや製造ラインへの導入が始まりつつある。これらの用途に必要とされるオゾンは、従来浄水処理で使用されてきた20g/Nm<sup>3</sup>程度のいわゆる低濃度オゾンに対して、好ましくは殺菌・消毒効果及び使用オゾン量低減の観点から200g/Nm<sup>3</sup>以上の高濃度オゾンの要求がある。以前から広く利用されてきた低濃度オゾン発生技術に比べて高濃度オゾンの発生技術開発

は非常に遅れていたため、上記産業のニーズにこたえるため、高濃度オゾンの発生技術が各国の各オゾン発生装置メーカーで急速に開発されている。また、イニシャル及びランニングにおいてコスト高と認識されていたオゾン利用に対して、その発生効率を改善する研究が多く重ねられ、高濃度化と併せて、高効率化・低コスト化を目指した開発も続けられている。

オゾンは、放電空間のガス温度の上昇や生成過程における低エネルギー電子との衝突などによって分解を余儀なくされる。すなわち、高濃度のオゾンを発生するには、いかに生成したオゾンの再分解を抑制するかがキーポイントとなる。そこで、当社は、オゾンの再分解作用の抑制に注目し、高効率に高濃度オゾンを発生できる積層平板型オゾン発生装置を開発中である。

### 2.2 オゾン発生効率の向上

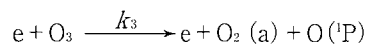
オゾンの再分解には、放電空間のガス温度の上昇、低エネルギー電子と生成オゾンの衝突が特に大きな影響を及ぼしている。これらの対策には無声放電の重要なパラメータである放電ギャップ長が大いにかかわっている。

無声放電式オゾン発生部は、接地電極と高電圧電極間にギャップを設け、そのギャップ間に無声放電を発生させ、オゾンを発生させるものである。一般的に、接地電極を水冷することにより、オゾン発生による放電空間の温度上昇を抑制している。オゾンは放電空間のガス温度の上昇によって分解されるため、ガス温度を低く保つことは再分解を抑制する上で重要となる。放電空間のガス平均温度  $\theta_{av}$  は、

$$\theta_{av} \equiv \frac{1}{d} \int_0^d \theta(x) dx = \frac{(W/S)}{3k} d + T_w \dots \dots \dots (1)$$

で表される。ここで、 $d$ は放電ギャップ長、 $W/S$ は放電電力密度、 $k$ はガスの熱伝導率、 $T_w$ は冷却水温度、 $x$ は放電ギャップ方向の距離を示しており、放電ギャップ長を短縮することが、放電空間のガス温度を低下させる、つまりオゾンの再分解を抑制する作用を持つことが分かる。

また、放電空間では、酸素分子と電子の衝突によってオゾンを生成する一方、次のようなオゾンと電子の衝突反応過程において、同一空間において生成したオゾンを再分解している。



オゾン生成に寄与する電子は6～8eV以上の高エネルギーを持つ電子群であるが、生成したオゾンの分解には2eV程度の低エネルギー電子で十分である<sup>3)</sup>。すなわち、6eV以下の低エネルギー電子は、オゾン生成には寄与せず、生成したオゾンの分解にのみ作用しているのである。つまり、放電空間内においてこの低エネルギー電子数を抑制することができれば、放電空間内の電子がオゾン生成にだけ寄与し、高効率にオゾンを発生することができる。低エネ

ルギー電子数を抑制するには、放電場を高電界場とし、低エネルギー電子を加速することにより、その分布を高エネルギー領域にシフトさせればよい。そのためには、放電ギャップ長を極めて短く構成することで電界強度を高め、低エネルギー電子にエネルギーを与えればよいことになる。

以上のように、オゾンの高効率発生には放電ギャップ長を短くすることが極めて有効であることが分かる。当社は、このような観点から、従来の1/10程度の極短放電ギャップ長を高精度に形成したオゾン発生器を組み込んだ装置を開発した。次節にその構造及び性能を紹介する。

### 2.3 高効率・高濃度オゾン発生器

図1に、当社が開発した無声放電式高効率・高濃度オゾン発生器の模式図を示す。このオゾン発生器は積層平板型発生器であり、約8インチ径(200mm径)の接地電極とセラミックス焼結板で構成した高電圧電極間に金属スペーサを挿入することにより、0.1mm以下の極短放電ギャップ長を高精度に形成し、高電界放電場を実現した。このため、①放電空間のガス温度上昇を従来の1/10程度に抑え、②生成したオゾン再进行分解する低エネルギー電子数を、図2に示すように、従来発生器に比べて大幅に抑制することができた。その結果、高効率にオゾン生成することを可能としたものである。この発生器において、世界最高のオゾン濃度300g/Nm<sup>3</sup>(約20wt%)、オゾン発生部は従来の1/5のコンパクト化が実現できた。また、消費電力10kW・h/kg-O<sub>3</sub>において従来器(ギャップ長1.0mm)では100g/Nm<sup>3</sup>程度しか得られなかったオゾンが、この発生器では240g/Nm<sup>3</sup>という高濃度で得られる。このようにこの発生器は、極短放電ギャップ長を高精度に形成したために、オゾン発生の高濃度化及び低消費電力化、オゾン発生部のコンパクト化を実現したものである。

## 3. 高濃度オゾンの大容量化

### 3.1 概要

パルプ漂白や下水処理分野では、オゾン発生量が数十～数百kg/hでかつ高濃度のオゾンが必要とされ、コンパクトかつ低コストな大容量オゾン発生装置が待望されている。オゾン発生量はその放電面積の増加に伴って増量するため

に、大容量化には放電空間数、つまり電極数を増加させればよい。しかし、安易な電極数の増加は装置の巨大化及び高コスト化を引き起こしてしまう。したがって、大容量化の際には、低コスト化を同時に実施できる方式の検討が必要とされる。

この章では、前章で紹介した当社の積層平板型オゾン発生器を基本構造とし、その大容量化・低コスト化技術について検討した結果について述べる。

### 3.2 電極の大口径化

電極径を大口径化し1放電空間当たりの放電面積と投入電力を増加させることにより、オゾン発生量を増加することができ、かつコンパクトなオゾン発生器を実現できる。当社では、従来の高効率・高濃度オゾン発生器の電極径200mmを500mmにまで大口径化し、1放電空間でのオゾン発生量を5倍以上に増加できる試作器の開発に成功した。試作器におけるこの大口径電極は、従来のセラミックス焼結板に換えて大口径化・量産化に際して極めて効果的な技術の一つである誘電体皮膜コーティング技術を高電圧電極に採用したものであり、1枚の金属基材表裏両面に誘電体層を形成できるものである。そのため、大幅な部品点数の削減及び製造時間の短縮化が実現でき、焼結板では製造が困難であった500mm径という大口径面積でも容易に誘電体層を形成できるようになった。被コーティング金属基材の平面度及び平行度、コーティング皮膜の平行度を極めて高くし、金属接地電極とコーティング皮膜間の剛体-剛体接触によって形成する放電ギャップ長を0.1mm以下と高精度に実現した。

この大口径電極(2放電空間)によるオゾン発生器のオゾン発生特性を図3に示す。この図は、縦軸にオゾン発生量、横軸に放電電力をとり、酸素ガス圧力Pが2.5kgf/cm<sup>2</sup>、放電ギャップ長dが0.1mm及び0.075mmの場合のオゾン発生量を示すものである。この発生器は接地電極のみを水冷した片面冷却方式であり、わずか2放電空間において、放電電力密度1W/cm<sup>2</sup>で300g/h超のオゾンが得られている<sup>(4)</sup>。1放電空間を500mm径としたことにより、極めてコンパクトな発生器の開発に成功し、1放電空間当たり従来の5倍以上のオゾンを発生させることが可能となった。電

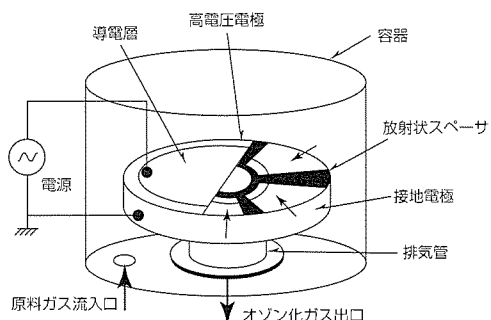


図1. 高効率・高濃度オゾン発生器

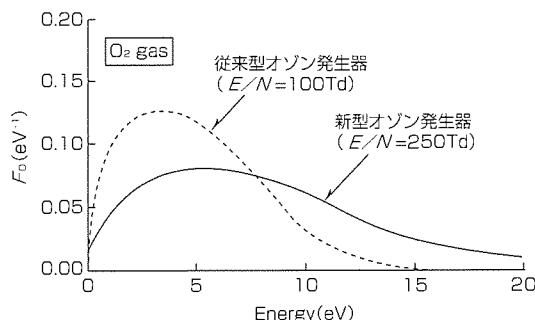


図2. 電子のエネルギー分布

極を積層することにより、更に高濃度・大容量化が可能となる。

### 3.3 両面冷却方式

放電空間のガスの効率的な冷却は、オゾン発生器のコンパクト化に直接結びつく技術である。通常のオゾン発生器は、前述してきたように、接地電極のみの水冷による片面冷却方式を採用している。しかし、大容量化には、高電圧電極も共に冷却する両面冷却方式が極めて効果的となる。両面冷却方式を用いると、放電空間のガス平均温度は次のように表される。

$$\theta_{av} \equiv \frac{1}{d} \int_0^d \theta(x) dx = \frac{(W/S)}{12k} d + T_w \dots\dots\dots(2)$$

却能力を発揮することが分かる。そのため、同一発生器において片面冷却方式の4倍の放電電力密度を投入することが可能となり、電極数を1/4に削減できる。したがって、大幅な低コスト化及びコンパクト化が期待できる。

この冷却技術により、当社は、1kg/h高濃度オゾン発生器として図4に示すオゾン発生器の開発に成功している。冷却可能な金属基材の表裏両面にセラミックス焼結板を接合した誘電体一体型の電極を用い、550径×650mmのコンパクト1kg/h (at 200g/Nm<sup>3</sup>) 発生器を実現した。

### 3.4 大容量・高濃度オゾン発生器の開発

現在、当社は、電極の大口径化、さらには両面冷却方式による低コスト・コンパクト化技術を結集し、パルプ漂白や下水処理など数百kg/hの高濃度オゾンが必要とする用途への適用を目指し、オゾン濃度200g/Nm<sup>3</sup>を超える大

容量・高濃度オゾン発生器の開発を進めている。

今回試作開発した大容量・高濃度オゾン発生器は、冷却可能な金属基材に誘電体皮膜をコーティングすることによって構成した電極径500mmの大口径電極を高電圧電極として使用している。コーティング技術の利用による大幅なコストダウンが見込める反面、極短放電ギャップを高精度に構成するためには、前述した大口径オゾン発生器と同様に高精度で平行度の高い電極を製作しなければならない。

図5に大容量・高濃度オゾン発生器の構造を示す。電極は架台の左右に設置してある2本の絶縁軸にぶらさげる形態を採る。そして、後方から荷重を印加し、電極群を固定する極めて簡単かつ作業性に優れた構造となっている。このように、大口径電極及び両面冷却方式の両者を導入し、コーティング技術の利用、部品点数の削減により、極めてコンパクトで低コストな大容量オゾン発生器が開発できた。

また、図6にこの発生器のオゾン発生特性を示す。この図は、縦軸をオゾン濃度、横軸を放電電力W/酸素ガス流量Qとし、ガス圧力Pを2.5kgf/cm<sup>2</sup>、放電ギャップ長dを0.075mmとし、酸素ガス流量を100, 50及び10Nℓ/minとした場合の結果を示している。例えば、酸素ガス流量100Nℓ/minの結果を見ると、放電電力が約13kW(放電電力密度4W/cm<sup>2</sup>)において、わずか2放電空間で、約180g/Nm<sup>3</sup>の高濃度オゾン発生を1kg/h以上発生することに成功した。また、酸素ガス流量が10Nℓ/minの場合には、300g/Nm<sup>3</sup>を超える超高濃度オゾンも容易に得られることが分かる。この発生器の構造を用いてオゾン発生装置を構築すれば、極めて低コストでコンパクトな大容量・高濃度オゾン発生システムが期待できる。電極の加工を更に高精度に行うことで、パルプ漂白及び下水処理に対応できる200g/Nm<sup>3</sup>以上の高濃度オゾンの大容量発生を実現できる。

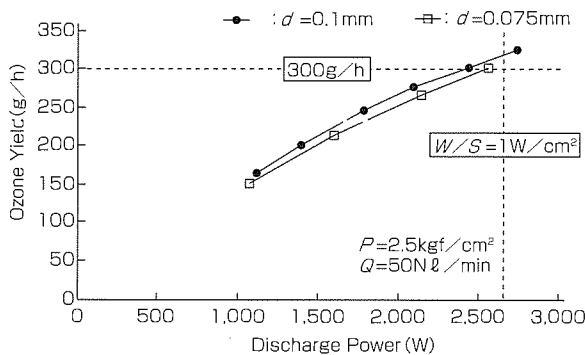


図3. 大口径電極によるオゾン発生特性

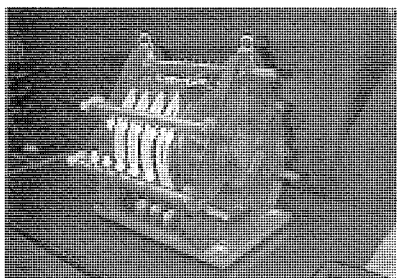


図4. 両面冷却方式1kg/hオゾン発生器

## 4. 高ガス圧オゾン発生技術

### 4.1 概要

パルプ漂白や下水処理をターゲットとした高濃度オゾンの大容量化について述べてきたが、パルプ漂白へのオゾン適用に関しては、高ガス圧力化というもう一つの課題があ

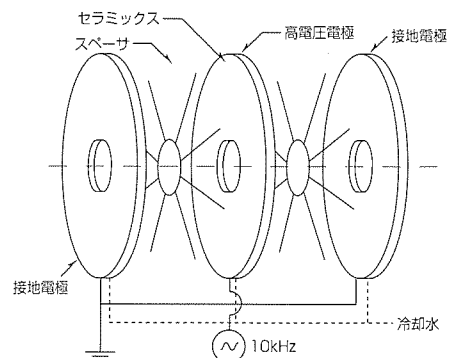


図5. 大容量・高濃度オゾン発生器の構造

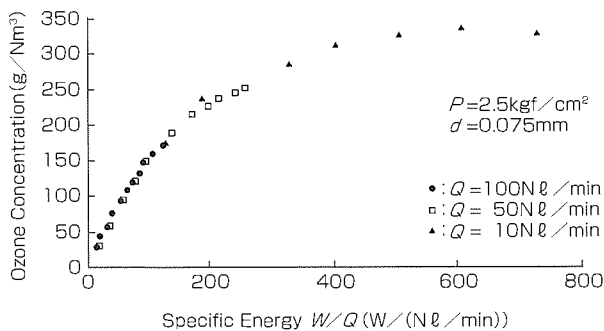


図6. 大容量・高濃度オゾン発生器のオゾン発生特性

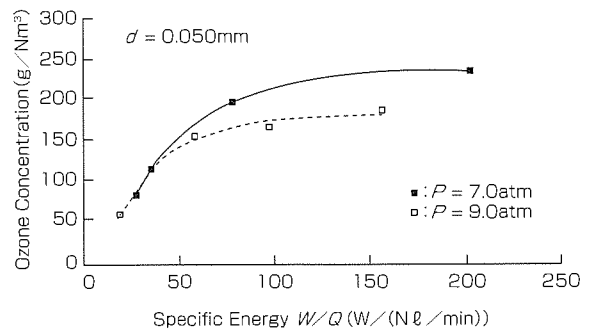


図7. 高圧力・高濃度オゾンの発生

る。パルプ漂白過程において、最も注目されている中濃度パルプ法においては、オゾンとパルプ溶液の高効率混合の観点からガス/液比を低くする必要がある。このため、高密度オゾン、すなわち高圧力・高濃度のオゾンが必要となる。高圧力オゾン発生には、コンプレッサ昇圧法、オゾン濃縮法<sup>15)</sup>、直接高圧オゾン発生法などが検討されている。次節では、当社が取り組む直接高圧オゾン発生法について述べる。

#### 4.2 直接高圧オゾン発生方法

従来、高圧オゾンを直接発生できる発生器は存在しなかった。それは、高ガス圧力下では、放電維持電圧が大きくなることにより、10kV以上の高電圧を発生器に印加する必要があり、安定な放電を維持することが極めて困難とされていたからである。実際に3気圧以上のオゾンガスを発生するオゾン発生器は存在していない。一般に、無声放電の放電状態は、ガス圧力 $P$ 及び放電ギャップ長 $d$ の積で表わされる $P \cdot d$ 積で決定される。したがって、放電ギャップ長を短くすることにより、10気圧程度の超高压下でも安定な放電を得ることができる。前章までに述べてきた当社の高効率・高濃度オゾン発生技術は、正に放電ギャップ長 $d$ を極めて短くすることがキーテクノロジーである。したがって、この技術によれば高圧力下での安定放電を得ることができ、他の付帯設備がなくとも、パルプ漂白に必要といわれる7気圧以上の高圧力オゾンを発生することが可能となる。

図7に放電ギャップ長を0.05mmとした場合のオゾン発生特性を示す。これは50g/hクラスの小型発生器による結果である。放電ギャップ長を0.05mmとしたことにより、放電維持電圧はガス圧力10気圧でわずか2kVと極めて小さくなっている。この図に示すとおり、7気圧で240g/Nm<sup>3</sup>、9気圧で200g/Nm<sup>3</sup>もの高濃度オゾンを発生することに成功している<sup>16)</sup>。

### 5. む す び

当社の積層平板型オゾン発生器における高濃度オゾンの

高効率発生を始め大容量化・高圧力化技術について述べた。極短放電ギャップ長を形成することにより、放電空間のガス温度上昇の抑制と低エネルギー電子数の抑制が可能となり、高濃度オゾンが高効率に得られた。さらに、発生器の電極を大口径化し、冷却能力を4倍向上させたことで、わずか2放電空間においてオゾン濃度約180g/Nm<sup>3</sup>、発生量1kg/h以上(ガス圧力2.5kgf/cm<sup>2</sup>)を超えるオゾンを発生するコンパクトな大容量・高濃度オゾン発生器の試作器を開発した。また、極短ギャップ放電により、今まで不可能とされていた高圧力オゾン発生にも成功し、市場で要求されている大容量・高圧力化が可能な製品に向けて基礎データを収集した。様々な環境問題が議論される中、当社のオゾン発生装置は、近い将来のパルプ漂白及び下水処理へ向けて低コストで高効率に処理し得るプラントの構成装置としてその有効性が期待できる。この技術により、地球環境の保全に貢献できるよう更なる改良を進めていく所存である。

#### 参考文献

- (1) 矢口時也：環境問題とパルプ化技術の最近の動向，紙パルプ技術タイムス，41，No.5，1～6（1998）
- (2) 葛本昌樹，北山二郎，和田昇，田畑要一郎：電子衝突によるオゾン分解効果，第6回日本オゾン協会年次研究講演会，19（1997）
- (3) 葛本昌樹，田畑要一郎，吉沢憲治，八木重典：100μm級極短ギャップ下における無声放電による高濃度オゾン発生，電学論A，116，121～126（1996）
- (4) 和田昇，太田幸治，葛本昌樹：大口径電極による大容量・高濃度オゾン発生器の開発，第7回日本オゾン協会年次研究講演会，13（1998）
- (5) Sanui, H.: Ozone Concentration System, 13th Ozone World Congress, 921～926（1997）
- (6) 太田幸治，和田昇，葛本昌樹：極短ギャップ放電を用いた高圧力高濃度オゾン発生，第7回日本オゾン協会年次研究講演会，11（1998）



# 普及する浄水オゾン高度処理システム

小沢建樹\* 広辻淳二\*\*\*  
田村哲也\* 山口昌二+  
久川義隆\*\*

## 要旨

オゾンはその強力な酸化力による優れた水浄化能力と環境に対する相対的に高い安全性から広い分野で利用され、応用分野は更に広まるものと期待されている。

浄水処理分野では、かび臭問題やトリハロメタンなど消毒副生成物による健康上への懸念等から“安全でおいしい水”への関心が高まり、浄水オゾン高度処理システムが導入され、現在では建設中を含め40か所以上、合計計画処理水量は700万m<sup>3</sup>/日を超えるところまで普及してきた。

本稿では、普及する浄水オゾン高度処理システムの現状として次の三つの内容を紹介する。

### (1) オゾン高度処理システムにおける水質改善効果

実稼働している事業体から報告されている水質改善効果として、TOC(Total Organic Carbon)と総トリハロメタ

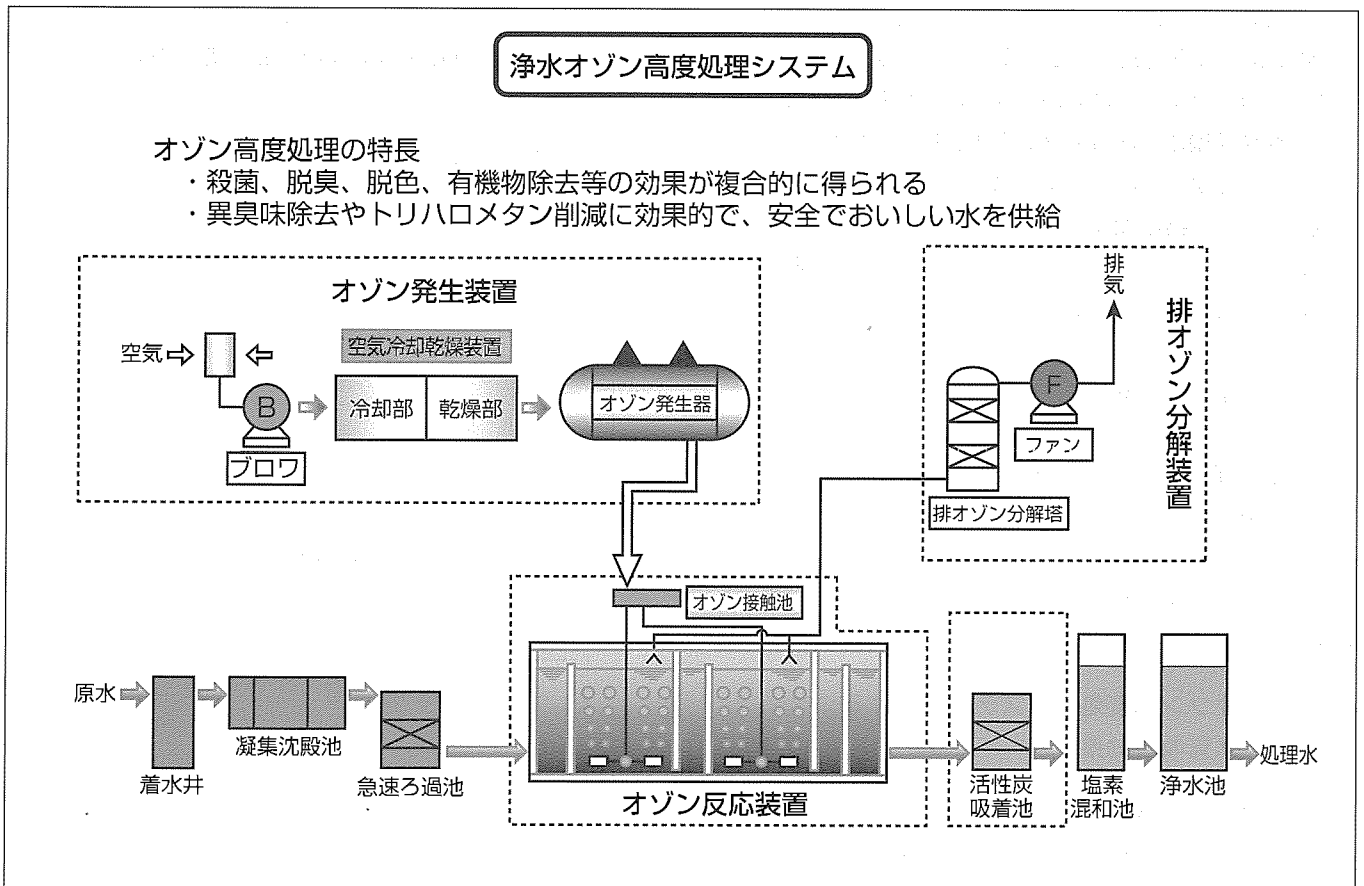
ンの例を紹介する。TOC低減率は約40%、総トリハロメタン低減率は約70%である。

### (2) クリプトスポリジウムに対するオゾン処理効果

クリプトスポリジウムが原因と見られる水道水による感染事例が発生しており、その対策としてオゾン消毒効果について紹介する。CT値(オゾン濃度と接触時間の積)3.9~30で99%、二酸化塩素との併用で99.9%不活化が可能である。

### (3) オゾンガス高濃度化による反応効率の向上

新しく開発した高濃度オゾナイザを浄水処理に適用した場合のオゾン吸収効率、オゾン反応効率についてシミュレーションによって検討した結果、水質が良い場合はオゾン吸収効率は約14%、反応効率は約3倍以上向上する。



## 浄水オゾン高度処理システム

浄水オゾン高度処理システムは、従来の浄水処理プロセスにオゾンと活性炭処理を付加したシステムで、砂ろ過水をオゾンによって処理し、脱臭、トリハロメタンの原因となる有機物の分解等を行った後、その処理水を更に活性炭で処理して、安全でおいしい水を供給するシステムである。

1. ま え が き

オゾンは、その強力な酸化力や殺菌力による優れた水浄化能力と環境に対する相対的に高い安全性から、上下水分野を始めとして、プール水、水族館・動物園の飼育用水の浄化、パルプ漂白、半導体洗浄プロセス等広い分野で利用されるようになっており、今後更にその応用分野は広まるものと期待されている。

浄水処理分野では、1970年代の初めから都市部を中心に水道水源の汚染が進むのに伴い、かび臭による異臭味が問題となり、オゾンと活性炭を組み合わせた浄水オゾン高度処理設備の導入が開始された。その後、地下水を水源とする場合の色度除去にも適用されるようになり、さらにトリハロメタン等消毒副生成物による健康上への懸念から“安全でおいしい水”への関心が高まり、'88年に創設された高度処理に対する補助金制度の創設、35年ぶりに改訂された水質基準等の影響もあり、'90年代に入って浄水オゾン高度処理設備を導入する浄水場が確実に増えている。

現在、淀川水系の主要浄水場を始め沖縄県、東京都など建設中を含めると40か所を超える事業者で浄水オゾン高度処理設備が導入され、その合計計画処理水量は700万 $\text{m}^3$ /日を超えるところまできている。

また、浄水オゾン高度処理システムの普及とともに、その主要構成機器であるオゾン発生装置についても、この特集の別稿で紹介するように、オゾン発生電力の低減、オゾンの高濃度化、装置のコンパクト化など著しい改良が進んでおり、更なる浄水オゾン高度処理システムの普及が期待される。

本稿では、このような現状を踏まえ、改めてオゾン高度処理の水質改善効果や、最近問題となっているクリプトスポリジウム等病原性微生物に対するオゾン処理効果を整理するとともに、オゾン発生装置の改良によって達成されたオゾンの高濃度化を有効に生かす最適システムの検討の第一歩として、オゾン反応に及ぼす影響をシミュレーションによって評価した結果を紹介する。

2. オゾン高度処理システムにおける水質改善効果

浄水オゾン高度処理システムを導入し実稼働している事業者が発表している報告から、代表的な水質改善効果の事例として、大阪府村野浄水場階層系高度浄水施設の処理効果<sup>(1)</sup>を紹介する。

図1に設備の処理フローを示す。このプロセスは、砂ろ過処理の後にオゾン処理と活性炭処理を行う“後オゾン処理プロセス”である。水質データは、通水か

ら約2年間の、高度浄水処理水と通常処理水(平面系の凝集沈殿+砂ろ過処理水)の過マンガン酸カリウム消費量、TOC及び総トリハロメタンについてまとめている。以下に、代表例として、TOCと総トリハロメタンの処理結果について紹介する。

(1) TOCの処理効果(図2)

TOCは、稼働後約3か月間は0.4 $\text{mg}/\ell$ 程度で安定していたが、以後漸次上昇し、約7か月後から1.0 $\text{mg}/\ell$ 程度の値で推移する傾向を示した。一方、通常処理水のTOCは、原水水質によって大きく変動し、'95年度の平均で1.6 $\text{mg}/\ell$ であった。高度浄水処理による低減効果は、稼働初期は約70%と高い効果が得られ、活性炭として処理性能が安定したと推定される'95年度の平均では約40%であ

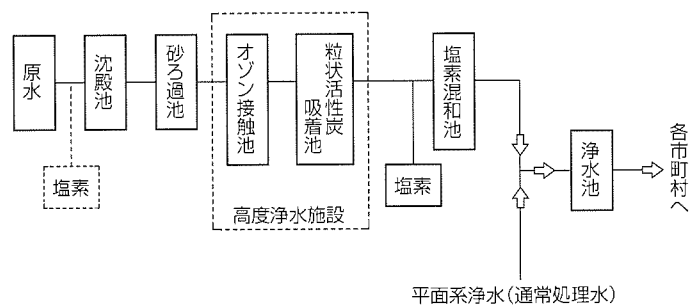


図1. 村野浄水場階層系高度浄水施設の処理フロー<sup>(1)</sup>

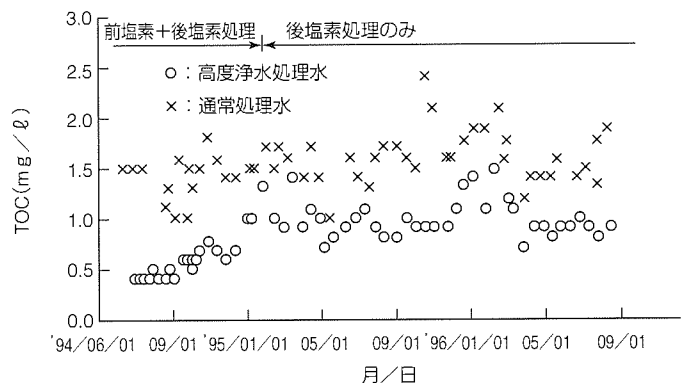


図2. TOCの推移<sup>(1)</sup>

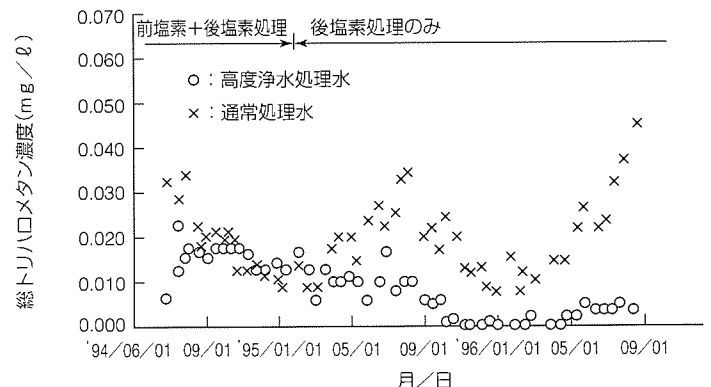


図3. 総トリハロメタン濃度の推移<sup>(1)</sup>

表 1. Comparison of Ozone Results for the Inactivation of Cryptosporidium Oocysts

Workers	Ozone Residual (C, mg/ℓ)	Contact Time (ℓ, mins)	Ct Value (mg·min/ℓ)	Temperature (°C)	Inactivation (%)	Analytical Method
Korich et al(1990)	1	5	5	25	90-99	Mouse
	1	10	10	25	>99	infectivity
HMSO(1990)	0.77	6	4.6	'Room'	>99	Mouse
	1.49	8	11.9		>99	infectivity
Finch and Black (1993)	0.5	18	9	7	>99	Mouse
	0.5	7.8	3.9	22	>99	infectivity
Parker et al(1993)	1	10	10	5	27.4	Stain
	3	10	30	5	18.2	
	5	10	50	5	38.8	
Hall et al(1994)	1	10	10	20	70	Stain
	3	10	30	20	>99	
	0.7	14	9.8	8 to 10	42	
	0.7	18	12.6		52	
	1.1	14	15.4		44	
	1.0	25	25.0		67	
	1.5	18	27.0		84	

り、十分な処理効果が出ている。

(2) トリハロメタンの処理効果(図 3)

総トリハロメタンは、前塩素処理から通常の処理フローである後塩素処理に切り換えてからは、ほぼ0.000mg/ℓとなっており、'95年度の平均値は、高度浄水処理水で0.005mg/ℓ、通常処理水で0.018 mg/ℓであり、高度浄水処理による総トリハロメタンの低減効果は約70%であった。これは水質基準値の0.1mg/ℓを十分クリアしている。

以上、長期間にわたる実施設での水質データから浄水オゾン高度処理の水質改善効果は十分証明されており、しかも通常処理水が原水水質の変動によって大きく変動するのに対し、浄水オゾン高度処理は安定した水質の水が供給されるのも大きな特長と言えよう。

3. クリプトスポリジウムに対するオゾン消毒効果

最近、塩素耐性を持つ原虫のクリプトスポリジウムが原因と見られる水道水による感染事例が、海外だけでなく国内でも発生し、大きな社会問題となっている。

現在、我が国における対策は厚生省の暫定指針によってろ過の適正運用による濁度管理が中心となっているが、米国やカナダでは凝集沈殿、砂ろ過による除去にオゾンによる不活化を加えた総合的なリスク管理が実施されつつある。

今後我が国においてもオゾン消毒が対策技術として採用されるようになると考えられ、その際、オゾン設備設計の基準となるCT値とクリプトスポリジウム不活化の関係データが重要となる。表 1 に J.R.Pressdee<sup>(2)</sup> がまとめたオゾンによるクリプトスポリジウム不活化のデータを、表 2

表 2. Summary of Disinfection Conditions required to give a Reduction in Viability of more than 90%

Disinfectant	Concentration at the end of contact period (mg/ℓ)	Contact time (mins)
Chlorine	c3,000	1,440
Chlorine Dioxide	1.8	10
	0.8	15
Hydrogen peroxide	327	10
Iodine	120	60

に他の消毒剤のデータを示す。表 1 から、オゾンは水温が 20~25℃ の範囲であれば 99% 不活化の CT 値は 3.9~30 (mg·min/ℓ) の範囲に入っているが、水温が 10℃ 以下ではデータのばらつきが大きく、不活化率も低くなる傾向が認められる。ばらつきの原因の一つとして、分解速度が速く実験中に変化するオゾン濃度の定義が統一されていないことが考えられ、今後オゾン濃度の定義を明確にし、更にデータを蓄積する必要がある。

表 2 からオゾン以外の消毒剤として有効と考えられるのは二酸化塩素であり、CT 値が 12~18 (mg·min/ℓ) で 90% 不活化されている。Lalith R.J.Liyanage<sup>(3)</sup> はオゾンと二酸化塩素の併用によるクリプトスポリジウムの消毒は、両消毒剤の相乗効果があり、EPA (米国環境保護庁) の二酸化塩素の基準をクリアして、クリプトスポリジウムオーシストを 3 log 低減できる可能性があるとしており、塩素消毒に代わる新しい消毒法として注目される。

4. オゾンガス高濃度化による反応効率の向上

4.1 オゾン反応モデルと検討条件

オゾン高度処理プロセスでは、オゾン反応槽における高い吸収効率と処理対象物質との反応効率の向上が大切である。オゾンガスの高濃度化が吸収効率及び反応効率に与える影響を、向流3段式オゾン反応槽のシミュレータを用いて計算を行い、従来の標準的なオゾンガス濃度である20 g/Nm<sup>3</sup>と新しく開発された40 g/Nm<sup>3</sup>についての比較検討を行った。シミュレータに用いたオゾン反応モデルを次式に示す。

$$V_L dC_L/dt = Q_L(C_{Li} - C_L) + K_{La}(C_L^* - C_L)V_L - kC_L V_L \quad (1)$$

$$V_G dC_G/dt = Q_G(C_{Gi} - C_G) + K_{La}(C_L^* - C_L)V_L \quad (2)$$

$$C_{Gout} = \{C_L - (C_L - KC_{Gi}) \exp(-K_{La}KtQ_L/Q_G)\} / K \quad (3)$$

ここで、 $C_L$ は水相のオゾン濃度(g/m<sup>3</sup>)、 $C_{Li}$ は流入水相のオゾン濃度(g/m<sup>3</sup>)、 $C_L^*$ は水相の飽和オゾン濃度(g/m<sup>3</sup>)、 $V_L$ は水相容積(m<sup>3</sup>)、 $Q_L$ は水相流量(m<sup>3</sup>/h)、 $t$ は水相の平均滞留時間(h)、 $C_G$ は気相の平均オゾン濃度(g/Nm<sup>3</sup>)、 $C_{Gi}$ は流入気相の平均オゾン濃度(g/Nm<sup>3</sup>)、 $C_{Gout}$ は気相の排オゾン濃度(g/Nm<sup>3</sup>)、 $V_G$ は気相容積(m<sup>3</sup>)、 $Q_G$ は気相流量(m<sup>3</sup>/h)、 $K$ は気液分配係数、 $K_{La}$ は総括物質移動容量係数(1/h)、 $k$ は擬一次反応速度定数(1/h)である。

オゾン反応槽は図4に示す向流3段式で各段同一形状とし、接触槽、う(迂)流槽の容積比は6:1、水深は6m、水の滞留時間は各段5分間、合計15分間とした。各段へのオゾンガス注入方法は各段均等注入、流入水質の影響については擬一次反応速度定数 $k$ を5(1/h)と20(1/h)の2ケースについて比較検討した。オゾンガスの平均気泡径は3mm、オゾン注入率は2.5mg/l、水温は25℃とした。

#### 4.2 シミュレーションによる 検討結果

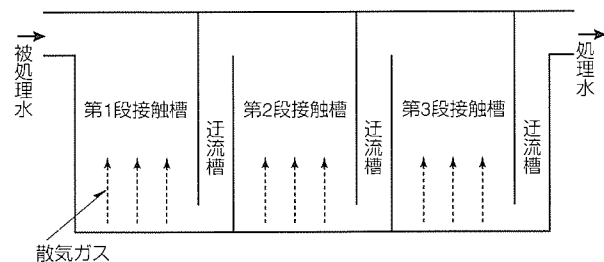


図4. 向流3段式オゾン反応槽

オゾンガス濃度がオゾン吸収効率及びオゾン反応によって消費されるオゾン量(オゾン反応効率)に及ぼす影響について検討した結果を表3、表4に示す。

表3から、オゾン吸収効率は、オゾンガス濃度が従来の低濃度モデル(20 g/Nm<sup>3</sup>)に比べて高濃度モデル(40 g/Nm<sup>3</sup>)の方が高いことが分かる。特に水質が良好なケースである $k=5$ の場合にその差は著しく、槽全体のオゾン吸収効率は77.6%から91.7%へと約14%向上している。一方、水質が比較的悪いケースである $k=20$ の場合、オゾン吸収効率は高濃度モデルの方が3%程度向上しているが、改善の効果は少ない。これは $k$ が大きいため低濃度でもオゾン吸収効率が92.7%と高く、改善の余地が少ないためである。

オゾンガスの高濃度化によってオゾン吸収効率が高くなるのは、オゾン濃度が高くなるほど飽和オゾン濃度 $C_L^*$ が大きくなり、オゾン溶解のドライビングフォースが大きくなるからと考えられる。

オゾン反応効率は反応によって消費したオゾン量(反応

表3. 低濃度モデルと高濃度モデルのオゾン吸収効率シミュレーション結果

モデル	項目	第1槽	第2槽	第3槽	
低濃度モデル	$k=5$ (1/h)	接触槽オゾン濃度(mg/l)	0.636	1.172	1.622
		迂流槽オゾン濃度(mg/l)	0.633	1.165	1.612
		排オゾン濃度(g/Nm <sup>3</sup> )	2.492	4.582	6.340
		オゾン吸収効率(%)	87.5	77.1	68.3
	全体 77.6				
	$k=20$ (1/h)	接触槽オゾン濃度(mg/l)	0.296	0.391	0.421
		迂流槽オゾン濃度(mg/l)	0.240	0.316	0.340
		排オゾン濃度(g/Nm <sup>3</sup> )	1.165	1.533	1.651
オゾン吸収効率(%)		94.2	92.3	91.7	
全体92.7					
高濃度モデル	$k=5$ (1/h)	接触槽オゾン濃度(mg/l)	0.533	0.887	1.123
		迂流槽オゾン濃度(mg/l)	0.503	0.838	1.060
		排オゾン濃度(g/Nm <sup>3</sup> )	2.091	3.474	4.392
		オゾン吸収効率(%)	94.8	91.3	89.0
	全体 91.7				
	$k=20$ (1/h)	接触槽オゾン濃度(mg/l)	0.308	0.409	0.442
		迂流槽オゾン濃度(mg/l)	0.249	0.330	0.357
		排オゾン濃度(g/Nm <sup>3</sup> )	1.210	1.604	1.733
オゾン吸収効率(%)		97.0	96.0	95.7	
全体 96.2					

表4. 低濃度モデルと高濃度モデルのオゾン反応効率  
シミュレーション結果

モデル	気相排オゾン比率(%)	水相排オゾン比率(%)	オゾン反応効率(%)	
低濃度モデル	$k=5$ (1/h)	22.4	63.4	14.2
	$k=20$ (1/h)	7.2	13.4	79.4
高濃度モデル	$k=5$ (1/h)	8.3	41.7	50.0
	$k=20$ (1/h)	3.8	14.0	82.2

注 気相及び排オゾン比率=(気相又は水相オゾン量/注入オゾン量)×100

オゾン量)を注入オゾン量で除し百分率表示したものであり、この値が大きいほど注入したオゾンが有効に水質の浄化に利用されていることになる。表4から、オゾン反応効率も高濃度モデルの方が高い値を示しており、特に $k=5$ の場合、高濃度モデルのオゾン反応効率は低濃度モデルの3倍以上となり、高濃度オゾンの効果が大きいことが分かる。 $k=20$ の場合は、オゾンを高濃度化してもオゾン反応効率はわずか数%増えたにすぎない。これは、低濃度モデルでも注入したオゾンの約80%が反応しており、オゾン吸収効率と同様に高濃度化による効果がでる余地が小さかったためと考えられる。

## 5. む す び

本稿では、本格的な普及段階に入った浄水オゾン高度処理の水質改善効果、現在社会問題になりつつあるクリプトスポリジウムに対するオゾン消毒の効果、及び新しく開発した高濃度型の新型オゾン発生装置を浄水オゾン処理システムに適用した場合のシミュレーションによる有効性評価について紹介した。

浄水分野において“安全でおいしい水”が追求される中で、病原性微生物や環境ホルモン等処理対象物質は更に増え、オゾンの役割も更に増大すると考えられる。当社は、水環境の更なる改善を目指してオゾン水処理技術の高度化に取り組み、社会的貢献を果たしたいと考えている。

## 参 考 文 献

- (1) 前床紀文, 服部和夫, 笹野肇樹, 中平健二, 日比達也, 築山俊彦, 河原洪三: 村野浄水場階層系高度浄水処理水の水質について — その2 —, 第40回日本水道協会関西地方支部研究発表会概要集, 33~36 (1996)
- (2) Pressdee, J.R., Hall, T., Carrington, E.: Practities of Disinfection for Control of Cryptosporidium and Giardia, Spec. Publ. R. Soc. Chem., No.168, 206~208 (1995)
- (3) Liyanage, L.R.J., Belosevic, G.R.M.: Sequential Disinfection of Cryptosporidium Parvum by Ozone and Chlorine Dioxide, Ozone Science & Engineering, 19, 409~423

河相好孝\* 安永 望\*  
 中崎幸一\* 田村哲也\*\*\*  
 M.Brahim\*\* 真田欣将\*\*\*

# オゾン利用による下水の消毒と水再生

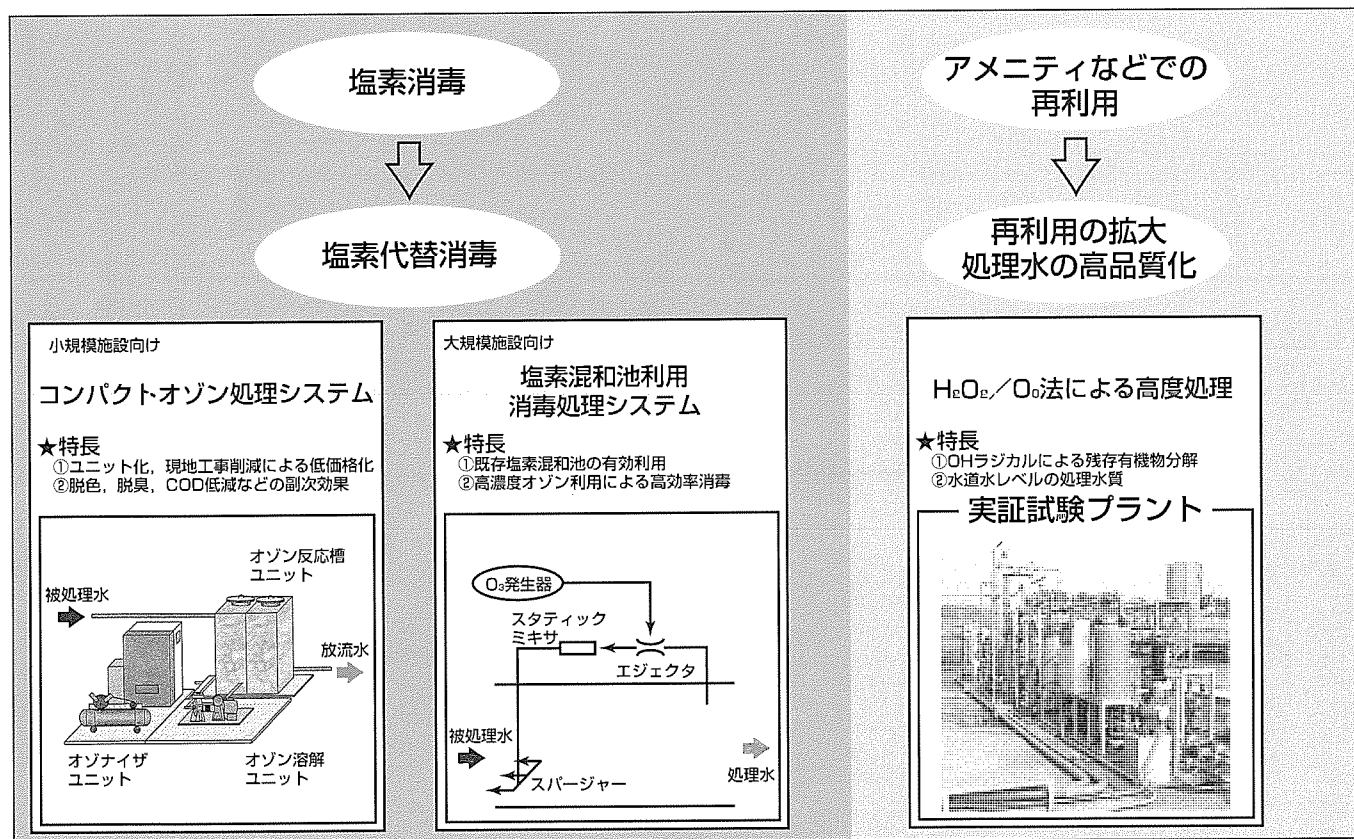
## 要 旨

オゾンは現在上水分野で主に用いられているが、今後は、下水分野でも広く普及すると予想される。現在消毒には塩素が用いられているが、残留塩素や生成する有機塩素化合物の健康影響が懸念される。日本下水道事業団では、この抑制対策としてオゾン消毒などの技術評価を行い、これらの計画・設計を効率的に行うため消毒施設の技術基準の作成に着手している。一方、下水処理水を高度処理して再利用することも重要になると考えられる。現在下水処理水はアメニティ分野などで再利用されているが、その利用率は1%にも満たない。このため、建設省や国土庁では、河川の水量維持や水資源確保のため、下水高度処理水の河川還流構想を提唱している。

このような状況を踏まえ、三菱電機は下水分野を対象としたオゾン処理技術の革新に取り組んでおり、本稿ではその中から最新のオゾン消毒技術と再利用技術を紹介する。

消毒システムでは、小規模施設向けにコンパクトオゾン処理システムを製品化した。一方、大規模施設向けには、従来のオゾン消毒システムに加え、既存の塩素混和池を利用するシステムの研究開発を行っている。このシステムは、水深の浅い既存混和池でオゾン溶解の高効率化と混合反応を最適化することによって少量のオゾンで消毒できる。

再利用システムでは、過酸化水素添加オゾン処理法を用いた高度処理システムを開発している。このシステムでは、オゾン注入率30mg/ℓで水道水質基準の安全性の高い再生水を得ることができる。



## 下水の塩素代替消毒と再生処理

下水の塩素代替消毒として、小規模施設向けのコンパクトオゾン処理システムを製品化した。大規模施設向けには、従来の多段反応槽による消毒システムに加え、既存塩素混和池を流用したシステムを開発中である。また、再利用システムについても、従来のアメニティ用オゾン処理設備に加え、過酸化水素添加オゾン処理法によって更に高品質の再生水を得るシステムを開発している。

## 1. ま え が き

現在、下水処理分野のオゾン処理は、下水処理の最終段において着色下水の脱色処理や脱臭・殺菌などに有効な手段として利用されている。また、中水道やアメニティ、せせらぎなどの修景・親水用水設備にも利用されている。このように、現在の下水分野のオゾン処理は、アメニティ等の小規模設備か又は着色下水のような特殊な用途に限定されている。しかし今後は、上水分野と同様に、下水分野でもオゾン処理が広く普及すると予想される。

現在消毒には塩素が用いられているが、残留塩素による放流水域の生態系への影響や、塩素と処理水中の残存有機物が反応して生成する有機塩素化合物の健康への影響が懸念される。日本下水道事業団では、これらの抑制対策として紫外線消毒とともにオゾン消毒の技術評価を行い、平成10年度から、これらの計画・設計を効率的に行うため、消毒施設の技術基準の作成に着手している<sup>1)</sup>。このような状況から、今後塩素代替消毒技術は、下水道事業の柱の一つとなっていくことが期待される。

一方、下水処理水の一部は高度処理されアメニティ分野で再利用されており、オゾンはその一翼を担っている。しかしながら、現在の再利用率は1%にも満たない。慢性的な水不足を解消するため、建設省<sup>2)</sup>や国土庁<sup>3)</sup>では、都市の水循環構想として、下水処理水を超高度処理し河川に還流する構想を提唱している。このため、将来的には、下水処理水を超高度処理して清浄な水に再生する技術が重要になると考えられる。

当社ではこのような状況を踏まえ、下水分野を対象としたオゾン処理技術の革新に取り組んでいる。

本稿では、その中から塩素代替消毒として小規模設備向

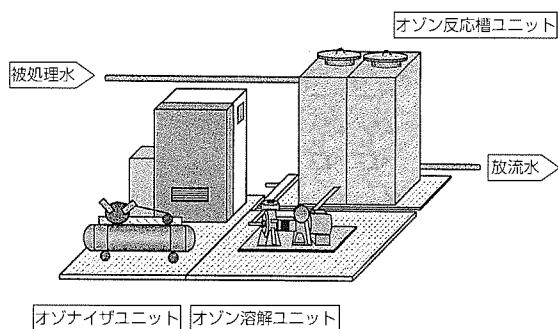


図1. コンパクトオゾン処理システムの概念図

表1. 処理方法による除去対象物質の処理効果

	消毒	脱色	脱臭	COD低減	界面活性剤除去
オゾン	◎	◎	◎	○	○
塩素	◎	×	×	×	×
紫外線	◎	×	×	×	×

けに製品化したコンパクトオゾン処理システム、及び研究開発中の既存塩素混和池を利用する消毒システムの概要を紹介する。さらに、下水処理水をより高品質な水に再生する技術として、過酸化水素添加オゾン処理法による水の高度再利用技術についても紹介する。

## 2. 下水消毒処理システム

### 2.1 小規模設備向けコンパクトオゾン処理システム

小規模下水の消毒処理、アメニティ、簡易水道、ビル中水道、農業排水処理、工業排水処理などを対象に、200～2,500m<sup>3</sup>/日規模のコンパクトオゾン処理システムを製品化した。図1に示すように、このシステムは、オゾンナイザユニット、オゾン溶解ユニット、オゾン反応ユニットで構成されている。このシステムは、特に各機器を一体化させてユニット化し、現地での設置工事を最小限に抑えたところに特長がある。

表1に示すように、オゾン処理は、塩素処理法や紫外線処理法とは異なり、消毒のみならず脱色、脱臭、COD低減、界面活性剤除去など、処理水質が向上するという副次的な効果がある。このため、このシステムは、下水処理水の放流先の環境保全、又は処理水質向上が必要な処理場に対しては特に有効である。

### 2.2 既存塩素混和池を流用したオゾン消毒システム

一般に下水処理水のオゾン処理は、多段接触型のオゾン反応槽においてオゾンの微細気泡を底部から吹き込んで被処理水と接触させている。オゾンの溶解・吸収を効率良く行うためには水深5m程度の接触槽が必要であり、多段接触型オゾン反応槽を新たに建設する必要がある。もし、オゾン溶解を高効率化し、例えば水深3m以下の既存塩素混和池に若干の改造を施すだけでオゾン反応槽として流用できれば、そのメリットは大きいと考えられる。このため、この観点から既存塩素混和池を活用したオゾン消毒システムについて研究開発を行っている。

#### (1) システムフローと特長

図2にオゾン消毒システムの概念図を示す。混和池から下水処理水の一部をポンプで採取し、高効率・高濃度オゾンナイザによって生成された高濃度オゾンをエジェクタから注入し、気液接触させる。さらに、スタティックミキサに

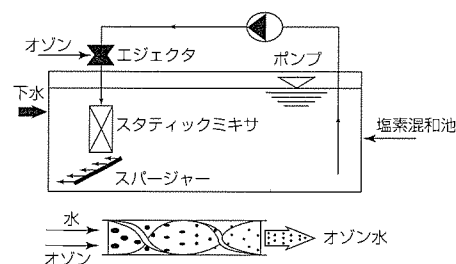


図2. 既存塩素混和池に設けられた消毒システム

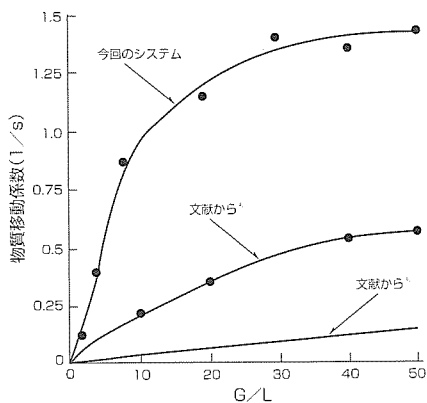


図3. 物質移動係数とG/Lの関係

よってオゾン効率良く水と混合させ、溶解効率の向上を図っている。このようにして得たオゾン溶解水を混和池内で水中へ噴出させ、残りの被処理水と混合させて消毒する。

この消毒システムでは、①既存塩素混和池の利用によって接触槽の建設が不要になる、②高濃度オゾンの利用によってオゾン発生設備が小型化でき、省スペース化が図れる。また、③エジェクタとスタティックミキサによってオゾンを高効率に溶解できるほか、これらの機器には駆動部分がなく故障も少ない、などの特長がある。

(2) オゾン溶解の高効率化

エジェクタとスタティックミキサの組合せによってオゾン効率良く水中へ溶解することができ、短時間に水中の溶存オゾン濃度を高めることができる。図3は物質移動係数とG/L(ガス/液比)の関係を示したものであるが、今回検討したエジェクタとスタティックミキサの組合せは文献値<sup>(4)(5)</sup>と比較して非常に溶解速度が速くなっている。

(3) 混和池内の流動解析

塩素混和池において効率的な消毒処理を行うためには、オゾン溶解水と被処理水の混合状態を最適化する必要がある。このため、大腸菌、有機物(COD)、SS(Suspended Solids)が共存する基本反応モデル、及びCFD(Computer Fluid Dynamics)を用いたシミュレーション技術を開発して、混和池内の消毒状態を解析した。すなわち、処理規模は10万 $m^3$ /日、塩素混和池形状は水深3m、水路幅2.4m、水路長さ150mとし、被処理水水質を大腸菌1万個/ $ml$ 、COD及びSS濃度をそれぞれ10 $mg/l$ と設定した。この条件でオゾン注入率などの操作条件を変えて消毒状態をシミュレーションした。

図4は、オゾン消毒時の混和池内大腸菌群数の分布状態をシミュレーションした一例である。このシミュレーション解析では、塩素混和池内の流動及び反応状況を細かくシミュレーションすることができ、さらに塩素混和池の流れに沿って大腸菌群数の変化を一目で把握できる。このように、CFDによるシミュレーション技術は、今回のような流動を伴う系での反応解析に極めて有効である。

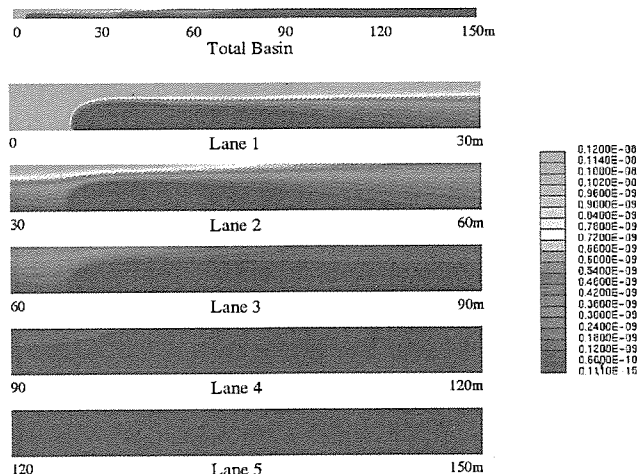


図4. 混和池内の消毒状態例

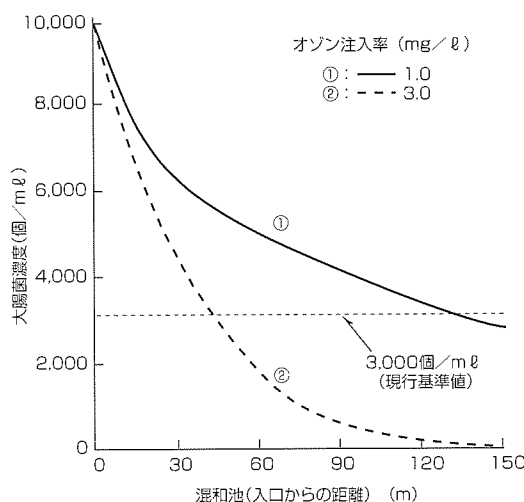


図5. オゾン注入条件による大腸菌数の変化

図5は塩素混和池内の大腸菌群数の変化をシミュレーションした結果である。図に示すように、このシステムによれば、比較的低いオゾン注入率(1~3 $mg/l$ )でも十分に消毒できる可能性がある。

従来の水深5m程度の反応槽を用いるオゾン消毒では、オゾン注入率5 $mg/l$ 程度が必要といわれている。これに対し、今回のシステムは、オゾンの高効率な溶解方法を採用し、さらに流動と反応を考慮したCFDシミュレーションを活用することにより、水深3m以下の既存塩素混和池でも少ないオゾン量で効率良く消毒処理が行える可能性があることが分かった。また、処理コストについても、オゾン注入率の低減などにより、従来のオゾン消毒と比較してかなり安価になると予想している。今後は、実下水を用いた実証試験を行い、消毒性能の確認や処理コストの詳細検討が必要と考える。

3. 下水の再利用システム

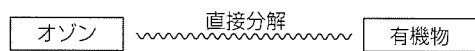
近年、下水の再利用分野において、オゾン処理は、中水



道のほか修景・親水用水など、ゆとりある自然環境の創造を目的としたアメニティ分野に採用されている。当社では信頼性の高い処理システムを構築しており、この分野において20件以上の実績がある。アメニティ分野のニーズは今後ますます増加するものと予想され、引き続きシステムの

高性能化・低コスト化を図り、これに貢献していく予定である。また、水不足は慢性化の方向にあるので、下水処理水はより高度に浄化され、現在よりも広い用途に再利用されるようになるであろう。これに対応する高度処理技術として、過酸化水素添加オゾン処理法を用いた水再生利用技術を以下に紹介する。

●従来のオゾン処理



●過酸化水素添加オゾン処理



図6. 過酸化水素添加オゾン処理法の原理

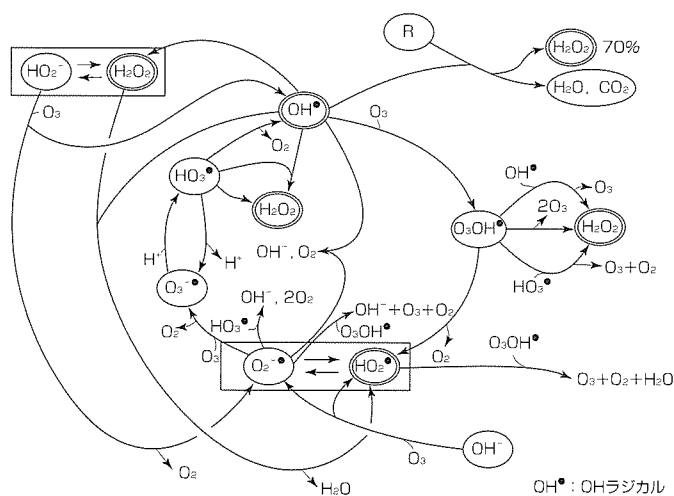


図7. 過酸化水素添加オゾン処理反応機構

3.1 過酸化水素添加オゾン処理法の概要

過酸化水素添加オゾン処理法は、オゾン処理法のようにオゾンが直接有機物と反応するのではなく、図6に示すようにオゾンと過酸化水素を反応させて、オゾンよりも酸化力の強いOHラジカルを生成させ、これによって下水処理水中に残存する難分解性有機物を分解処理するものである。この処理法によれば、原理的にはほとんどの有機物を炭酸ガスと水に完全分解できるため、難分解性物質除去法として期待されている。しかし、酸化力が極めて強く処理対象以外の物質とも反応するので、効率的な処理を行うには前処理・後処理とのシステム化が重要である。

また、図7に示すように、この処理法には、オゾンと過酸化水素の反応で生成したOHラジカルが更にオゾンと反応し、HO<sub>2</sub>ラジカルを経て再度OHラジカルが生成するという連鎖反応系が存在する。この連鎖反応系においてオゾンが無効消費され操作条件によって反応効率が大きく変わるため、この最適化も重要である。そこで、過酸化水素添加オゾン処理の反応シミュレーション技術を開発し、これを用いて反応解析を行い、処理効率を向上させた。

3.2 実証試験プラントによる実験

(1) 処理フロー

実下水処理場内に3m<sup>3</sup>/h規模の実験プラントを設置し、2年間の実証試験を行った。プラントの処理フローを図8に示す。競合反応による反応効率の低下を避けるため、前

処理として中空糸膜ろ過処理装置でSS成分などを除去した。この被処理水に高濃度オゾンを導入し、オゾン単独で処理可能な易分解性有機物を処理した後、残存する難分解性有機物を過酸化水素添加オゾン処理法で処理した。さらに後処理として活性炭塔を設け、残留過酸化水素、溶存オゾン及び反応生成物などを除去した。

(2) 有機物除去効果

図9に、過酸化水素を10~15mg/l添加した場合のオゾン注入率とTOC除去量(ΔTOC)の関係を示す。オゾン注入率を30mg/l以上にしても、除去される有機物量は余り増加しなかった。これは、オ

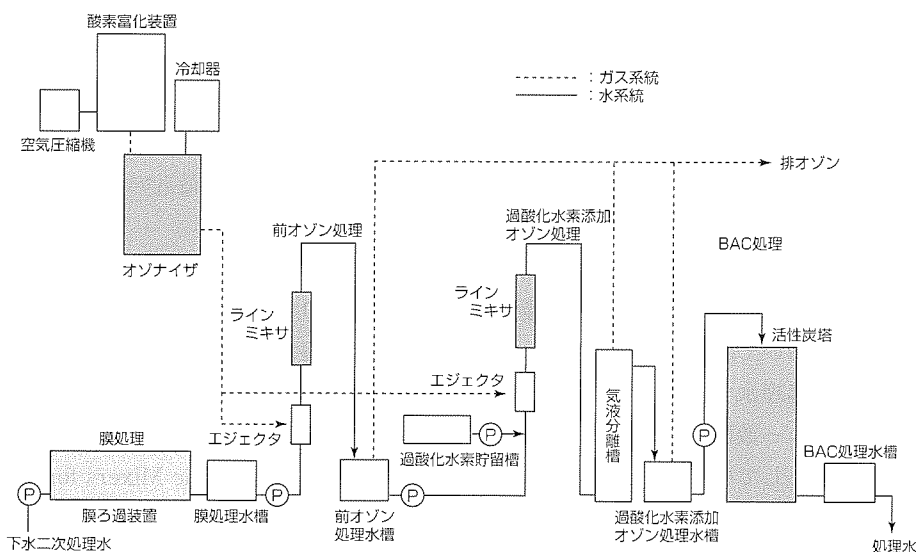


図8. 実証試験プラントの処理システムフロー

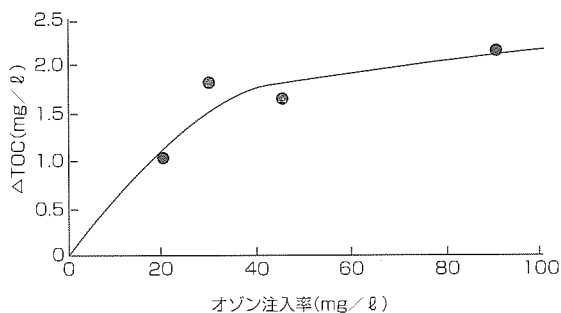


図9. オゾン注入率とTOC除去量の関係

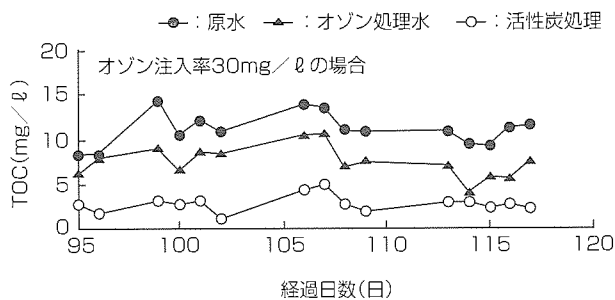


図10. TOCの経日変化(オゾン注入率30mg/lの場合)

ゾン注入率が大いいと前に述べた連鎖反応系で無効消費されるオゾン量が増加し、反応効率が低下するためである。また、30mg/l以下の注入率では、OHラジカルの生成量が少なく、除去される有機物が減少するため、処理効果が小さくなった。このことから、有機物を効率良く除去できるオゾン注入率は30mg/l程度と考えられた。

図10に、オゾン注入率が30mg/lの場合のTOC濃度の経日変化を示した。期間中、原水(下水二次処理水)TOCは8~15mg/lの範囲にあり、オゾン処理及び過酸化水素添加オゾン処理によって4~7mg/l程度まで処理された。さらに、活性炭で1~3mg/lまで低減され、有機物の少ない良好な処理水を得ることができた。この処理水質は、工業・農業・水産業などの分野で使用の際に要求される基準有機物濃度と同等程度であり、今後の用途拡大が期待できる。

(3) 処理水水質、安全性とコスト

実証プラントの処理水について、飲料水の水質基準項目の分析、及びその処理水の安全性を確認するための変異原性試験(Ames試験)や藻類増殖阻害試験などを行った。その結果、実証プラントの処理水は水道水質基準レベルまで改善されていることが判明した。また、変異原性試験結果については、一例を表2に示したように、原水において陽性を示す場合があったが、オゾン処理水、活性炭処理水ではすべて陰性であった。また、復帰突然変異コロニー数は原水に比べて減少していることから、安全性が向上していることを確認できた。藻類増殖阻害試験においても、処理水は過剰に加えても藻類の増殖に対して影響が全く認められず、原水に比べて藻類増殖に影響を与えていないことか

表2. 変異原性試験結果の一例

S9の有無	試験株と判定	復帰突然変異コロニー数(コロニー数/プレート)		
		原水	オゾン処理水	活性炭処理水
-S9	TA100	162	105	93
	判定	陰性(184)	陰性(182)	陰性(186)
	TA98	45	24	26
	判定	陽性(40)	陰性(42)	陰性(42)
+S9	TA100	175	105	119
	判定	陰性(208)	陰性(206)	陰性(206)
	TA98	54	37	37
	判定	陰性(52)	陰性(56)	陰性(54)

陽性判定基準：復帰突然変異コロニー数が溶媒対象の2倍( )内に示された数値)以上で、かつ被検物質の用量に依存性が認められた場合

ら毒性はないと判断できた。さらに魚の飼育実験でも、200日間以上の長期間にわたって死亡や病気の発生などの状態変化は認められなかった。

またコスト試算を行った結果、試算値は工業用水料金よりも若干高くなった。しかし、水道水質基準レベルの処理水質が得られ、しかも安全性が高いことを考慮すると経済的に妥当と考えられた。

4. むすび

当社では、下水分野を対象としたオゾン処理技術の革新に取り組んでおり、本稿では、これらの中から小規模施設向けのコンパクトオゾン処理システム、既存の塩素混和池を利用したオゾン消毒システム、及び過酸化水素添加オゾン処理法による水再生利用技術について紹介した。これらは、塩素代替消毒や再利用のための高度処理に対応する技術であり、今後ますます重要になると考えられる。

日本下水道事業団での塩素代替消毒の取組や建設省などの都市の水循環構想を見れば分かるように、下水分野におけるオゾン処理を取り巻く状況は確実に変化する兆しを見せている。今後、下水分野においてオゾン高度処理の更なる高効率化・高性能化を実現し、これにこたえたいと考えている。

参考文献

- (1) 日本下水道事業団技術評価委員会：最近の消毒技術の評価に関する報告書 (1997-3)
- (2) 日本経済新聞 (1997-8-19など)
- (3) 日本経済新聞 (1998-2-10)
- (4) 財団法人エンジニアリング振興協会：平成7年度排水の再生利用のための高度水処理技術の開発 実証試験報告書, ENAA1995-DP1 (1996)
- (5) Martin, N., Galey, C.: Use of Static Mixers for Oxidation and Disinfection by Ozone, IOA Conference; Ozonation for Drinking Water Treatment, Pasadena, USA (1992)

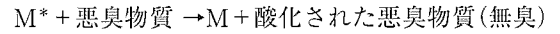
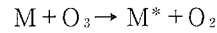
# 乾式オゾン脱臭システム

松永直利\*  
本多敏一\*

典型的な感覚公害である悪臭公害の場合、処理前に比べて、処理後の臭気が1/100~1/1,000にまで低減されないと臭覚的にその効果が認知されないという問題がある。

脱臭へのオゾンの初歩的な利用法としてマスキング法が使われたことがあるが、臭気成分が削減できないだけでなく、排気ガス中に含まれるオゾンが二次公害を引き起こすのみであった。これに対して本稿で紹介する乾式オゾン脱臭法は、オゾンの酸化力を効果的に引き出すため脱臭触媒と組み合わせしており、長期にわたり高度の安定した脱臭効果が得られるものである。

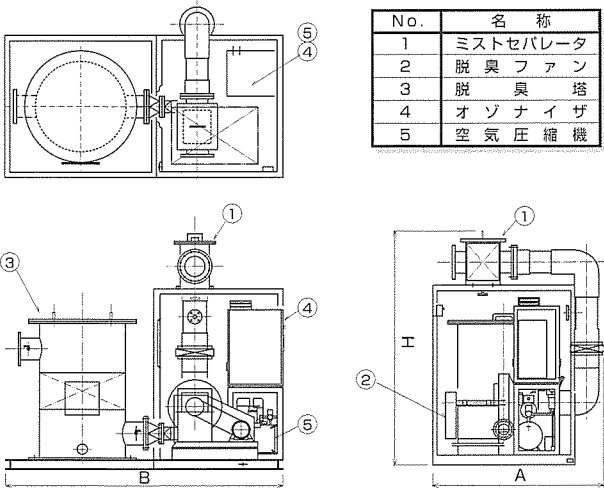
脱臭触媒を併用した場合、オゾンによる酸化脱臭反応は次のごとく表すことができる。



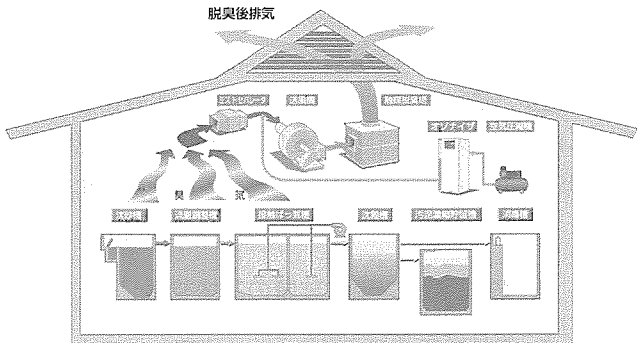
M：脱臭触媒，M\*：脱臭触媒が活性化された状態  
ここで、触媒Mは、繰り返し脱臭反応に寄与する。

この方式による適用例として、下水処理場等へ納入した実機での脱臭性能測定結果により、長期にわたり高度の脱臭効果が得られることを紹介した。

また、近年、建設件数の多い農業集落排水処理場向けとして、シリーズ化していたMK型シリーズを大幅に見直し新たにシリーズ化したコンパクト一体型乾式オゾン脱臭装置(下記)についても紹介した。



No.	名称
1	ミストセパレータ
2	脱臭ファン
3	脱臭塔
4	オゾナイザ
5	空気圧縮機



**コンパクト一体型乾式オゾン脱臭装置仕様一覧**

型名	MK-035-A	MK-050-A	MK-075-A	MK-110-A	MK-160-A	MK-240-A
脱臭風量	3.5m³/min	5.0m³/min	7.5m³/min	11m³/min	16m³/min	24m³/min
消費電力	0.6kW	0.6kW	0.6kW	1.0kW	1.0kW	1.8kW
寸法	A	1.50m	1.55m	1.70m	1.70m	1.85m
	B	2.30m	2.45m	2.60m	2.75m	2.95m
	H	2.20m	2.25m	2.30m	2.30m	2.40m
質量	490kg	530kg	570kg	620kg	650kg	720kg

**乾式オゾン脱臭設備の脱臭性能測定例**

	設計基準		分析結果		
	原臭	処理臭	原臭	処理臭	
臭気濃度	—	—	550	41	
機械分析値 ppm	アンモニア	1.0	0.5	0.2	
	硫化水素	0.2	0.006	0.042	0.0020
	メチルメルカプタン	0.01	0.0007	0.0087	<0.0001
	硫化メチル	0.2	0.002	0.0023	<0.0001
	二硫化メチル	0.1	0.003	<0.0003	<0.0003
	トリメチルアミン	0.07	0.001	<0.0001	<0.0001

## 乾式オゾン脱臭システム

まず臭気ガス中の液滴(ミスト)をミストセパレータで除去し、次いで、必要量のオゾンを臭気ガスに混合した後、脱臭塔へ導入する。脱臭塔内でオゾンと触媒の相乗作用によって種々な臭気を酸化脱臭処理する。

1. ま え が き

悪臭防止法が1972年に施行されて以来四半世紀が既に過ぎ悪臭公害もかなり改善されてはきているが、1996年度の悪臭苦情は全国で11,942件であり、未だに数多くの苦情<sup>1)</sup>が寄せられているとのことである。

悪臭苦情は典型的な感覚公害であり、式(1)のWeber-Fechnerの法則に示されるごとく、臭覚で感じる臭気強度は臭気成分濃度の対数値に比例する。このため、種々の悪臭成分が混合した複合臭の場合、個々の臭気成分が各々99～99.9%以上除去されないと臭覚的には脱臭されたと認知されないことになる。したがって、脱臭装置では高除去率が長期間維持されることが要求される。

$$I = K \log R + C \dots\dots\dots(1)$$

I：臭気強度      R：臭気成分濃度  
K：定数          C：定数

オゾンを用いた簡易な脱臭法としてオゾンの生臭いにお(臭)いを利用するマスキング法があるが、臭気成分がほとんど分解されないだけでなく、添加したオゾン臭が二次公害の原因になる可能性すらある。

一方、当社の乾式オゾン脱臭法は、これとは全く異なり、脱臭触媒を併用してオゾンの酸化力を有効に活用するもので、下水処理場等から排出される腐敗臭を長期間高効率で酸化脱臭できるよう考案されたものである。

本稿では、乾式オゾン脱臭法の基本的な脱臭原理、実設備に適用した場合の脱臭効果について紹介する。

また、近年、農村地域の生活環境の整備、水質保全等を目的とした農業集落排水(以下“農集排”という。)処理設備の建設が盛んであるが、それら用に新たにシリーズ化したコンパクト一体型乾式オゾン脱臭装置についても紹介する。

2. 乾式オゾン脱臭装置の基本構成

乾式オゾン脱臭装置のシステムフローを図1に示す。脱臭ファンで吸引された臭気ガスは、ミストセパレータを通過し、ここで臭気ガス中に同伴する液滴(ミスト)が除去される。その後、必要量のオゾンが臭気ガス中に注入され、

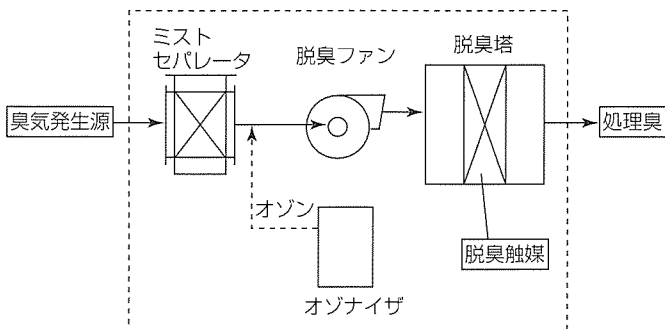
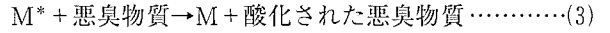
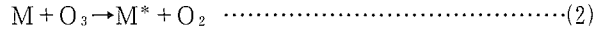


図1. 乾式オゾン脱臭装置のシステムフロー

混合され、次いで、脱臭触媒を充てん(填)した脱臭塔へ導入される。脱臭塔内では、オゾンと触媒の相乗作用で式(2)、式(3)に示す反応によって種々な臭気成分が酸化脱臭される。



ここで、Mは脱臭触媒、M\*は活性化された状態の脱臭触媒をそれぞれ示し、式(2)と式(3)の反応が同時並列的に進行することで脱臭が行われる。ここで、触媒Mは繰り返し脱臭反応に寄与する。また、この過程で余剰オゾンは脱臭触媒に接触して分解され、大気中へのオゾン漏えい(洩)は生じない。

3. 乾式オゾン脱臭装置の脱臭性能

表1は、某下水中継ポンプ場に納入した設備の脱臭効果を測定した結果である。この設備は、脱臭触媒寿命を1年として設計しているが、原臭が希薄であったため継続して使用し、2年半後に再度脱臭効果を確認したものである。各臭気成分の測定結果及び官能試験結果から、長期にわたり良好な脱臭効果が維持されていることが確認できた。

また、表2は原臭中の硫化水素が濃厚な場合に適用したもので、前段に硫化水素やメチルメルカプタンを粗取りできるよう脱硫炭塔を備えた事例である。原臭が設計値を遥かに超え非常に高濃度の硫化水素が流入した場合を除けば、長期にわたり良好な脱臭効果が得られている。

4. 農集排処理場向け脱臭装置

図2は農集排処理場の年度別採択件数の推移を示したもので、近年は毎年400件前後が全国で採択されている。この事業では、もともと脱臭設備を全く必要としない場所で建設するように指導されていたが、立地条件によっては民家や学校等の近くに建設されるケースがあり、今日、脱臭装置の設置が不可欠な場合が増加してきている。近年建設される農集排処理場では、付近住民の要望等もあり、半数程度は何らかの脱臭装置を付けているようである。

農集排処理場は浄化槽設備の発展形で、無人運転が基本であり、また、専門的な知識がなくても運転可能な設備が要求される。脱臭装置においても同様であり、取扱いが簡

表1. 乾式オゾン脱臭設備の脱臭性能測定例(その1)

	設計基準		分析結果	
	原臭	処理臭	原臭	処理臭
臭気濃度	—	—	550	41
アンモニア	1.0	0.5	0.2	<0.1
硫化水素	0.2	0.006	0.042	0.0020
メチルメルカプタン	0.01	0.0007	0.0087	<0.0001
硫化メチル	0.2	0.002	0.0023	<0.0001
二硫化メチル	0.1	0.003	<0.0003	<0.0003
トリメチルアミン	0.07	0.001	<0.0001	<0.0001

表 2. 乾式オゾン脱臭設備の脱臭性能測定例(その 2)

		アンモニア	硫化水素	メチルメルカプタン	硫化メチル	二硫化メチル	トリメチルアミン	臭気濃度	備 考
設計値	原 臭	0.13	3.5	0.14	0.0088	0.00193	0.0014	—	
	処理臭	0.6	0.006	0.0007	0.002	0.003	0.001	—	
1	原 臭	4.0	1.0	0.0076	0.004	0.0073	0.0015	1.300	しゅん(竣)工時 (200h稼働後)
	脱硫後	0.4	< 0.0005	0.0034	< 0.0005	0.0062	0.0002	2.3	
	処理臭	0.3	< 0.0005	0.002	0.0007	0.0013	< 0.0002	1.5	
2	原 臭	0.34	19.4	0.054	0.0073	0.0012	0.0061	5.620	稼働後 1,200h
	脱硫後	0.23	0.34	< 0.0005	0.0062	< 0.0005	—	133	
	処理臭	0.09	< 0.007	0.0007	0.0013	< 0.0005	0.0009	7.5	
3	原 臭	0.52	101	1.0	0.019	0.0016	0.072	98,000	稼働後 1,860h
	脱硫後	0.26	4.8	0.47	0.018	0.0013	0.030	3.100	
	処理臭	0.21	0.018	0.0052	0.0002	< 0.0001	0.010	41	
4	原 臭	0.48	6.6	0.15	0.31	< 0.082	—	—	稼働後 2,200h
	脱硫後	0.1	0.93	< 0.002	0.011	0.0038	—	—	
	処理臭	0.1	< 0.0008	< 0.0003	0.0005	< 0.0003	—	—	
5	原 臭	0.15	1.89	0.08	0.06	< 0.04	—	—	稼働後 2,580h
	脱硫後	< 0.1	1.88	0.017	0.037	< 0.0003	—	—	
	処理臭	< 0.1	0.0008	0.0003	0.0009	< 0.0003	—	—	
6	原 臭	0.2	0.97	0.091	0.0094	0.0024	0.032	1,000	稼働後 3,036h
	脱硫後	< 0.1	0.1	0.0011	0.0061	0.0079	0.030	170	
	処理臭	0.1	0.0066	< 0.0001	0.0003	0.0002	0.007	17	
7	原 臭	0.17	0.87	0.011	0.0078	0.0035	—	—	稼働後 5,120h 脱硫炭のみ入替え後 1,120h
	脱硫後	< 0.1	0.030	0.0008	0.0049	0.0003	—	—	
	処理臭	< 0.1	< 0.0005	0.0005	0.0020	0.0003	—	—	

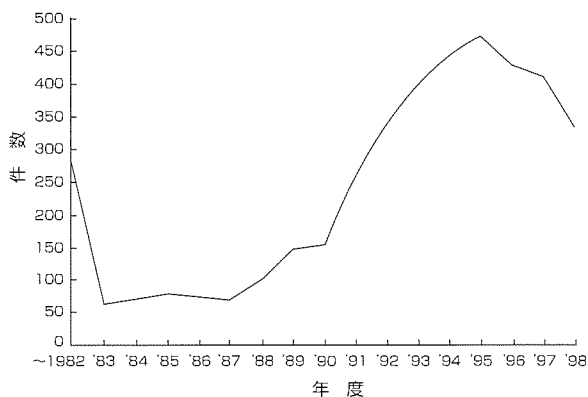


図 2. 年度別農集排の採択件数推移

表 3. 農業集落排水処理設備の対象人口別脱臭風量

脱臭風量	対象人口(人)								
	200	400	600	800	1,000	1,200	1,500	2,000	2,500
前処理室	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
スクリーン室	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
流量調整槽	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	2.0	2.0	2.0
嫌気性ろ床	3.0	3.0	3.0	3.0	6.0	6.0	6.0	9.0	12.0
接触ばっ気槽	2.0	2.0	3.0	3.0	5.0	5.0	6.0	8.0	10.0
沈殿槽	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
汚泥濃縮槽	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
汚泥貯留槽	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
脱臭風量合計 (m <sup>3</sup> /min)	11.0	11.0	12.0	12.0	17.0	17.0	19.0	24.0	29.0

単だけでなく、安全面や騒音・振動などの二次公害等の面からの配慮も重要な要素となっている。

農集排処理場の対象人口は数百人～3,000人規模で、排水処理システムは規模別にJARUS型<sup>2)</sup>の中から選択できるように配慮されている。その設計基準と日本下水事業団の脱臭設備の設計指針<sup>3)</sup>を参考として検討した結果、対象人口別に表3のような脱臭風量が得られた。これをグラフ化すると図3となる。

なお、実際に採択される対象人口は1,000人規模程度以下が大部分であり、15m<sup>3</sup>/min程度以下が脱臭装置の大勢を占めるものと考えられる。

### 5. コンパクト一体型乾式オゾン脱臭装置

当社では、既に下水処理場向けとして採用していた乾式オゾン脱臭装置の個々の機器を組み合わせで一体化し、上述の検討結果等を反映させて農集排用脱臭システムとしてシリーズ化していた。しかし、機器構成上では更なるコンパクト化の要請があり、また、工事上でも更に現地工事の簡易化が要求されるようになっていた。そこで、オゾン発生器の冷却を水冷から空冷方式に変更し、オゾナイザ本体を中心に大幅な見直しを行うとともに制御盤との一体化等を進めることで、図4に示す新型シリーズを完成させた。その結果、改良前に比べて設置面積で30～50%の削減が実現できた。

新シリーズは、現地工事は搬入据付け後一次側電源の接続と脱臭装置前後のダクト接続程度で完了し、改良前の機

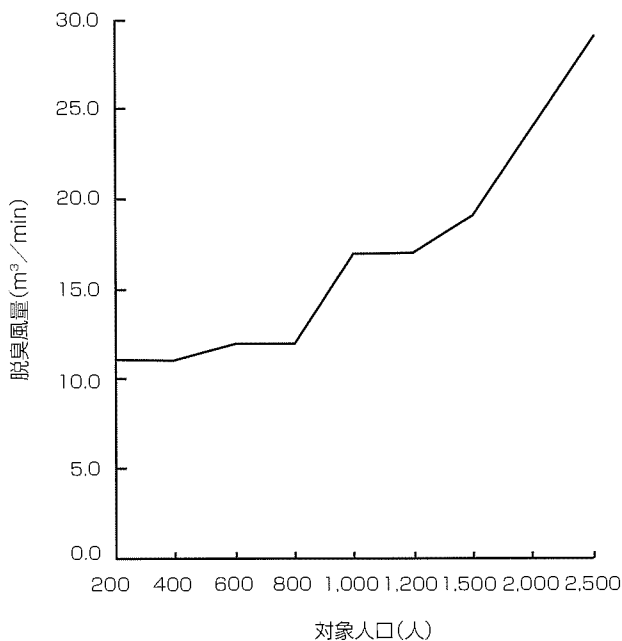


図3. JARUS(Ⅲ)型の対象人口別脱臭風量

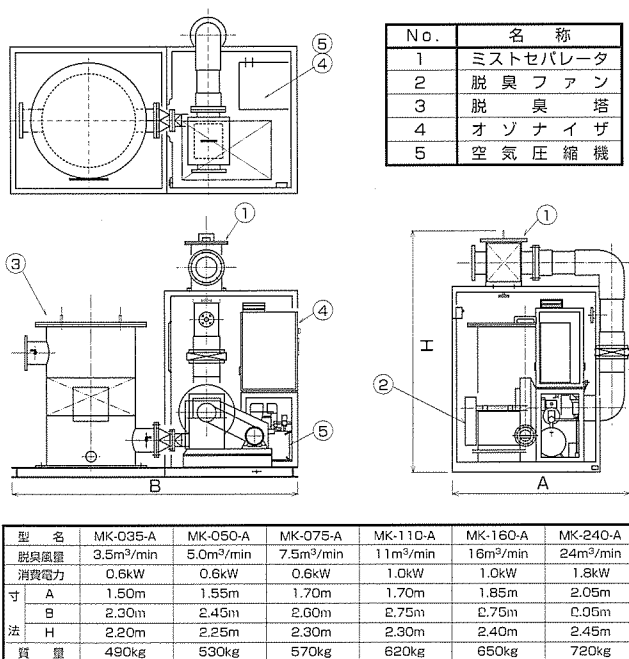


図4. コンパクト一体型乾式オゾン脱臭装置

種が必要であったオゾナイザのA種(第一種)接地がC種(第三種)で済む等, 工事内容も簡易化され, 工事費の大幅削減にも大きく寄与できるものである。

なお, このシリーズの臭気負荷は, 主として水処理系統が中心になるため表4に示した臭気条件を設定し, 脱臭触媒の取り替え頻度は年1回で設計している。

図5は, 対象人口1,040人の農集排処理場に納入したこのシリーズ第1号機目のMK-160-A型である。

なお, 上述では便宜上農集排設備用として紹介したが, 表4の臭気条件に該当する場合は, 他の臭気発生源へも適用可能である。

表4. コンパクト一体型乾式オゾン脱臭装置の臭気条件(ppm)

臭気成分	原臭	処理臭
アンモニア	1.0	0.6
硫化水素	0.2	0.006
メチルメルカプタン	0.01	0.0007
硫化メチル	0.2	0.002
二硫化メチル	0.1	0.003
トリメチルアミン	0.07	0.001
臭気強度	3.5*	2.0

注 \*アンモニアのみ臭気強度2.5相当濃度

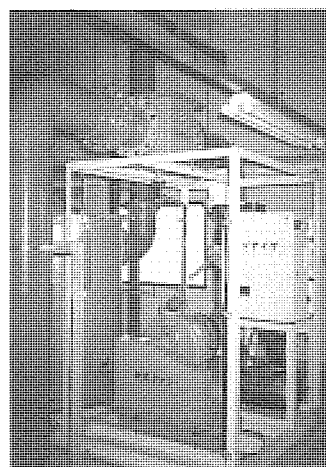


図5. コンパクト一体型乾式オゾン脱臭装置

## 6. むすび

乾式オゾン脱臭システムの基本的な脱臭原理と脱臭効果, さらにこれを農集排処理場に適用したコンパクト型乾式オゾン脱臭装置の新シリーズについて紹介した。

新シリーズは, 改良前に比べると設置面積で30~50%削減でき, 現地工事は電源とダクトの接続工事ではほぼ完了する取り扱いやすい設備となった。

新シリーズを採用すると農集排処理場の脱臭設備計画や現地工事等がより一層改善されるものと期待される。

今回のシリーズは, 希薄臭気用としてまとめたものであるが, 汚泥系統臭気に対するシリーズ化の要望もあり, 今後は, 濃厚臭気用の脱臭設備についてもコンパクト一体化を進める所存である。

## 参考文献

- (1) 平成8年度悪臭防止法施行状況調査について, 臭気の研究, 29, No.3, 56 (1998)
- (2) (株)日本農業集落排水協会編: JARUS型汚水処理施設の設計 (1996-10)
- (3) 日本下水道事業団編: 設計指針 機械設備編 (1998-4)
- (4) 松永直利, 江崎徳光: 下水・し尿処理場臭気の脱臭, 三菱電機技報, 67, No.2, 161~165 (1993)

# 吸着技術を利用したオゾン発生システム

谷村泰宏\* 白庄司直美+  
 広辻淳二\*\* 小川孝明++  
 宮一普\*\*\* 弓削裕+++

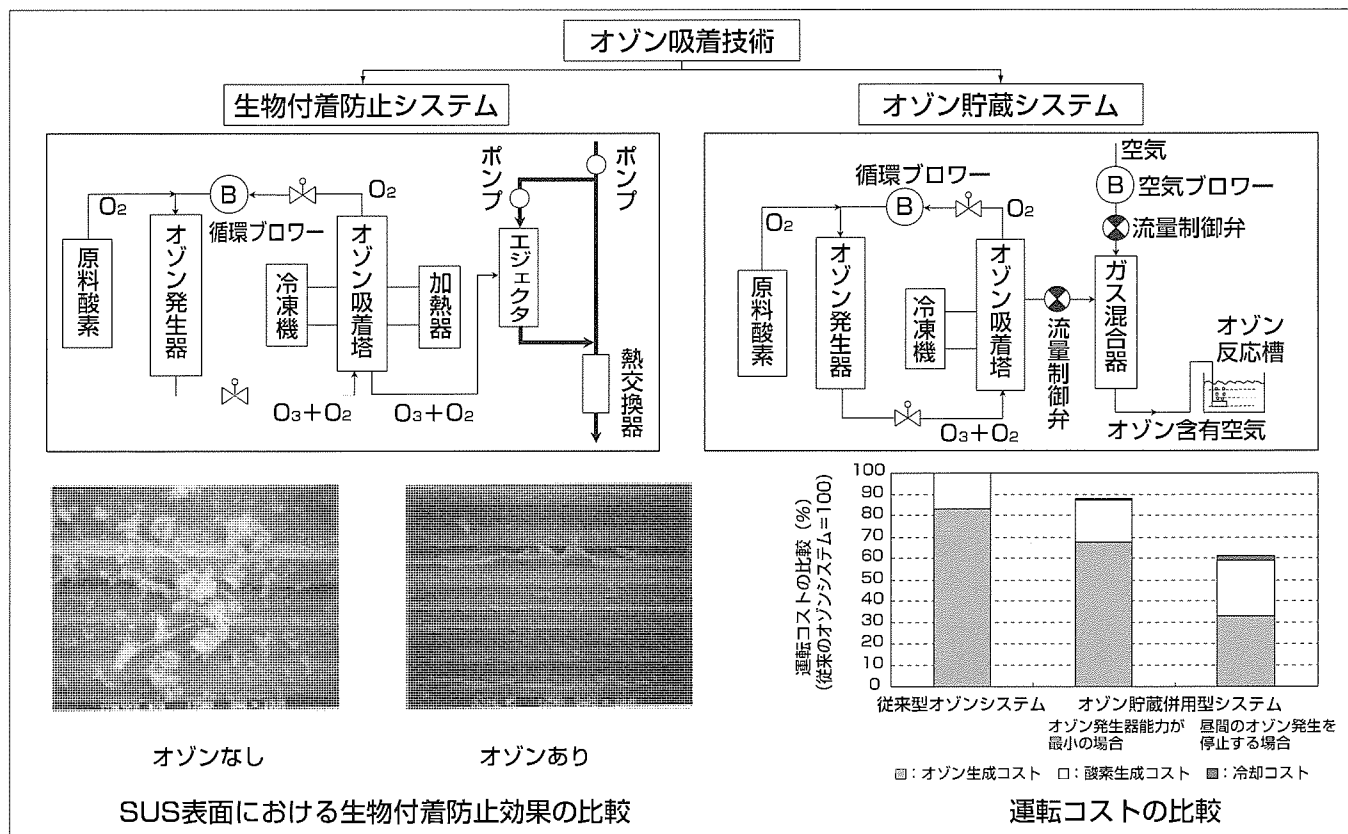
オゾンは、環境に優しい殺菌・酸化剤として、最近、水処理や化学プロセスなど多方面で利用されている。しかし、放電によるオゾン製造の場合、投入電力量当たりのオゾン生成効率は、酸素を原料ガスとする場合でも約10%と大変低い。このため、オゾン利用を更に拡大するためには、オゾン製造費用をいかに低減するかが重要課題である。そこで、筆者らは、幾つかある製造費用低減手段の中からオゾン吸着技術を利用する方法を選択し、研究開発を行っている。

本稿では、この研究開発による冷却水系の生物付着防止システム、及びオゾン貯蔵システムについて述べる。

生物付着防止システムは、小型のオゾン発生器を用いて、酸素リサイクル方式によってオゾンを発生させ、これを低

温シリカゲルに吸着貯蔵し、使用時に短時間に脱着させて、高濃度で冷却水系に注入することによって微生物スライムの熱交換器表面などへの付着を防止するシステムである。淡水系及び海水系で実験した結果、伝熱管材料の腐食を抑制しながら、熱交換器表面への生物付着を低減できることを明らかにした。

オゾン貯蔵システムは、安価な夜間電力を用いてオゾンを製造・貯蔵し、昼間のオゾンが大量に必要な時間帯に貯蔵したオゾンを使用することにより、オゾン製造コストを低減するシステムである。夜間の流量負荷が低い下水処理への適用について机上検討を行った結果、従来のオゾン処理方式よりも運転費用を低減できることが明らかになった。



## 吸着技術を利用したオゾン発生システム

酸素をリサイクル使用してオゾンを発生させ、これを低温シリカゲルに吸着貯蔵させるシステムである。高濃度のオゾンを短時間に脱着させたり、また一定流量及び一定濃度で脱着させたりすることができ、様々な用途で使用できる。

## 1. ま え が き

オゾンは反応後に速やかに分解して酸素に戻るため、環境に優しい殺菌・酸化剤として、今後下水高度処理などの水処理や化学プロセスなどにおいて、その利用はますます増大することが期待されている。

オゾンの製造法としては、大量製造や信頼性の観点から、放電を用いる方法が主流である。しかし、放電によるオゾン製造法の場合、投入電力当たりのオゾン生成効率は酸素を原料ガスとする場合でも10%程度とかなり低く<sup>(1)</sup>、オゾン製造コストが高価になる原因となっている。したがって、オゾン利用を更に拡大していくには、オゾン製造コストの低減が今後重要な課題になると考えられる。

筆者らは、オゾン製造コストを低減することを目的として、オゾン吸着技術を利用したオゾン応用システムの研究開発を行っている<sup>(2)</sup>。

本稿では、冷却水系の熱交換器などに付着して熱交換能力低下の原因となる生物膜の形成を防止する生物付着防止システム、及び安価な夜間電力を使用してオゾン製造コストを低減するオゾン貯蔵システムについて紹介する。

## 2. 冷却水系の生物付着防止システム

### 2.1 システムの概要

生物付着の防止は初期段階で付着するバクテリアを殺菌することによって達成できると考えられ、オゾンによる生物付着防止においても1日1回程度の間欠処理で十分である。このため、小型オゾン発生器でオゾンを生成し、これをシリカゲルに吸着しておき、1日1回程度これを短時間で取り出して冷却水系を殺菌・洗浄するというコンセプトでこのシステムを構築している。

図1に冷却水系の生物付着防止システムの構成を示す。このシステムは、オゾン発生器、シリカゲル吸着塔、冷凍機、加熱器、及びエジェクタを主な構成機器とし、吸着、加熱及び脱着工程の順で運転される。吸着工程では、原料酸素をオゾン発生器に供給し、無声放電によって生成したオゾン化酸素を吸着塔に導入する。吸着塔に充てん(填)し

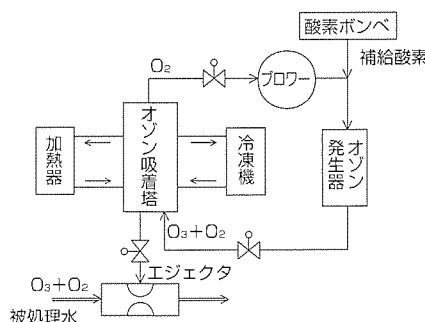


図1. 生物付着防止システムの構成

たシリカゲルを $-30\sim-40^{\circ}\text{C}$ に冷却し、オゾンを選択的に吸着する。吸着されなかった酸素は、循環ブロワーによってオゾン発生器に送り再利用する。加熱工程では、オゾン発生器、ブロワー及び冷凍機を停止し、吸着しているオゾンを短時間で脱着するためにシリカゲルを $0^{\circ}\text{C}$ 付近まで昇温する。脱着工程では、エジェクタポンプが駆動し、被処理水の一部を駆動水とするエジェクタによって吸着していたオゾンを減圧吸引し、同時に被処理水中にオゾンを溶解させる。

このシステムの特長は次のとおりである。

- (1) オゾン発生器は、従来のオゾン連続注入の場合の1/100程度に小さくなり、設備費用を低減できる。
- (2) オゾン注入量及び電力消費量は、従来の塩素注入法(1mg/lの連続注入)の場合に比べて、1/10に低減できる。

### 2.2 淡水系での生物付着防止実験<sup>(3)</sup>

淡水(湖水)を冷却水として使用する場合の生物付着防止効果を実証するために、オンタリオハイドロテクノロジー社(カナダ)と共同で約3か月にわたりこのシステムの評価実験を実施した。

#### (1) 実験装置及び方法

実験装置は、図2に示したように、オゾン処理系及びコントロール系で構成した。生物付着防止効果を調べるために、両系ともモデル熱交換器(容器:PVC, 伝熱管数:12本)、及び生物付着モニタリング箱(容器:アクリル)を設置し、それぞれ224 l/min, 20 l/minで通水した。生物付着モニタリング箱には、PVC板(12cm×12cm)、SUS片(1.27cm×5.08cm)、及びzebra mussels(巻貝の一種)の成員を入れた。オゾン処理系へのオゾン注入は1日2回、5分間とし、注入量は5g/回とした。

#### (2) 実験結果

表1は伝熱管表面に付着した細菌数を材質別に比較したものである。いずれの材質の場合もコントロール系に比べてオゾン処理系の細菌数は95%以上低減され、間欠オゾン処理による生物付着防止効果は非常に大きい。

生物モニタリング箱内のSUS片表面では、コントロール

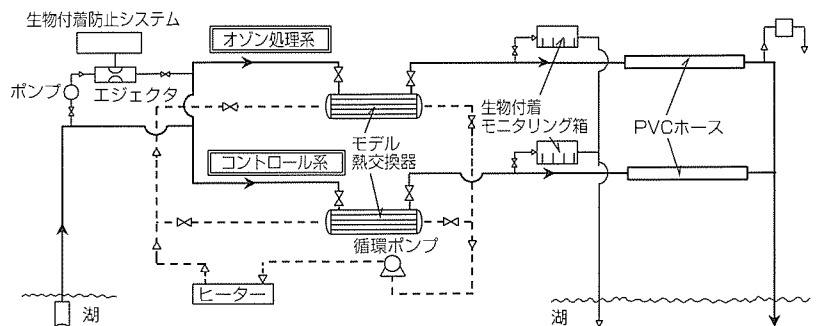


図2. 淡水系での実験システムの構成



系においていろいろな形状の細菌が繊維状の物質と絡まって付着したが、オゾン処理系では細菌の付着はほとんど認められず、表面付着菌数はコントロール系の約1/800であった。PVC板では、コントロール系に比べてオゾン処理系の方が付着物たい(堆)積量が少ないことが目視で確認できた。また、zebra musselsの質量はオゾン処理系の方がコントロール系よりも軽く、オゾンによって成育を阻害されていることが分かり、間欠オゾン処理は貝類などの大型生物の付着防止にも効果があることが分かった。

### 2.3 海水系での生物付着防止実験<sup>(4)</sup>

海水を冷却水として用いる場合については、国内で約5年間にわたり生物付着防止実験を実施した。海水系の場合、オゾンは海水中に含まれている臭素イオンと反応し、次亜臭素酸や臭素酸などのオキシダントが生成するので、オキシダント除去装置を付設することが必要になる。

#### (1) 実験装置及び方法

実験装置は、図3に示すように、オゾン処理系及びコントロール系で構成した。オゾン処理系では、オゾン注入後のオキシダント含有海水を貯留タンクに一時的に貯蔵し、活性炭を充填したオキシダント除去装置で約20時間をかけて残留オゾンとオキシダントを完全に分解除去し、海に戻すようにした。各系とも後述する4種類の材質のモデル熱交換器を直列に設置し、海水を20m<sup>3</sup>/minで通水した。なお、モデル熱交換器はAPブロンズ製、キューロニッケル

表1. 伝熱管表面への付着菌数の比較

伝熱管種類	好気性細菌数 (CFU/m <sup>2</sup> )		低減率 (%)
	コントロール	オゾン処理	
I-800 (No. 8800)	2.7 × 10 <sup>6</sup>	1.3 × 10 <sup>2</sup>	95.2
Sanicro-28 (No. 8028)	9.9 × 10 <sup>6</sup>	7.1 × 10 <sup>1</sup>	99.3
I-825 (No. 8825)	1.0 × 10 <sup>7</sup>	3.5 × 10 <sup>2</sup>	96.5
チタン管	2.6 × 10 <sup>6</sup>	9.1 × 10 <sup>1</sup>	96.5

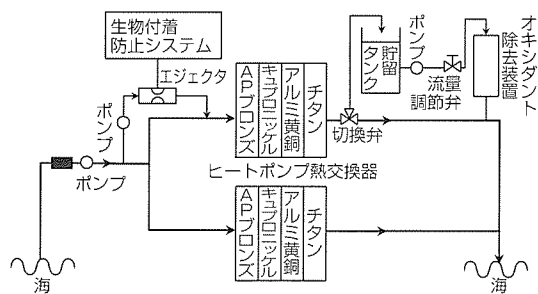


図3. 海水系での実験システムの構成

表2. 付着物量に対するオゾン注入時間の影響

注入時間 (min)	付着物量 (g/m <sup>2</sup> )			
	チタン管	アルミニウム黄銅管	キューロニッケル管	APブロンズ管
2.5	26.2	35.3	69.7	24.3
5	45.6	48.5	75.8	56.4

通水日数：500日

製、アルミニウム黄銅製、チタン製の順に並べた。オゾン処理系へのオゾン注入は1日1回、2.5分間又は5分間とし、注入量はそれぞれ14g/回、20g/回とした。

#### (2) 実験結果

表2に注入時間が2.5分と5分の場合の単位面積当たりの付着物量を伝熱管材質別に示す。伝熱管の材質に関係なく、オゾン注入時間2.5分と5分では付着物量はほぼ等しくなった。これにより、オゾン注入時間は2.5分でもよく、オゾン処理海水量を低減、すなわち、オキシダント含有海水の貯留タンクを小型化できる見通しが得られた。

図4にアルミニウム黄銅管の付着物量の経時変化を示す。全期間を通じてオゾン処理による付着低減効果は明らかで、約300日経過以降は特に顕著である。また、伝熱管に対する腐食性評価として、表3に各材料の浸食深さの測定結果を示す。チタンでは、間欠オゾン処理の有無にかかわらず浸食は認められなかった。3種類の銅系材料では、間欠オゾン処理を行った方が浸食深さが小さくなる傾向が見られた。また、銅系材料では、アルミニウム黄銅が最も浸食深さが小さく、オゾン処理に適することが分かった。

## 3. オゾン貯蔵システム

### 3.1 システムの概要

オゾン貯蔵システムは、安価な夜間電力を用いてオゾンを製造・貯蔵し、昼間のオゾンが大量に必要な時間帯に貯蔵したオゾンを使用することにより、オゾン製造コストを低減するシステムである<sup>(5)</sup>。

図5にオゾン貯蔵システムの構成を示す。このシステムは、オゾン発生器、シリカゲル吸着塔、冷凍機及びガス混合器を主な構成機器とし、オゾン吸着・脱着工程を繰り返す。吸着工程では、前述の生物付着防止システムと同様に動作して、オゾンをシリカゲル上に貯蔵する。脱着工程では、吸着塔からオゾンを脱着させ、さらに空気

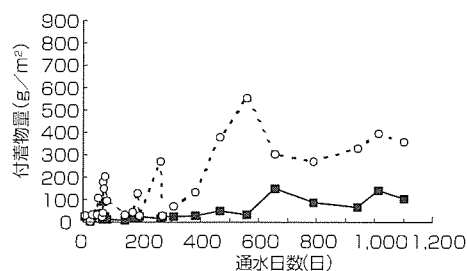


図4. 付着物量の経時変化

度を調節する。すなわち、脱着オゾンガスと空気の混合比を制御して、所定濃度のオゾン含有空気を所定流量で製造する。

このシステム

表3. 浸食深さの比較

項目	浸食深さ (μm)			
	チタン管	アルミニウム黄銅管	キューロニッケル管	APブロンズ管
オゾン処理	0	20	203	195
コントロール	0	150	263	219

通水日数：1,102日

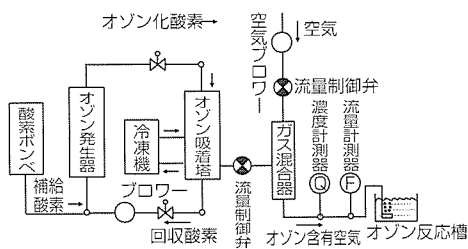


図5. オゾン貯蔵システムの構成

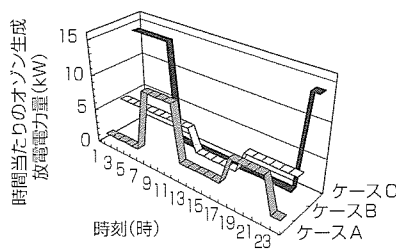


図6. オゾン生成放電電力量の比較

表4. シミュレーション条件

オゾン注入率(g/m <sup>3</sup> )	10
オゾン発生効率(W・h/g)	10
電力料金(円/kW・h)	15(a. m. 6~p. m. 10), 5(p. m. 10~a. m. 6)
酸素製造費	液体酸素: 20円/kg VSA酸素発生装置: 文献(6)のとおり
オゾン貯蔵条件	
・発生オゾン濃度(g/Nm <sup>3</sup> )	200
・貯蔵時ガス圧力(atm)	4
・吸着時オゾン分解率(%)	3
・脱着時オゾン回収率(%)	90
・吸着特性	オゾン分圧依存性, 及びシリカゲル冷却温度依存性は文献(6)のとおり
・吸着時熱量損失	循環ガスによる熱損失, オゾン吸着熱, 吸着塔からの放散熱量
・酸素の吸着量	オゾンと同程度
・その他	オゾン吸着が平衡状態に達するまで, 吸着塔から漏出なし(吸着帯長さ=0)

の特長は次のとおりである。

- (1) 安価な夜間電力の使用によってオゾン製造コストを低減できる。
- (2) オゾン使用量が少ない時間帯にオゾンを製造・貯蔵することによってオゾン製造負荷を平準化できるため、オゾン発生器容量を低減できる。

### 3.2 下水処理への適用性検討<sup>(6)</sup>

#### (1) 検討方法

従来の酸素オゾン発生器のみを使用するケースA、貯蔵システムを使用してオゾン発生器の稼働率を最大限に上げたケースB、及び貯蔵システムを使用して昼間オゾン発生器を停止するケースCについて運転コスト(酸素コストと放電電力コストの和)を試算し比較した。なお、オゾン貯蔵する場合の原料酸素は液体酸素とし、表4に示すシミュレーション条件で検討した。

#### (2) 検討結果

図6はオゾン発生器で製造されるオゾン量の時間変化である。ケースBの場合、流入下水の少ない夜間にオゾン製造・貯蔵し、流入下水量の大きい時間帯に貯蔵したオゾンを利用することにより、昼間に製造するオゾンを低減できる。このため、オゾン発生器の容量をケースAの1/2程度に低減できる。また、使用電力量のピーク値を低減できることから、契約電力料金を低減できる効果もある。一方、ケースCの場合、逆に、ケースAと比べて発生容量が約1.4倍のオゾン発生器が必要になる。さらに貯蔵システ

ムも必要であることから、全体の設備費用がかなり増大する。

一方、運転コストは、ケースAに比べ、ケースBで約12%、ケースCで約39%低減することができる。なお、運転コストは、夜間電力でオゾン製造する割合

が大きいほど大きく低減できる。

以上のことから、下水処理のように昼夜の負荷変動が大きい場合、今回のシステムを導入することにより、従来システムと比べてオゾン発生器の容量を低減するとともに、運転コストを低減できる可能性があることが示された。

## 4. むすび

オゾン吸着技術を利用したオゾン応用システムとして、冷却水系の生物付着防止システム及びオゾン貯蔵システムについて紹介した。

オゾン吸着技術を利用したオゾン応用システムは、従来のオゾンシステムにおいて最も大きな課題である設備コスト及び運転コストの問題を同時に解決する可能性を持っている。今後、生物付着防止システムは工業用冷却水ラインや発電所冷却ラインなどの大規模プラントへ、また、オゾン貯蔵システムは昼夜の処理負荷に差がある下水処理などへの適用が期待できる。

## 参考文献

- (1) 増田閃一：特集の企画にあたって，電学誌，114，No. 10，635～636（1994）
- (2) 中山繁樹，田中正明，山内四郎，田畑則一：オゾンの短時間間欠注入による水管路の生物付着防止システム，PPM，No. 10，14～27（1981）
- (3) Ogawa, T., Tamura, T., Fujiwara, S., Ozawa, T., Tanimura, Y., Shiono, S., Nakayama, S., Evans, D. K., Jain, D. K., Oad, A., Ogundele, G. I., Claudi, R.: Evaluation of a Novel Intermittent Ozonation Technology for Biofouling Control, 1997 IWC Proceedings (1997)
- (4) Tanimura, Y., Hirotsuji, J., Miya, K., Nakatsugawa, N., Tani, N., Kuma, M., Yamada, K.: Marine Biofouling Control System for Heat Exchanger by Intermittent Ozonation, 1998 IWC Proceedings (1998)
- (5) 谷村泰宏，広辻淳二，中山繁樹：オゾン貯蔵技術の最新動向，PPM，No. 12，40～47（1996）
- (6) 谷村泰宏，広辻淳二，中山繁樹：オゾン貯蔵装置の下水処理への適用(II)，第34回下水道研究発表会講演集，593～595（1997）

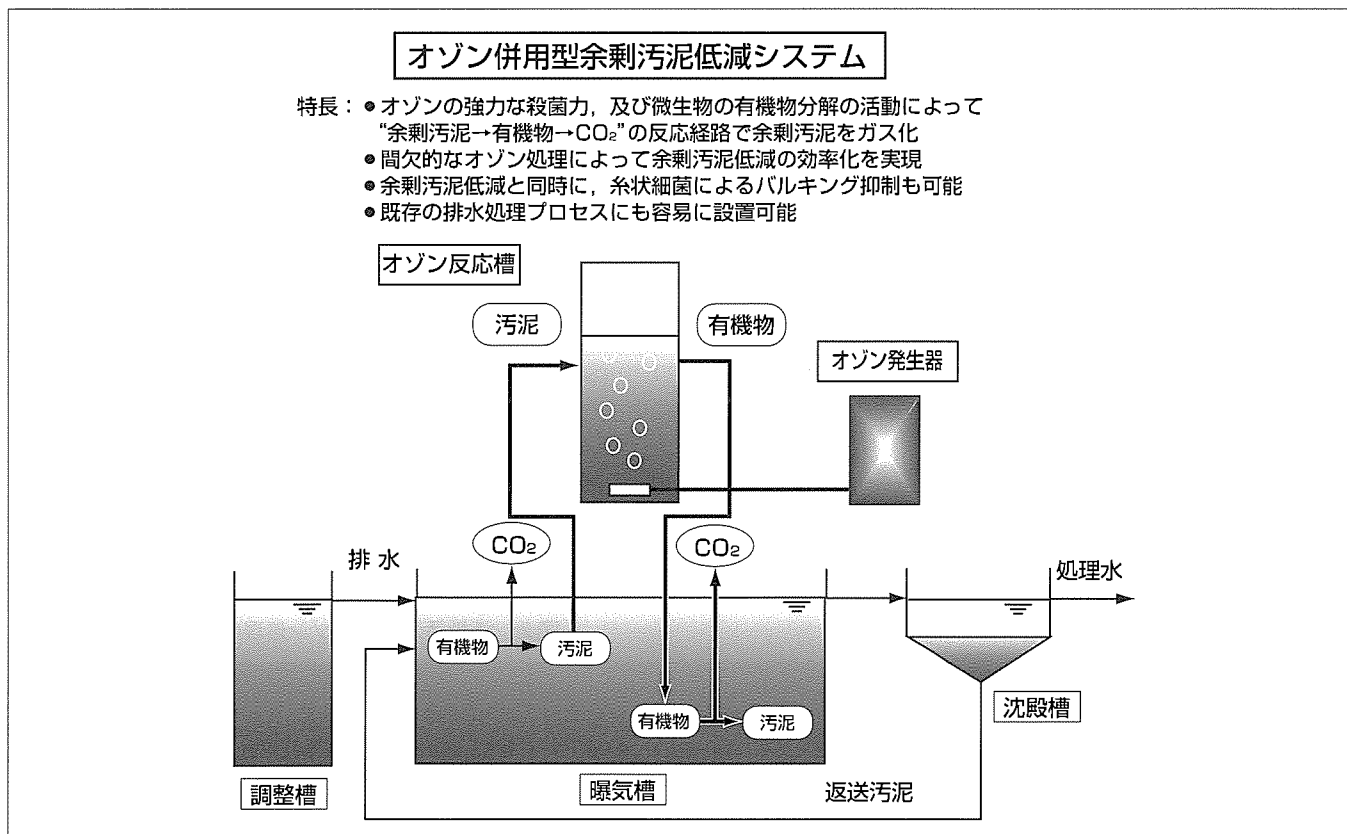
# オゾン併用型余剰汚泥低減システム

下水処理や産業廃水処理などのプロセスにおける余剰汚泥の低減は、処理コストの削減とともに、環境への負荷を考慮しプロセスからの廃棄物を減らそうという近年の“ゼロエミッション”の考え方もマッチすることから、ニーズは大きく、そのための技術開発が切望されている。

三菱電機では、従来の生物処理プロセスにオゾン処理を併用した余剰汚泥低減システムの研究開発を行い、“活性汚泥間欠オゾン処理方式”(ばっ(曝)気槽から引き抜いた活性汚泥にオゾンの間欠的に注入した後、再び曝気槽に戻す処理方式)の効果を明らかにした。この処理方式は以下の特長を持っている。①曝気槽の活性汚泥中の微生物をオゾンで死滅させ有機物に変換した後曝気槽に戻すことにより、余剰汚泥のCO<sub>2</sub>への変換を促進し、余剰汚泥量を低減す

る。②高濃度オゾンを用いた間欠オゾン処理方式は時間当たりのオゾン注入量を大きく確保でき、連続オゾン処理の約1/4の大幅に少ないオゾン量で余剰汚泥を低減できる。③余剰汚泥低減と同時に、糸状細菌によるバルキングの抑制が可能。④オゾン処理による処理水質の悪化は小さく、処理水質に対する影響は小さい。⑤ユニット化が可能であり、既存設備にも大きな工事を伴わずに容易に設置できる。⑥汚泥処分に対するランニングコストを大幅に低減できる。

以上のように、高濃度オゾンを用いた間欠オゾン処理によれば、良好な処理水質を維持しつつ効率的に余剰汚泥を低減することができ、廃棄物削減に大きな効果があると考えられる。



## 活性汚泥間欠オゾン処理方式

曝気槽の活性汚泥を引き抜き、オゾン処理した後、曝気槽へ戻す。このオゾン処理を高濃度オゾンを用いて間欠的に行うことにより、連続的な処理よりも少ないオゾン量で余剰汚泥の低減が可能となる。

1. ま え が き

下水処理・工場廃水処理に広く用いられている活性汚泥プロセスでは、処理に伴い大量の余剰汚泥が発生する。この汚泥の処分には多大な費用を要するため、その発生量低減が重要な課題である。また、糸状細菌等によるバルキングは沈殿槽での固液分離を阻害するため、プロセスの安定な運転にはその抑制が大きな課題である。これらは生物排水処理に元来存在するものであるが、決定的な解決方法は現時点でもなく、解決に向けた技術開発が切望されている。

近年、上記課題に対しオゾンを用いた方法が提案されている。余剰汚泥低減については返送汚泥をオゾン処理する方式が提案されているが<sup>(1)</sup>、汚泥低減には多くのオゾンを要するため、必要オゾン量の低減が重要である。また、糸状細菌に対するオゾンの作用も報告されているが<sup>(2)(3)</sup>、汚泥低減との関連は論じられていない。

このような背景の下、当社では、

- (1) 少ないオゾン量で余剰汚泥を低減する。
  - (2) 余剰汚泥低減と同時に、バルキング抑制を行う。
- の2点を目的とし、低コスト化、運転の安定化を実現するオゾン併用型排水処理システムの研究開発を行っている<sup>(4)</sup><sup>(5)</sup>。

本稿では、オゾン併用型余剰汚泥低減システムの概要、実証試験におけるこの技術の余剰汚泥低減効果、バルキング抑制効果、及び処理水質に対する影響等について述べる。

2. オゾン併用型余剰汚泥低減システムの概要

2.1 処理フロー

オゾン併用型余剰汚泥低減システムのフローを図1に示す。従来の処理プロセスにオゾン発生器とオゾン反応槽を設け、オゾン反応槽に曝気槽の活性汚泥の一部を循環させる。循環する活性汚泥にオゾンを注入してオゾン処理を行い、特にオゾン処理を間欠的に行うことが特長である。以下この方式を“活性汚泥間欠オゾン処理方式”という。

2.2 余剰汚泥低減の原理

余剰汚泥低減の原理を図2に示す。

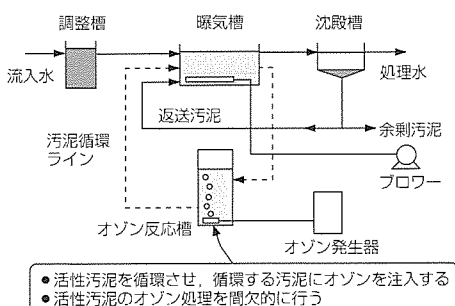


図1. オゾン併用型余剰汚泥低減システムのフロー

(1) 一般に活性汚泥プロセスでは、排水中の有機物は活性汚泥によって分解され汚泥の増殖に用いられるとともに、一部はCO<sub>2</sub>に変換される。従来の処理プロセスでは、この汚泥の増殖分が余剰汚泥となる。

(2) 今回の方式では、曝気槽の活性汚泥の一部をオゾン反応槽でオゾン処理することにより、汚泥中の微生物を死滅させ、その大部分を微生物の死がい(骸)である有機物へ、一部をCO<sub>2</sub>に変換する。

(3) この有機物(オゾン処理後の汚泥)を曝気槽に戻すと、流入排水中の有機物と同様、曝気槽内の活性汚泥によって汚泥とCO<sub>2</sub>へ変換される。

図中点線のオゾン処理経路によって余剰汚泥のCO<sub>2</sub>への変換を促進し、CO<sub>2</sub>相当分の汚泥量が低減できる。

3. 余剰汚泥低減の効果

3.1 汚泥収率の低下

図3に、給食工場からの実廃水を用いた実証試験における除去TOC量と汚泥発生量の関係の一例を示す。試験では、オゾン処理を1日数回間欠的に行い、オゾンを注入するオゾン処理系と酸素のみを注入する対照系の2系統を運転して両者を比較した。図が示すように、汚泥収率(図の傾きに相当)はオゾン処理の併用によって大幅に低下する。オゾン処理条件の異なる他の試験でも汚泥収率は低下し、今回の方式による余剰汚泥低減の効果を確認した。

3.2 オゾン吸収量とオゾン処理方法の影響

オゾン吸収量を変えた試験とともに、間欠オゾン処理に加え連続オゾン処理を実施し、オゾン吸収量とオゾン処理方法の影響を調べた。間欠/連続処理では異なる濃度のオ

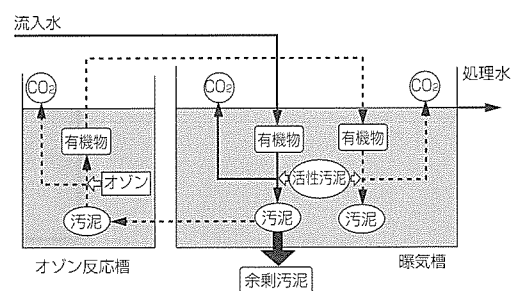


図2. 活性汚泥間欠オゾン処理の反応モデル

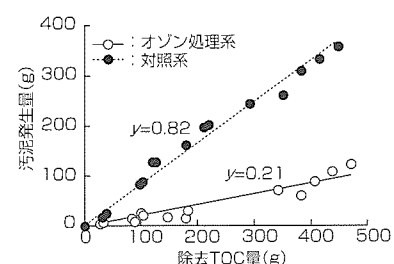


図3. 除去TOC量と汚泥発生量の関係

ゾンを供給し(間欠:約110mg/ℓ, 連続:約30mg/ℓ), 1日当たりのオゾン吸収量をほぼ等しくした。

図4に間欠/連続処理でのオゾン吸収量と汚泥収率比(対照系の汚泥収率に対するオゾン処理系の汚泥収率の比)の関係を示す。いずれの処理でもオゾン吸収量の増加に伴い汚泥収率比が低下し, オゾン吸収量によって余剰汚泥量をコントロールできることが明らかである。

また, 汚泥収率比は間欠処理の方が大きく低下しており, 間欠処理の方が少ないオゾン量で余剰汚泥低減の効果があることを示している。この図から, 汚泥発生量50%減量に必要なオゾン量は, 連続処理での約35mg-O<sub>3</sub>/g-曝気槽MLSS・dに対し, 間欠処理では約8mg-O<sub>3</sub>/g-曝気槽MLSS・dとなり, これは連続処理の場合の約1/4に相当することが分かる。

### 3.3 活性汚泥の溶解に対するオゾン処理方式の影響

図5に, 活性汚泥の回分オゾン処理でのオゾン吸収量と汚泥混合液のDOC濃度の関係を示す。ここでは, 注入オゾン濃度を間欠処理/連続処理に対応して2条件とし, 処理時間を調整してオゾン吸収量を同等とした。DOC濃度の増加は同じオゾン吸収量でも高濃度オゾンを経時間注入する方が大きく, 集中的に高濃度オゾン注入するほど, すなわち単位時間当たりのオゾン注入量が大きいほど汚泥の溶解が進むことが分かる。

間欠処理と連続処理では, 同じオゾン量を注入する場合, 前者が短時間に高濃度オゾンガスを注入するため時間当たりのオゾン注入量が大きいのにに対し, 後者は低濃度オゾンガスを連続注入するため時間当たりの注入量は小さい。図の結果より, 時間当たりのオゾン注入量の大きい間欠処理では連続処理よりも汚泥の溶解が進み, これに伴い曝気槽

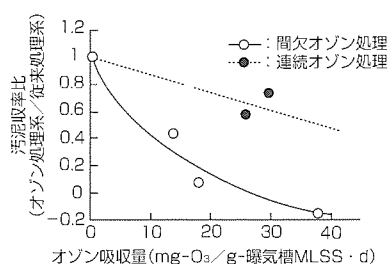


図4. オゾン吸収量と汚泥収率比の関係

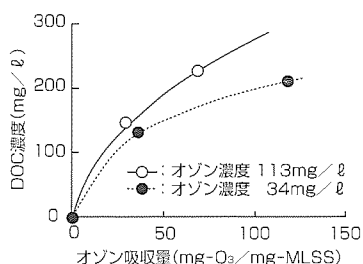


図5. オゾン吸収量と汚泥のDOC濃度の関係

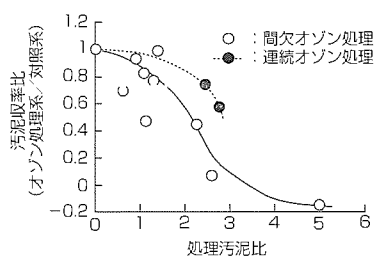


図6. 処理汚泥比と汚泥収率比の関係

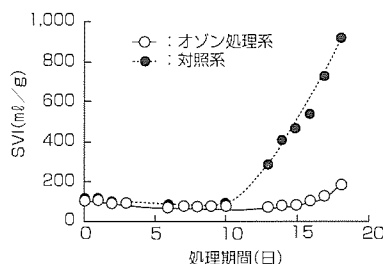


図7. SVIの経時変化

に戻した際の生物分解性も高くなり, 間欠オゾン処理の大きな効果につながったものと考えている。

### 3.4 処理汚泥比の影響

図6に, 間欠/連続処理での処理汚泥比と汚泥収率比(余剰汚泥量に対するオゾン処理汚泥量の比)の関係を示す。処理汚泥比の増加に伴い汚泥収率比が低下し, 処理汚泥比が重要なパラメータであることが明らかである。また, 連続処理での汚泥収率比低下は緩やかで, 同じ効果を得るには間欠処理よりも多くの汚泥を処理する必要がある。

以上のように, 間欠処理は, 時間当たりのオゾン注入量を大きく確保でき, 少ないオゾン量, 少ない処理汚泥量で効果があることから, 余剰汚泥低減に極めて有効な方法といえる。

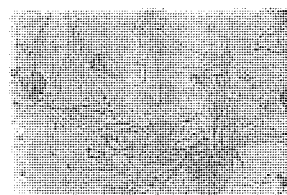
## 4. 汚泥沈降性の悪化抑制に対する効果

図7に, 汚泥SVIの経時変化の一例を示す。処理10日までではオゾン処理系/対照系いずれもSVIは低く沈降性は良好であったが, 10日以降に, 対照系で, 糸状細菌の過剰発生とともに急激にSVIが増加し, 糸状細菌由来のバルキングが起きた。一方, オゾン処理系では, SVIの増加は対照系に比べ緩やかで, 糸状細菌も少なかった。

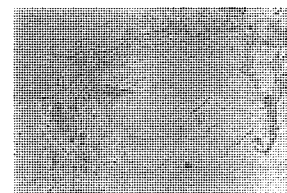
上記のバルキング状態の汚泥にオゾン処理を行ったところ, 糸状細菌は図8のようにシャープな糸状の形態から束状に変化しており, 糸状細菌の網状構造が破壊されることが分かる。これより, 上記のSVIの増加抑制はオゾンが糸状細菌に直接作用し, その過剰な増殖を阻害したためと判断できる。以上から, 今回の方式は汚泥沈降性の悪化を抑制し良好な沈降性を維持する効果があることを確認した。

## 5. 処理水質に対する影響

図9に, 処理水DOC濃度,



オゾン処理前



オゾン処理後

図8. オゾン処理前後の活性汚泥の顕微鏡写真

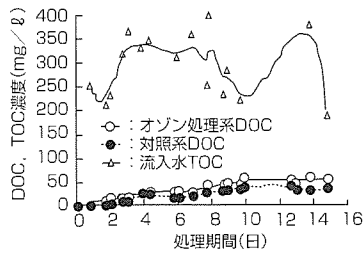


図9. 処理水DOC濃度，流入水TOC濃度の経時変化

流入水TOC濃度の経時変化の一例を示す。処理水DOC濃度は、オゾン処理系で対照系よりもやや高いものの、ほぼ同等の処理水質である。処理条件の異なる他の試験でもDOC濃度の増加は平均で数十mg/l程度で、大幅な処理水質の悪化はなく、今回の方式は処理水質には大きな影響は及ぼさないと判断できる。

ただし、この方式は汚泥を有機物として曝気槽に戻すため有機物負荷を高めることになり、負荷が設計値を超えるような場合には大幅な処理水質の悪化も予想される。処理水質の維持には、流入負荷の小さい時間帯に集中してオゾン処理を行う等の方策が有効と考えている。

### 6. 実装置構成及びコスト評価

このオゾン処理装置は、図10に示すように、オゾン発生器、オゾン反応槽等で構成され、ユニット化が可能である。また、曝気槽から直接活性汚泥を採水することから、既存の設備にも容易に設置できるとともに、オゾン処理する汚泥の濃度が把握しやすく的確な処理が可能である。さらに、安定な運転には、流入負荷や汚泥状態に関する各種センサを設け、これらの変動に応じたオゾン処理を行うことが有効である。

図11に、この方式のランニングコストの試算結果の一例を示す。オゾン処理の併用によって汚泥処分費用を大幅に削減でき、オゾン発生等の増加分を含めてもランニングコストは確実に低減できる。試算では、余剰汚泥100%低減の場合、約40%のランニングコストの削減となる。また、この方式では、従来プロセスで不可欠な汚泥脱水機の規模縮小や削除が可能となり、装置全体のインシヤルコストはランニングコスト削減分によって十分回収可能と見積もられた。

### 7. むすび

排水処理における低コスト化、運転の安定化に向けたオゾン併用型余剰汚泥低減技術として、活性汚泥間欠オゾン処理方式の効果を述べた。余剰汚泥低減は、コスト削減だけでなく環境に対する負荷を考慮しプロセスからの廃棄物を減らす“ゼロエミッション”の考え方ともマッチしており、その重要性は今後ますます大きくなると予想される。

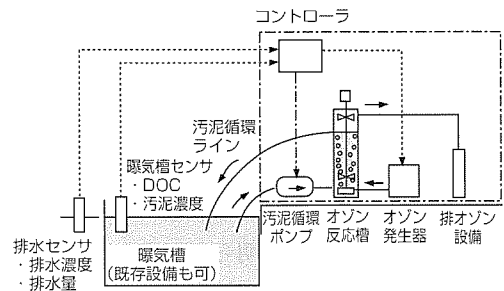


図10. 活性汚泥間欠オゾン処理の実装置構成

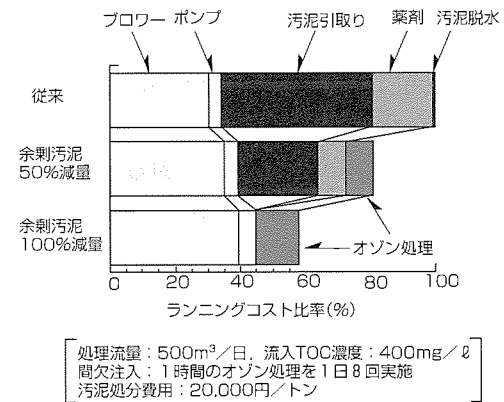


図11. ランニングコスト試算結果

今後は、より効率的な余剰汚泥低減、バルキング抑制に向けた計測制御技術の確立等に取り組みたいと考えている。この研究は、農水省補助事業“食品産業における排水中の有害物質等除去技術の開発”の一環として行ったものである。

### 参考文献

- (1) Sakai, Y., Fukase, T., Yasui, H., Shibata, M.: An Activated Sludge Process without Excess Sludge Production, *Wat. Sci. Tech.*, **36** (11), 163 (1997)
- (2) van Leeuwen, J.: Bulking Control with Ozonation in a Nutrient Removal Activated Sludge System, *Water SA*, **14** (3), 119 (1988)
- (3) Collignon, A., Martin, G., Martin, N., Laplanche, A.: Treatment of Bulking by Ozonation, Mechanisms of Ozone on Microorganisms, *Trib. Eau.*, **46** (562), 46 (1993)
- (4) 神谷俊行, 福長由紀子, 広辻淳二, 真田欣将: オゾン-生物併用処理による高度排水処理技術の研究, 第35回下水道研究発表会講演集, 507 (1998)
- (5) Kamiya, T., Hirotsuji, J.: New Combined System of Biological Process and Intermittent Ozonation for Advanced Wastewater Treatment, *Wat. Sci. Tech.*, **38** (8-9), 145 (1998)

# クリーンオゾナイザと 半導体プロセスへの応用

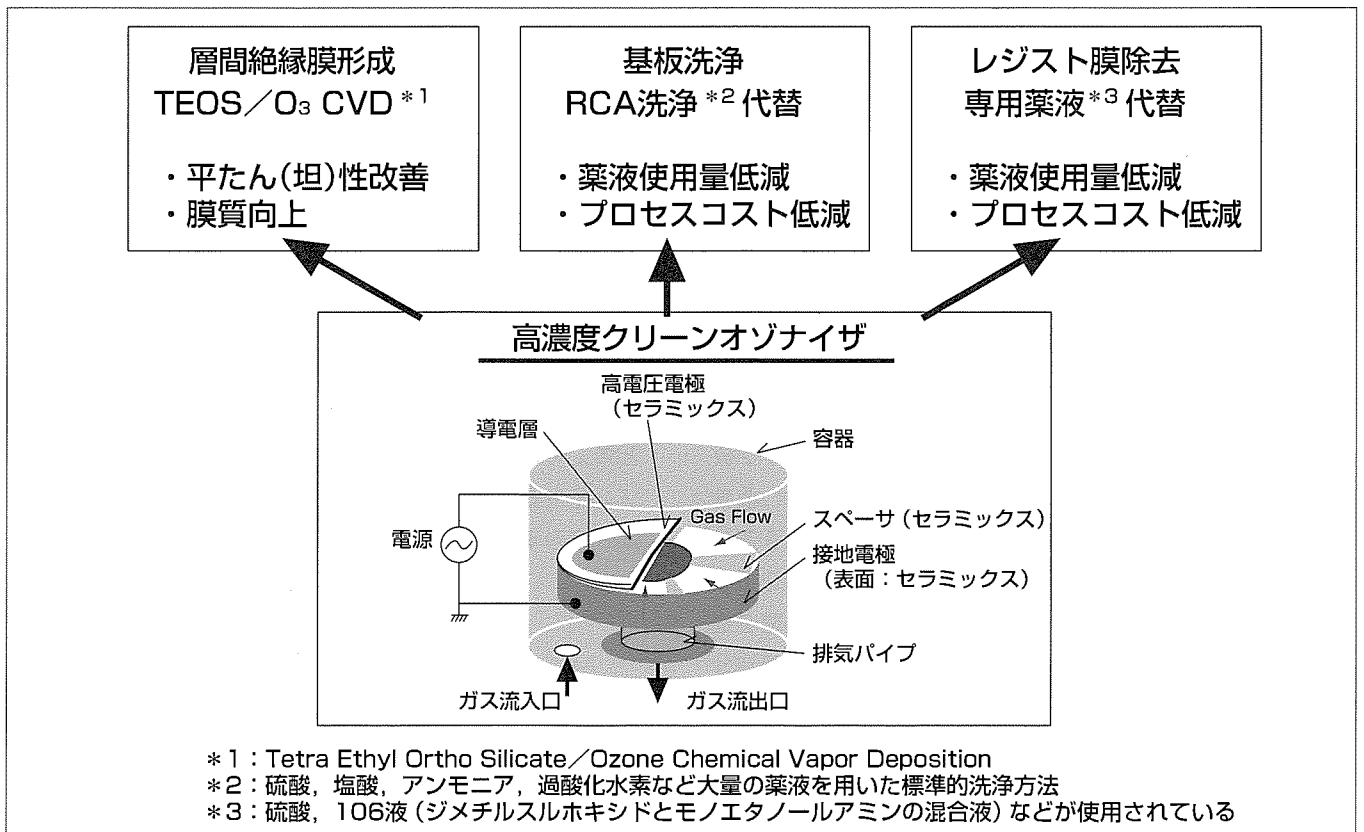
葛本昌樹\* 眼龍裕司+  
宮本 誠\*\* 笹井 寛\*\*  
鷲谷明宏\*\*\*

## 要 旨

半導体製造分野では、技術革新の速度が極めて速く、常に生産性(スループット)の追求が最優先されてきた。このため、比較的開発が容易で反応速度の速い高温の薬液が広く使用されている。しかし、人々の環境問題への関心の高まりとISO14000や省エネルギー法改正などの規制強化の中、この分野においても環境調和型プロセスの開発が急務となっている。これらの薬液プロセスは主に酸化反応を基本としており、オゾンによるプロセス代替が検討されている。しかし、オゾンを用いた処理では比較的長い反応時間を必要とし、①工業的に要求される生産性が確保できない、②反応装置が大きくなり設置面積、設備コストが大きくな

るなどの課題が残されていた。

我々は、極短ギャップの高電界放電空間を精度良く構成することにより、生成したオゾンの電子衝突による分解効果を小さく抑え、超高濃度のオゾンが発生できる技術を開発した。この技術を基に、さらに半導体製造分野でも使用することができるクリーンなオゾン発生器を実現し、環境負荷が小さく、経済的なプロセス(エコプロセス)開発を進めている。特にこれまで利用できなかった高濃度オゾンを用いることにより、高温薬液と同等の生産性を確保することを特長として各プロセスの開発を目指している。



## 高濃度クリーンオゾンの半導体分野への応用

高濃度オゾンを用いることにより、スループットを落とさず薬品使用量を低減することが期待できる。高純度薬液に比較して安価なオゾンを用いることにより、環境負荷低減とともにプロセスコスト低減も可能になる。さらに、常温プロセスの実現により、換気に起因するクリーンルームの空調費用削減にも有効である。

## 1. ま え が き

これまで企業では、生産性の追求が最優先され、環境負荷の大きな薬液が大量に消費されてきた。特に技術革新の激しい半導体や液晶の製造分野では、最新技術の早期開発に重点が置かれ、薬液の利用でプロセスに支障が生じない限り代替技術の開発は後回しにされてきた。このため、業界の発展とともに、薬液による環境負荷増大のみにとどまらず、薬液代や高温プロセスに起因する換気に必要なクリーンルームの維持電力の大量消費を招いてきた。しかし、ようやく、人々の環境意識の高まりとISO14000や省エネルギー法改正などの規制強化の中、環境調和型プロセスの導入が検討され始めている。これらの薬液プロセスは酸化反応を基本としており、オゾンによるプロセス代替が検討されている。

オゾンは強力な酸化力を持ち、処理物質と反応後の副生成物も元来自然界に存在する酸素、水、炭酸ガスなどであるため、環境に優しい処理物質として応用が期待されてきた。しかし多くの場合、オゾンの利用が望ましいときでも、入手が容易で安価な塩素や反応速度の速い熱硫酸などの高温の薬液が用いられている。これは、オゾンを用いた処理では比較的長い反応時間を必要とし、①工業的に要求される生産性が確保できない、②反応装置が大きくなり設置面積、設備投資費用が大きくなるなどの課題が残されていたためと思われる。これらの課題は、主に高濃度のオゾンを発生することができなかつたことに起因している。高濃度のオゾンを効率的に発生することができれば、反応時間の短縮(生産性の向上)、反応装置の小型化(設備投資費の削減)が望め、オゾンの利用範囲が急速に広がることが期待できる。

当社では、短ギャップの高電界放電空間を精度良く構成することにより、生成したオゾンの電子衝突解離効果を小さく抑え、超高濃度オゾンが得られる新しいオゾン発生技術を開発した<sup>(1)</sup>。また、この発生装置では、短ギャップ放電の採用により、放電空間のガス冷却能力が飛躍的に改善され、極めてコンパクトなオゾン発生装置が実現できることを示した<sup>(2) (3)</sup>。既に、この新型の超高濃度オゾン発生装置を用いて、下水処理やバルブ漂白などへの応用展開を進めている。最近、その他の応用範囲として、半導体製造分野への高濃度オゾンの適用研究も開始した。高温の薬液プロセスを常温のオゾン処理に変更することによって環境負荷を下げ、さらにランニングコストを低減することが主な目的である。

半導体製造分野へオゾンを適用するためには、金属粉など不純物発生のないクリーンなオゾン発生器の開発が必要とされる。そこで、放電空間を完全にセラミックスだけで構成したコンタミフリーなオゾン発生装置を試作し、その

特性について調べた。

本稿では、開発したクリーンオゾナイザの特性、及びその半導体プロセスへの応用展開について述べる。

## 2. 新型クリーンオゾナイザ

### 2.1 構造

新型クリーンオゾナイザのオゾン発生部の原理図を図1に示す。セラミックス円板(直径230mm×1mm)の片面に導電膜層を形成し、誘電体高電圧電極とした。この高電圧電極と水冷した接地金属電極の間に薄い放射状スペーサを挟み込むことにより、極短ギャップの放電部を精度良く構成する。放電空間を完全にセラミックスだけで構成するため、接地金属電極の放電面はセラミックスでグランドコートし、さらにこのグランドコート面上に同様のセラミックコーティングでスペーサ部を構成した。

図において、誘電体電極と接地電極の間でスペーサのない部分が放電空間となり、放電ギャップ長はスペーサ部の厚みで任意に調整することができる。電極部は図のように圧力容器に収納され、容器外部から酸素などの原料ガスを供給する。原料ガスは、放電空間を通過後、接地電極中央部に設けられたガス排出用の穴からオゾン化ガスとして容器外に出力される。放電部にガスのシール構造を必要とせず、荷電粒子衝突やオゾンガスとの反応によるコンタミ発生のないクリーンなオゾン発生には極めて適した構造となっている。

### 2.2 オゾン発生特性

代表的な条件におけるオゾン発生特性を図2に示す。放電ギャップ長 $d$ (スペーサ厚み)100 $\mu\text{m}$ 、酸素ガス流量10 $\ell/\text{min}$ 、添加窒素濃度2%、冷却水温20 $^{\circ}\text{C}$ において、ガス圧力を変化させた結果である。ガス圧力の増大とともにオゾン発生効率が増加し、2.5 $\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ 以上の領域でほぼ一定の効率に収束する。ガス圧力の増大によって換算電界強度が下がり、オゾン生成に適した放電条件に近づくためと考えられる。金属-誘電体で放電部を構成した同様のオゾン発生器では、1.0 $\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ 以上の領域においては、ほぼ一定のオゾン発生効率を得られることから、誘電体-誘

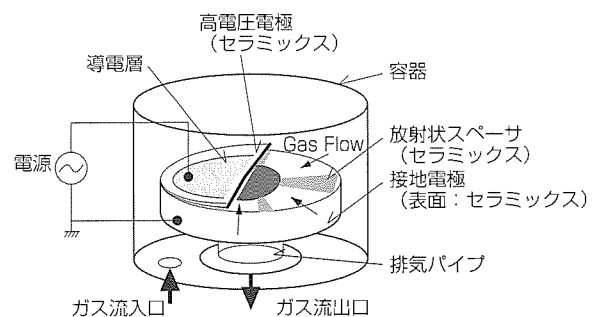


図1. クリーンオゾナイザの構造



電体境界では金属-誘電体境界よりも実質的な換算電界強度が高くなっていることが予想される。

ガス圧力 $2.5\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ 、放電電力 $1\text{kW}$ においてガス流量を変化させたときの発生オゾン濃度の変化を図3に示す。ガス流量の増加とともにオゾン濃度は低下する。ガス流量 $2\text{ l}/\text{min}$ では、 $230\text{g}/\text{Nm}^3$ を超える高濃度オゾンが得られた。このときの放電電力(面)密度は $2\text{ W}/\text{cm}^2$ であり、市販の発生装置の動作条件に比べて十倍程度電力密度が高く、極めてコンパクトな発生装置から高濃度オゾンが発生できた。これは放電ギャップ長を極めて短く設定したことにより、放電空間のガス温度上昇を低く抑えられたことによる。また、オゾン濃度 $100\text{g}/\text{Nm}^3$ では、オゾン収率 $10\text{kW}\cdot\text{h}/\text{kg}-\text{O}_3$ で $100\text{g}/\text{h}$ のオゾンが発生することができる。ただし、このオゾン収率は金属-誘電体境界で構成されたオゾン発生器よりも40%程度低い値となっている<sup>(4)</sup>。

同一の実験条件下において金属-誘電体境界と誘電体-誘電体境界におけるオゾン発生特性を比較したものが図4である。図において、横軸は放電電力 $W$ を標準状態におけるガス流量 $Q_N$ で割った、いわゆるSpecific Energy  $W/Q_N$ で示した。Specific Energy  $W/Q_N$ は、ガス1分子当りに供給される放電エネルギーを表し、オゾン発生の基礎パラメータとなる量である。オゾンの発生効率も前述のように金属-誘電体境界の方が高い。この原因については不

明であるが、誘電体-誘電体境界の方が換算電界強度が高くなり、オゾン発生効率が低下することに起因しているのではないかと考えられる。低オゾン濃度領域で1.4倍程度オゾン発生効率が異なるにもかかわらず、得られる最大オゾン濃度が大きく変わらない結果からも上記推論を裏付けられている。すなわち、誘電体-誘電体境界のプラズマでは換算電界強度が高くなり、オゾンの生成効率は低下するものの、生成したオゾンを分解する低エネルギー電子数が少ないため高濃度領域では両者の差が小さくなったものと考えられる。詳細については現在確認試験を実施中である。

また、微量窒素添加がオゾン発生特性に与える影響について調べた結果が図5である。実験の結果、窒素を約2%程度混入したとき最も高いオゾン発生効率を得られることが分かった。そこで図では、窒素濃度を変化して得られた効率をこの最大効率との比(オゾン濃度比)として表示した。窒素の添加量が減少するとオゾン発生効率は低下することが分かる。金属-誘電体境界では、オゾン発生特性に与える窒素添加量の影響は小さく、添加窒素濃度が数十ppm以下の領域で発生効率の微少な低下が観測される。一方、誘電体-誘電体境界では、微量窒素濃度がオゾン発生効率に与える影響は極めて大きく、添加窒素濃度が1%を下回ると発生効率の低下現象が認められる。微量の窒素

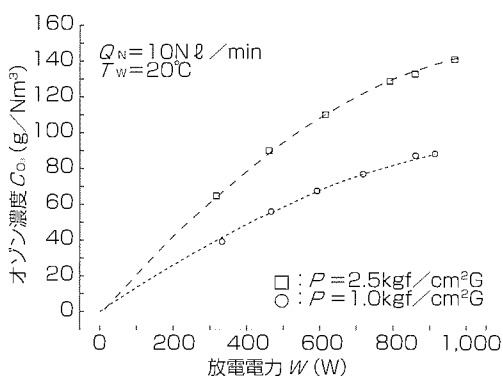


図2. オゾン発生特性

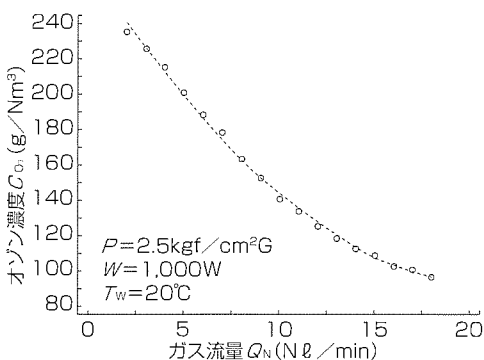


図3. ガス流量依存性

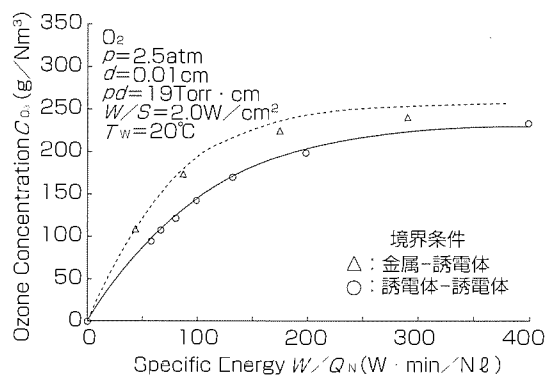


図4. 金属-誘電体境界と誘電体-誘電体境界でのオゾン発生比較

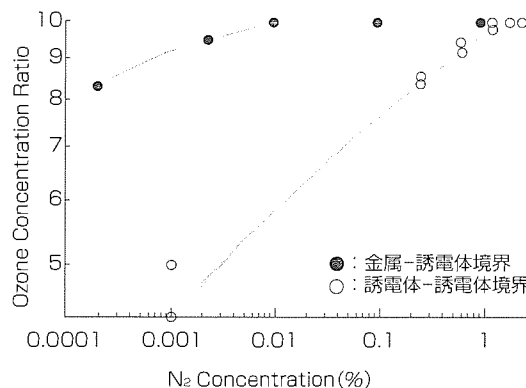


図5. オゾン発生に与える微量窒素添加の効果

添加によるオゾン発生効率の改善要因として、①紫外線(窒素の2nd positive光)による初期電子発生による放電の安定化効果、②窒素の電子励起状態(A<sup>3</sup>Σ又はB<sup>3</sup>Σ)からの酸素(O<sup>3</sup>P)へのエネルギー移乗効果などが提案されているが、境界条件によって変化することから①の可能性が高いように思える。

### 2.3 クリーンオゾンの発生

この開発の目的である半導体製造分野にオゾンを利用するためには、高濃度オゾンの発生とともに、金属コンタミなどを含まないクリーンなオゾンの発生技術開発が要求される。

そこで、開発したオゾン発生装置を用いて、金属不純物の発生度合いを評価した。評価方法として、発生したオゾンガスを純水中に溶解し、この溶液中の金属コンタミ量をマイクロ波プラズマ質量分析装置によって計測した。ただし、アルミ成分に関してはこの測定方法が利用できないため、フレイムレス原子吸光分析装置を用いた。結果を表1に示す。観測したすべての金属濃度は検出限界値(数十ppt)以下であり、極めて高い清浄度を持つことが証明された。また、このオゾン水中にシリコンウェーハを浸漬し、ウェーハ上に付着した異物を全反射蛍光X線分析装置(TRXRF)で観測した。評価したすべての金属(Ca, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, K, Ti, V, Co, Cu, Zn)に対して、計測器の測定限界(1×10<sup>10</sup>atoms/cm<sup>2</sup>)以下であることが明らかになった。この値は現在の半導体製造プロセスに要求される清浄度を十分満足するものである。

接地電極に金属電極(SUS)を用いた場合、荷電粒子のスパッタリングにより、材料の主成分であるCr, Fe, さらにそれらの酸化物が大量に発生するが、金属表面をセラミックスでコーティングしたことによって金属コンタミの発生を完全に防止することができた。また、オゾン発生器出口配管にインライン型のパーティクルカウンタを取り付け、この検出器の測定限界である0.27μm以上の異物の発生がないことも確認している。放電空間にガスのシール機構を必要としない構造を採用したため、シール剤の劣化などに起因するパーティクルの発生がないこともこの構造の大きな特長である。

## 3. 高濃度オゾンの半導体プロセスへの応用展開

### 3.1 絶縁膜製造プロセスへの応用

開発したクリーンオゾンナイザを用いてSiO<sub>2</sub>の層間絶縁膜

表1. オゾン水中金属濃度計測結果

元 素	Na, K, Ca, Fe, Zn, Al	Mg, Ni, Cu	Cr, Mn
超純水中濃度	<50ppt	<20ppt	<10ppt
オゾン水中濃度	<50ppt	<20ppt	<10ppt
検出限界	50ppt	20ppt	10ppt

の形成実験を行った。この方法は、図6に示すように、TEOS (Tetra Ethyl Ortho Silicate) / O<sub>3</sub> CVD (Chemical Vapor Deposition) 法として知られている方法である。Siの核にした材料(TEOS)をオゾン(O<sub>3</sub>)でCO<sub>2</sub>やH<sub>2</sub>Oに酸化し、SiO<sub>2</sub>の形で基板上にたい(堆)積(デポジション)させるものである。TEOSは結合して多量体(TEOS)<sub>n</sub>を形成し基板上で液状の動きをするため、平坦な絶縁膜を形成しやすい特長があり、現在、64M-DRAMの多層配線の層間絶縁膜として使用されている。

TEOS供給量とデポレート(堆積速度)の関係を図7に示す。TEOS供給量の増大とともにデポレートは改善され、最大0.27μm/minのデポレートを実現した。通常実用されている速度に対し2倍程度生産性が改善された。実験では、形成した絶縁膜の平坦性を向上させる目的で、TEOS以外にB(ボロン)とP(りん)をTEOS供給量の1/10程度の割合で供給した。これらの不純物は、膜の平坦性を向上する際、より低い温度でSiO<sub>2</sub>膜を溶かせるために混入する。また、TEOSとオゾンの供給量は1:2.4で実験を行った。ここでは、オゾン供給量を増大するために供給するオゾン濃度を高濃度化することで対応した。SiO<sub>2</sub>の成膜過程において、TEOSの供給量が反応の律速過程になっているため、TEOS供給量を増大することによってデポレートを改善することは容易である。しかし、TEOS供給量だけ増大して成膜した場合、形成された膜は平坦性が悪く、収縮率が大きいなど膜質が低下することが分かった。そこで、増大したTEOS供給量に見合ったオゾン量を供給することで、膜質を維持した状態でデポレートを改善することにした。図7に示すように、TEOS供給量に比例してオゾン濃度を増大することにより、膜質も維持できることが判明した。

工業分野において反応速度は生産性そのものであり、高濃度クリーンオゾン発生技術開発により、良質で高速のSiO<sub>2</sub>成膜技術が初めて可能になった。

### 3.2 基板洗浄プロセスへの応用

現在、半導体基板洗浄にはRCA洗浄が用いられている。このプロセスは、硫酸と過酸化水素混合液(80℃)による有機物除去、アンモニアと過酸化水素混合液(80℃)によるパ

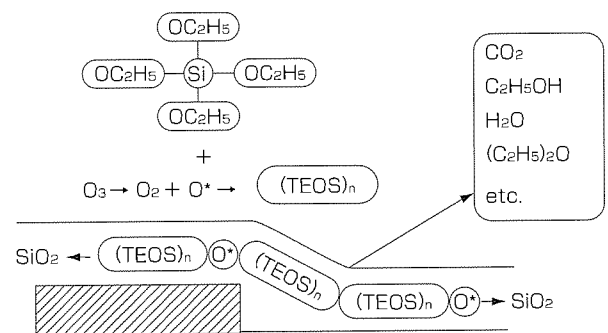


図6. TEOS/O<sub>3</sub> CVD法

一テイクル除去、塩酸と過酸化水素混合液(80℃)による金属除去、さらにふっ酸による酸化膜除去を基本構成としている。このプロセスに用いられる薬液代は、8インチウエー八月産2万枚の工場ですら年間43億円といわれている<sup>(6)</sup>。環境負荷とともにランニングコストの低減のためオゾン水による代替洗浄技術が望まれている。

オゾン水による有機物や金属除去性能は既に確認されており<sup>(7)</sup>、実用化のため材料の耐オゾン性評価などが進められている。特にオゾン水と0.1%程度の希ふっ酸を併用することにより、除去が困難とされていた銅汚染も十分除去可能であることが実証されている<sup>(8)</sup>。

### 3.3 レジスト除去プロセスへの応用

洗浄プロセスと同様、大量の薬液を使用し、オゾンの利用が期待されているプロセスがレジスト除去プロセスである。露光の後、不要になったレジスト材料を除去するもので、一般に高温の濃硫酸や106液などの専用液が使用されている。このプロセスへのオゾン導入には、除去速度の改善が最大の課題である。したがって、オゾン水でレジスト除去を行うためには、オゾン水のオゾン濃度を高め、生産性を改善する必要がある。

図8はオゾンガス濃度と飽和オゾン水濃度の関係を示したものである。飽和オゾン濃度は用いるオゾンガス濃度と水温によって決定されるため、200g/Nm<sup>3</sup>以上の超高濃度オゾンガスを発生できるこの技術は除去速度改善に極めて有望と考えられる。レジスト膜の除去速度がオゾン水濃度にほぼ比例することは既に確認されている<sup>(9)</sup>。

## 4. む す び

放電空間をセラミックスだけで構成したクリーンなオゾン発生器を開発し、半導体製造分野への適用試験を行った。得られた結論を以下に要約する。

- (1) 金属粉など不純物を含まないクリーンで230g/Nm<sup>3</sup>を超える高濃度なオゾンの発生に成功した。
- (2) 微量窒素の添加はオゾン発生効率を改善し、特に誘電体-誘電体境界ではその効果が大きい。
- (3) SiO<sub>2</sub>成膜プロセスに高濃度クリーンオゾンを用い、高速で良質の成膜が可能であることを実証した。
- (4) 環境負荷とプロセスコスト低減の観点から、高濃度オゾンを用いた基板洗浄、レジスト除去プロセスが期待され

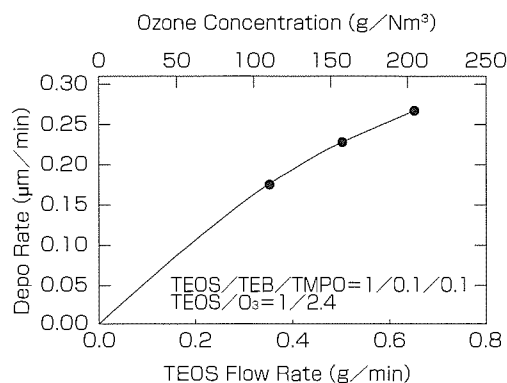


図7. オゾン濃度とデポ速度

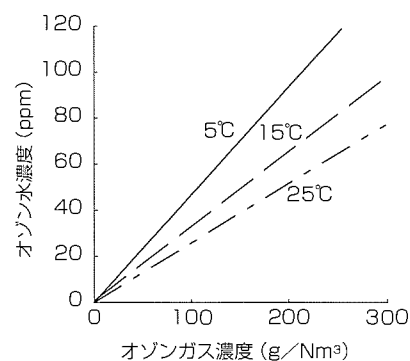


図8. 飽和オゾン水濃度

る。

クリーンで高濃度オゾンの発生に成功したことにより、これまでコンタミと反応速度(生産性)の課題で利用されなかった半導体分野へのオゾンの適用が可能となった。高温の薬液を用いたプロセスが多い半導体製造分野において、環境負荷の小さいオゾンによる代替が期待される。

## 参 考 文 献

- (1) 葛本昌樹, 田畑要一郎, 吉沢憲治, 八木重典: 100μm級極短ギャップ下における無声放電による高濃度オゾン発生, 電学論A, **116**, No. 2, 121~127 (1996)
- (2) 葛本昌樹, 田畑要一郎, 廣辻淳二: 高濃度・高効率オゾンナイザ, 電気評論, 49~52 (1996-3)
- (3) 葛本昌樹: 高濃度オゾンナイザとその応用, 静学論誌, **21**, No. 1, 18~21 (1997)
- (4) Kitayama, J., Kuzumoto, M.: Theoretical and Experimental Study on Ozone Generation Characteristics of an Oxygen-fed Ozone Generator in Silent Discharge, J. Phys. D30, 2453~2461 (1997)
- (5) 葛本昌樹, 沖原雄一郎, 宮本 誠: 極短ギャップオゾンナイザの開発, 放電研究会資料ED-98-98, 29~32 (1998)
- (6) 例えば, NIKKEI MICRODEVICES, 165~166 (1995-9)
- (7) 例えば, Osaka, T., Okamoto, A., Saga, K., Kuniyasu, H., Hattori, T.: Environment-Friendly Single-Wafer Spin Cleaning with Alternate Use of Ozonized Water and Dilute HF, 7th International Symposium on Semiconductor Manufacturing, 113~116 (1998)
- (8) 浅岡保宏, 横井直樹, 大森寿朗, 林出吉生: DHF/O<sub>3</sub>水による金属Cu汚染除去性へのHF濃度の影響, 応用物理学会講演会, 28a-PB-18 (1998)
- (9) 発表準備中

# スポットライト 1.3μm帯光ファイバ増幅器 (PDFA)

光通信における重要な波長帯である1.3μm帯についても、実用的な光ファイバ増幅器の実現が望まれていました。特に、国内電力会社で使用されている自営通信用光伝送路はその大半が1.3μm帯零分散光ファイバであり、これら既存の光ファイバを活用した1.3μm帯信号光による安定した大容量・長距離光伝送の実現が望まれていました。

このような要求から、三菱電機㈱は、東京電力㈱との共同開発により、1.3μm帯光ファイバ増幅器(Praseodymium Doped Fiber Amplifier : PDFA)を開発し、製品化しました。

1.3μm帯光ファイバ増幅器は、励起光源として新規に開発した長期信頼性に優れた高出力励起用半導体レーザーを使用することにより、通信装置として実用的な信頼性を得ています。

## 特長

### 1. 高出力・長距離伝送

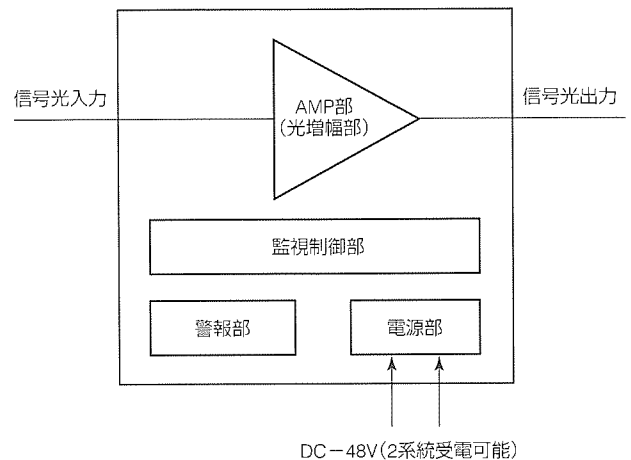
光出力+13dBm以上(最大出力+16dBm : 40mW)で、伝送速度2.4GbpsのSDH端局と組み合わせた場合、無中継伝送距離を60km以上に拡大可能です。

### 2. 長期信頼性

150mW級の高信頼な1.01μm帯励起用半導体レーザーを開発し、通信装置として必要な長期信頼性を達成しました。

### 3. デジタル実装汎用架に搭載可能

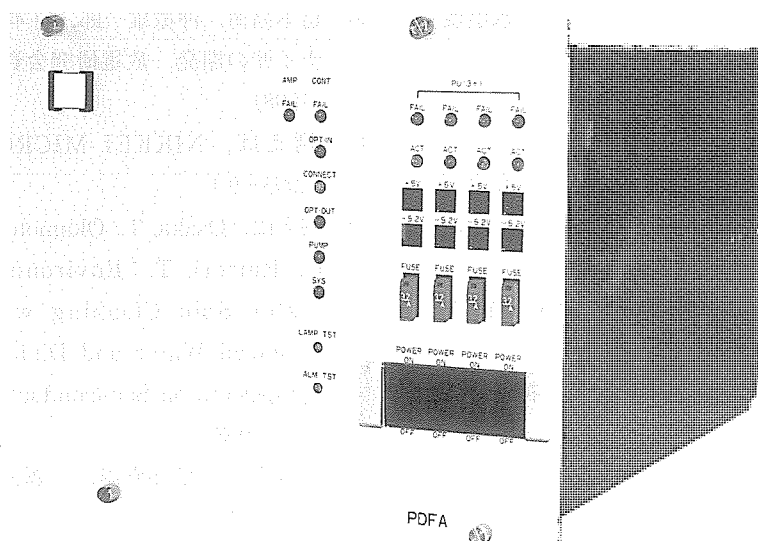
デジタル実装汎用架ハーフユニットサイズとなっており、SDH端局装置に容易に混載できます。



1.3μm帯光ファイバ増幅器の構成

## 1.3μm帯光ファイバ増幅器の仕様

項目	仕様
適用光ファイバ	1.3μm零分散ファイバ(SMF)
光出力	13dBm以上(入力+3dBm時)
信号光波長範囲	1.290~1.325μm
励起光波長範囲	1.010μm
電源電圧	DC-48V (2系統受電可能)
消費電流	1A以下
警報監視項目	光入力信号断、光出力コネクタ外れ、AMP部出力異常、AMP部励起故障、警報制御部異常、電源部異常
警報出力	無電圧接点出力及びLED表示
周囲温度	0~40℃



1.3μm帯光ファイバ増幅器の外観

## バーチャルエンジニアリング実行環境

三菱電機㈱  
顧問  
工学博士  
伊藤利朗



設計にコンピュータを活用して設計効率を上げると同時に時間と費用のかかる試作回数をできるだけ減らさなければならぬという考え方が一般化してかなりの年月が経つ。事実、コンピュータの普及に伴い、現在ではコンピュータを活用していない設計オフィスはないと言っても過言ではない。しかしながらその活用の仕方といえば、ほとんどの場合、組織単位で必要に応じてコンピュータとアプリケーションソフトウェアを購入し、組織単位で閉じた形でこれらを活用しているに過ぎないと言えるのではなからうか。

このような使い方では、コンピュータの活用といっても、各職場に蓄積されたデータベースを使って、既存製品のマイナーチェンジかせいぜい改良開発のための設計をするということにとどまる。これではコンピュータを生かしたことになる。こう考えて筆者らが開発を始めたのが、バーチャルエンジニアリング実行環境(Implementation Environment for Virtual Engineering: IEVE)である。

筆者らが提唱するIEVEとは、最近発達の目覚ましいネットワーク技術を活用して、組織を越えて、場合によっては企業を越えて、コンピュータとデータベースを活用し、いわゆるマルチカルチャーな集合天才をコンピュータネットワーク上に構築し、企業さらには一歩進んでバーチャル企業の創造性を高めようとするものである。

IEVEでは、イントラネット上にスーパーコンピュータや高機能のエンジニアリングワークステーションが複数個組織を越えて利用できる形で接続されていて、個々の技術者は、所有のパソコン上にあるWWWブラウザすなわちナビゲータから、これら高機能のコンピュータに蓄積されたデータベース、CAEモジュール、設計例などが組織を越えて検索できるだけでなく、所有のパソコン上にあるフロントエンドないしはJavaのアプレットとして手元に受け取ったフロントエンドに必要なものを記入するだけで、高

機能コンピュータを活用した仮想数値実験を実行し、結果を手元で見ることができるのである。

設計者は、高機能なコンピュータ環境が駆使できるので、材料の分子設計、流体の渦問題、複雑な電子回路の電磁放射の解析、三次元空間における荷電粒子の振る舞いなど、従来の各職場に閉じたコンピュータ環境ではとうてい計算不可能な複雑な問題を、必要に応じてどの職場にいても解くことができるのである。

更に一歩進んで三菱電機で開発したA4サイズの超薄型ノートパソコン“Pedion”を装備したブリーフケースを“ブリーフケースオフィス”として携帯しておれば、自宅であろうと、保養地におろうと、思い付いたときに、インターネット上で暗号かぎ(鍵)の技術を駆使するだけで、このブリーフケースオフィスで仮想数値実験や生産設計が実行できるのである。

ちなみに、創造的なアイデアは、決められたオフィスでコンピュータにしがみついているだけでは決して生まれえない。自由な雰囲気の中で、計算の対象をモデル化し、このモデルでコンピュータ実験を行い、結果が出れば一度ベッドの上などに寝転んだり、散歩したりしながら、側面から結果の物理的意味や意義などを考えてみる。このような形で思考を巡らしていると、思い違いや近似のやり過ぎなど、モデルを変更すべき個所が見えてくる。この時点で早速コンピュータに戻ってモデルを修正し、コンピュータ実験を再び実行する。

このような自由な雰囲気での思考と実験の繰り返しがあってはじめて、コンピュータから創造が生み出されるのである。換言すれば、IEVEとブリーフケースオフィスと自由な雰囲気こそ創造性が要求されている日本の技術者に必ず(須)なものというのが筆者の主張である。

# バーチャルエンジニアリング 実行環境 (IEVE) ナビゲータ

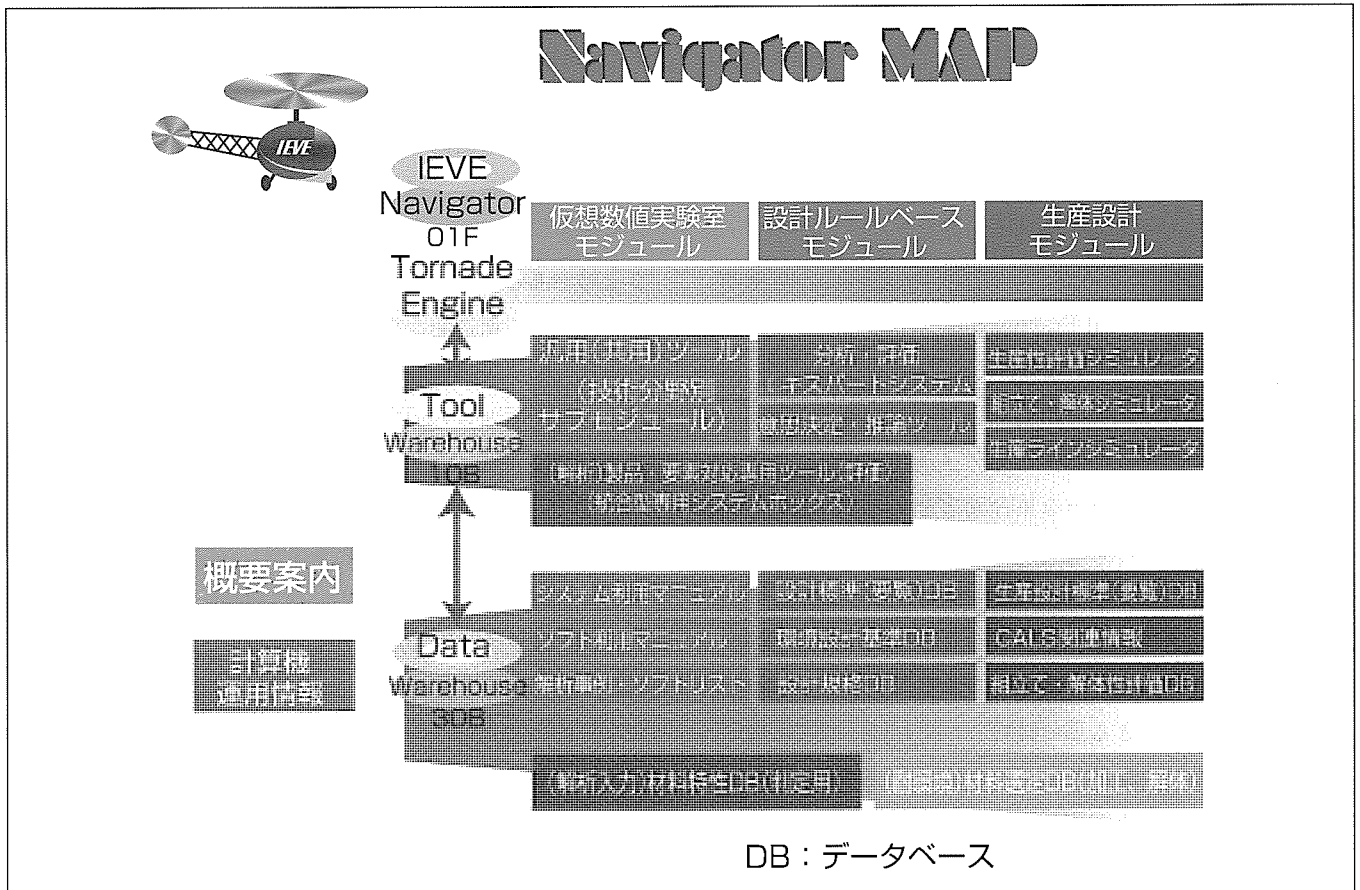
井上彰夫\* 古藤 悟\*  
吉岡純夫\* 西中川勇人\*\*\*  
田宮洋一\*\* 山内英士\*\*\*

## 要 旨

コンピュータの性能向上と普及に伴い、コンピュータを用いて製品を仮想的に創造しその機能・意匠・性能を評価できるならば、現在よりも大幅に製品の開発期間を短縮できるとともに、顧客の要求の多様化に迅速に対応することが可能になる。このような設計・生産を実現するため、製品設計・生産設計・製造の各段階における製品の開発・設計・試作をコンピュータ上で仮想的に行うためのバーチャルエンジニアリング実行環境 (Implementation Environment for Virtual Engineering : IEVE) を構築中である。IEVE構想の中核となる設計・解析情報を提供するIEVEナビゲータを開発し、実用に供している。

このシステムからは、仮想数値実験室モジュール、設計ルールベースモジュール、生産設計モジュールの情報が得

られる。それぞれのモジュールにはツールウェアハウスとデータウェアハウスがある。ツール、データベースについての情報は、概要、参考文献、適用事例、ソフトウェア導入案内、試使用などで構成される。全社のコンピュータからイントラネットとWWW(World Wide Web)ブラウザを利用して、シミュレーションに使う構造、熱流体、電磁気、分子設計などの解析ツールや、製品の設計・開発に用いる材料特性データベース、設計標準データベース、参考資料などの情報を得ることができる。今後は、ナビゲータ経由ネットワーク上で稼働できるツール、データベースの拡大を図るとともに、検索・推論によるナビゲータの知能化などを追加し、その機能を強化する予定である。



## バーチャルエンジニアリング実行環境 (IEVE) ナビゲータの特長

IEVEナビゲータは、イントラネットを介して解析ツールとデータベースなどの技術情報に高速にアクセスできるシステムで、各設計者は、机上の端末であるパソコンやエンジニアリングワークステーションなどから、これらの技術情報を簡単に検索/参照することができる。一部のソフトウェアは、このナビゲータ上で稼働又はダウンロードすることもできる。

### 1. ま え が き

コンピュータネットワークの分野では、クライアント／サーバシステムの時代が終わり、イントラネットの時代へシフトしつつある。イントラネットは、インターネット技術を活用した企業内情報通信システムで、企業の生産性に結び付く情報を幅広くユーザーに対して効率良く提供することを目的としている。製品開発・設計の分野でも、近年、製品の開発にコンピュータを最大限に活用し、開発期間を短縮するためのイントラネット利用コンピュータネットワークシステムの構築が検討されている。バーチャルエンジニアリング実行環境(Implementation Environment for Virtual Engineering: IEVE)<sup>(1)</sup>と名付けられた製品の開発・設計・試作をコンピュータ上でバーチャルに行うためのイントラネット利用の実行環境を構築中である。このIEVEのツールとデータベースの情報を提供するIEVEナビゲータを開発し<sup>(2)</sup>、実用に供している。

本稿では、このIEVEナビゲータの概要を述べる。

### 2. 開発の背景と目的

製品の開発・設計・試作に費やされる時間と労力は極めて多く、その低減は製品の開発コストの低減に大きな効果がある。コンピュータの性能向上と普及に伴い、コンピュータを用いて製品を仮想的に創造しその機能・意匠・性能を評価できるならば、現在よりも大幅に製品の開発期間を短縮できるとともに、顧客の要求の多様化に迅速に対応することが可能になる。このような設計・生産を実現するため、製品設計・生産設計・製造の各段階における製品の開発・設計・試作をイントラネットを活用してコンピュータ上で仮想的に行うためのIEVEを構築中である。このIEVEの構築構想を図1に示す。機械・構造設計などの製品設計、CAD(Computer Aided Design)やCAM(Computer Aided Manufacturing)などの生産設計及び仮想生産システムをヒューマンI/F(Interface)モジュールを介してイントラネットで結び、時間、製品の開発・設計・試作を、コンピュータ上で仮想的に行う。これは、場所や時間などの違いを越えて行うことができる。IEVEナビゲータはヒューマンI/Fモジュールに一体化したシステムで、IEVEの構築に必要なツールとデータベースの情報を提供する。これらのツールとデータベースは、主として研究開発部門のバーチャル数値実験室で開発又は使用されたものである。

### 3. IEVEナビゲータのシステム構成

IEVEナビゲータの初期画面を図2に、シス

テム構成を図3に示す。IEVEナビゲータは、社内全域とイントラネットで接続されたWWWサーバ上で構築した。したがって、社内ユーザーは、全社のコンピュータから

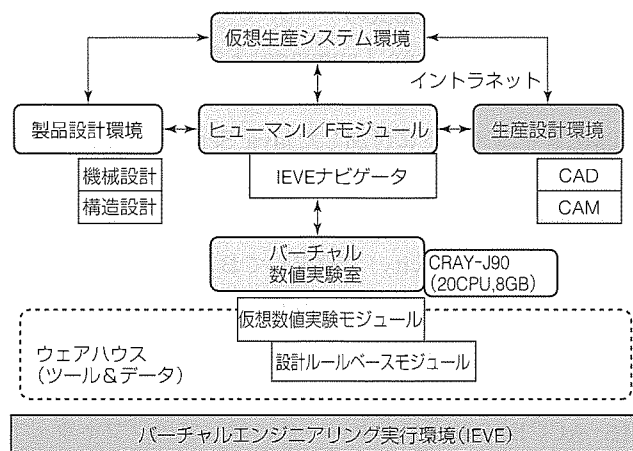


図1. IEVEの構築構想

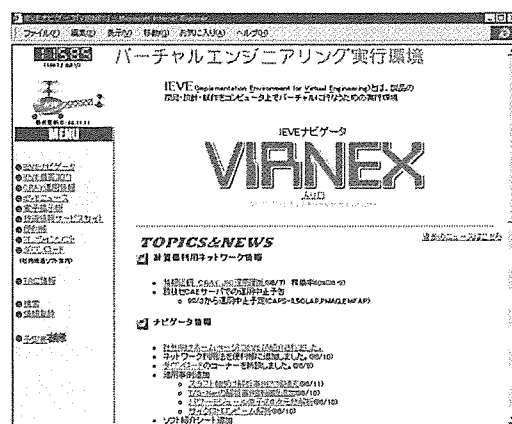


図2. IEVEナビゲータの初期画面

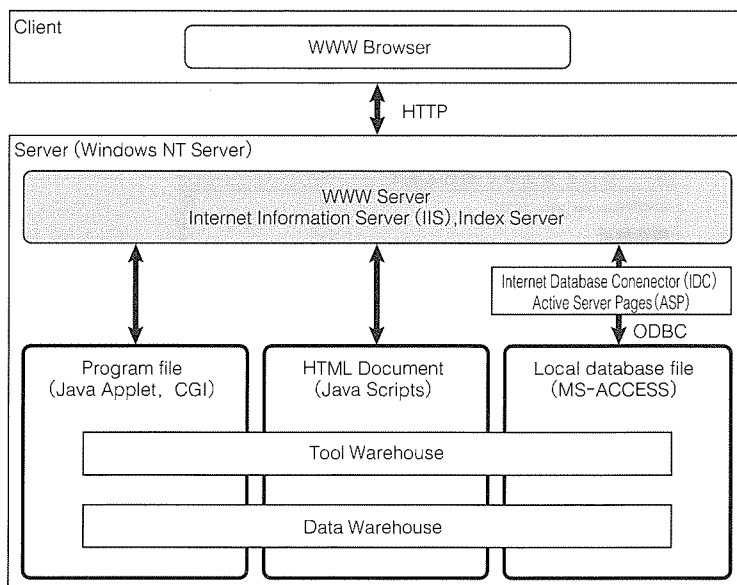


図3. IEVEナビゲータのシステム構成

WWWブラウザを利用してこのIEVEナビゲータにアクセスできる。IEVEナビゲータのサーバは、Windows NT ServerとIIS(Internet Information Server)で構築したコンピュータであり、ソフトウェア情報や適用事例を管理しているMS-ACCESS形式のデータベースファイル、HTML(Hyper Text Markup Language)ドキュメント及び計算機能プログラムファイルを格納している。計算機能では、HTMLドキュメントに付加したJava ScriptやJava Appletのほかに、CGI(Common Gateway Interface)を使用している。MS-ACCESS形式のデータベースはODBC (Open Database Connectivity)で設定しており、IDC (Internet Database Connector)やASP(Active Server Pages)を利用してHTMLを自動作成している。検索としては、HTMLドキュメントに対してはIndex Serverを用いた全文検索、MS-ACCESS形式データベースに対してはソフトウェア、適用事例、参考文献などの検索が可能である。

なお、全社に技術情報を提供する三菱電機技術情報サービスMELTIS(Mitsubishi Electric Technical Information Service)<sup>3)</sup>に対しては、計算機利用情報提供の補完機能を果たしている。

#### 4. IEVEナビゲータの概要

IEVEナビゲータからは、仮想数値実験室モジュール、設計ルールベースモジュール、生産設計モジュールについての情報が得られる。それぞれのモジュールには、ツールウェアハウスとデータウェアハウスがある。ツール、データベースについての情報は、図4の表示画面の一例に示すように、概要、参考文献、適用事例、ソフトウェア導入案内、試使用などで構成される。

表示画面は、ソフトウェア名称、特徴・機能、ソフトウェア利用環境などのそのソフトウェアの基本的な情報を提供する。さらに、表示画面での適用事例は実際に製品に使

われた事例、参考文献は関連する報告書や使用マニュアル、ソフトウェア導入案内はソフトウェアのパンフレットなどを紹介したページにそれぞれリンクしている。シミュレーションに使う構造、熱流体、電磁気、分子設計などの解析ツールや、製品の設計・開発に用いる材料特性データベース、設計標準データベース、参考資料などの情報を得ることができる。また、流体解析や原子分子挙動解析などの大規模計算用スーパーコンピュータCRAYの運用情報も提供している。

IEVEナビゲータには、構造、機構、熱流体、電磁界などの技術分野のツールとデータベースの情報が登録されている。ツールとデータベースの情報の一例として、汎用解析ツール、材料特性データベース、設計標準データベースを以下に述べる。

汎用解析ツール情報の一つとして、市販の熱流体解析ソフトウェアSTAR-CDの適用事例の表示画面を図5に示す。この適用事例では、クリーナーヘッド内の吸気流路の形状データとヘッド内吸い込み流の下流側境界条件であるホース内の吸い込み流速を設計者が入力すると、床面上の吸い込み流速分布及び静圧分布を計算して吸じん(塵)性能を推定することができる。また、ヘッド内の吸塵状況をビジュアルにアニメーション表示して、高効率吸塵を達成できるヘッド構造を検討できるようになっている。アニメーションの一部の静止画を本誌表紙に掲載した。

材料特性データベースのメニューでは、高サイクル疲労、低サイクル疲労、疲労き裂進展速度、クリープのデータベースの情報が掲載されている。図6に、高サイクル疲労強度データベース検索システムの表示画面を示す。これは、日本材料学会、科学技術庁金属材料技術研究所、社内のデータから金属材料の室温、平滑材のS/Nデータを材料ごとにまとめた設計者向けのパソコン版データベース検索システムである。

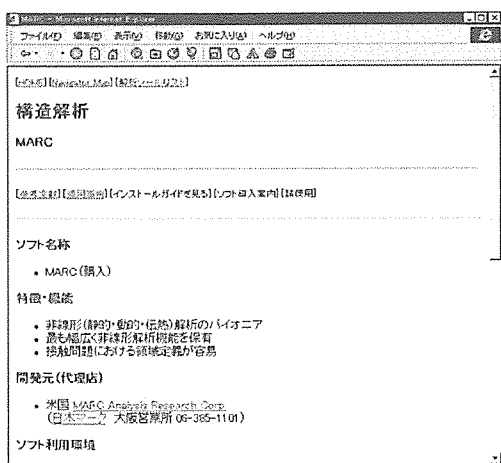


図4. 表示画面の一例

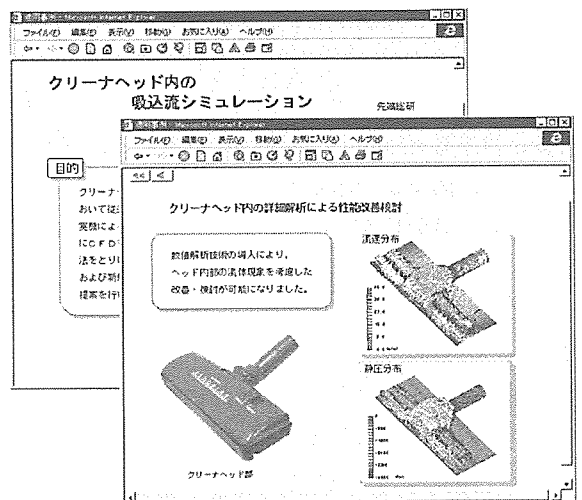


図5. 汎用解析ツールの一例



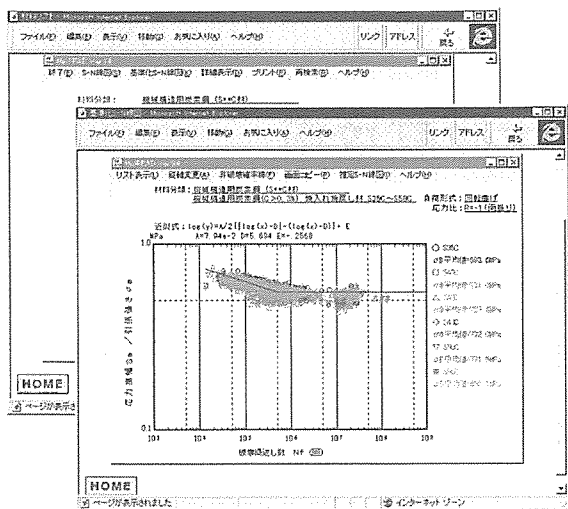


図6. 材料特性データベースの一例

設計標準データベースの情報の一例として、溶接継手の強度設計標準の表示画面を図7に示す。これは、設計標準書類をHTML化したもので、ユーザーは、ブラウザ画面上で書類を読みながら、溶接継手の静的強度、疲労強度、安全率を対話的に計算し、継手の設計を決められた手順で行うことができる。溶接継手の不溶着部の疲労強度設計用に、継手の形状・寸法、負荷様式から応力拡大係数の補正係数を設計チャートから読み取る画面のプログラムはJavaで書いた。

また、IEVEナビゲータには、社内で開発したソフトウェアの一部をダウンロードできる機能もある。ユーザーは、IEVEナビゲータから最新版をダウンロードして、これらのソフトウェアを使用できる。

さらに、IEVEナビゲータには、社内で開発したオンラインソフトウェア(Web版ソフトウェア)をWWWブラウザ上で稼働できる機能がある。この機能を使えば、いつでも、どこでも、これらのソフトウェアを使用して、迅速に計算結果を得ることができる。この機能は、会議や出張の際に大きな効果を発揮すると考えられる。また、これまでは、ソフトウェアを改版ごとにインストールすることが必要で、その都度に相当のコストがかかるという問題点があった。Web版ソフトウェアの他のメリットとして、このコストが全く要らないことも挙げられる。Web版ソフトウェアとしては、Java Appletによる疲労き裂進展寿命計算ツール、HTMLとJava Scriptによる安全率計算ツール、Java AppletとCGIを組み合わせた振動計算システムなどがある。

(注) "Microsoft" "Internet Information Server" "Index Server" "ACCESS"は、米国Microsoft Corp.の商標又は製品である。"Java"は、米国Sun Microsystems, Inc.が開発したオブジェクト指向プログラミング言語である。その他の社名及び製品名は、一般にそれぞれの会社の商標又は登録商標である。

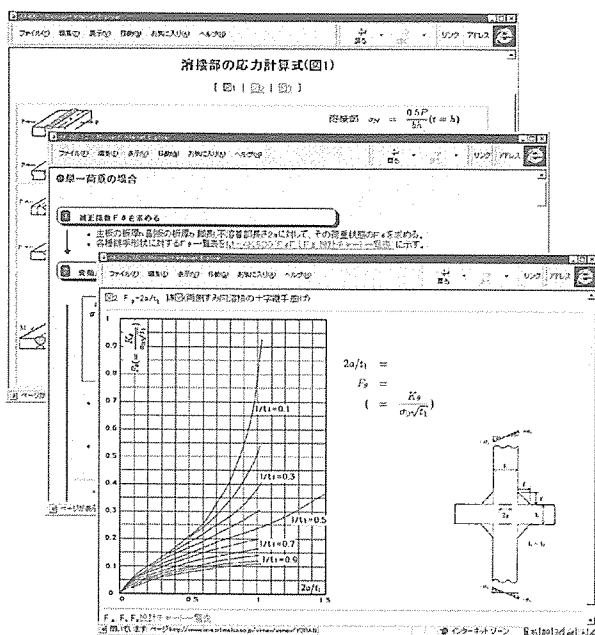


図7. 設計標準データベースの一例

### 5. 今後の展開

今後は、IEVEナビゲータの適用事例、参考文献、Web版ソフトウェア、ダウンロードソフトウェアを更に拡充する。また、設計・製造部門においてツール、データベースをナビゲータ経由で稼働できるネットワークシステムを構築するとともに、検索・推論などの機能を追加し、ナビゲータの知能化を図る。さらに、使用範囲をモバイルコンピュータ環境まで拡大し、業務効率向上を図る。

### 6. むすび

バーチャルエンジニアリング実行環境(IEVE)の構築に必要なIEVEナビゲータのシステム構成と概要について述べた。今後は、このシステムと設計・製造部門コンピュータネットワークとの連携性と親和性を高めるとともに、コンテンツの質の拡充や検索・推論機能の強化を図る。

### 参考文献

- (1) 伊藤利朗, 市川照久, 尾形仁士, 山田忠利 ほか: 高度情報化社会を読む, オーム社, 123~128 (1996)
- (2) 田宮洋一, 吉岡純夫, 井上彰夫, 宮崎政行, 佐藤 満, 西中川勇人: 仮想設計支援システム(強度設計関連), 日本機械学会講演論文集, No.974-2, 145~146 (1997)
- (3) 吉岡義弘, 中島 靖, 大師堂清美: コーポレートPPDM, CALS/EC Japan 1998 論文集, 51~54 (1998)

# 光・電子機能性材料の 新しい電子モデルによる分子設計技術

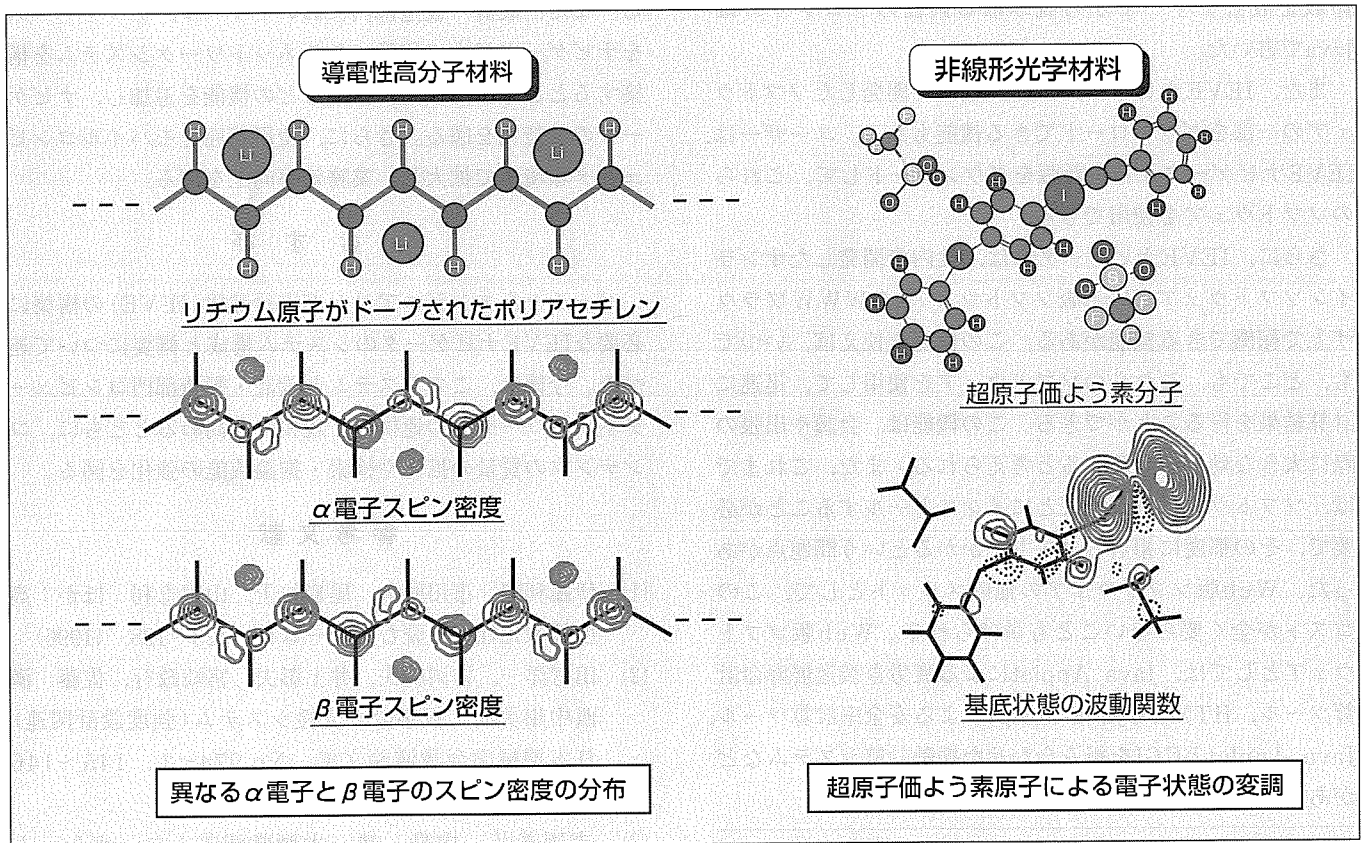
信時英治\*

## 要旨

バンド理論(結晶軌道法)は、結晶や高分子の電子状態を計算する有力な手法であるが、電子の動特性(導電性)を明確に解析することができない。そこで、電子の動的挙動を明らかにすることを目的として、新しい電子モデルに基づいたバンド理論の構築を行った。この方法を高濃度にドーブされた導電性高分子に適用した結果、従来法では説明できなかったパウリ常磁性を伴った金属的電子状態を再現するとともに、これが電子間反発的相互作用に基づくスピンドensity波の発現に起因することを明らかにした。また、高い非線形光学特性と小さな光吸収特性を持つ非線形光学材料の創出を目的として、超原子価よう素分子の分子設計を行

うとともに、新たに構築した解析手法を用いて超分極率発現起源を解析した。その結果、この分子は小さな光吸収特性下において大きな超分極率を発現し、これが超原子価よう素原子による $\pi$ 共役系電子構造の変調に起因することを明らかにした。さらに、実際にこの材料の評価を行った結果、高い非線形光学特性と小さな光吸収特性を実現できることを実験的にも実証することができた。

今後は、構築した分子設計技術を用いて、光・電子デバイス用機能性材料の開発効率化及び新規高機能性材料の創出を行っていく予定である。



## 導電性高分子材料と非線形光学材料の解析結果

三菱電機独自の分子設計技術によって、リチウム原子が高濃度にドーブされたポリアセチレンはスピンドensity波状態であり、これが新しい金属的状态を誘起することを明らかにした(左図)。また、超原子価よう素原子による電子状態の変調が高い非線形光学特性と小さな光吸収特性の両立に有効であることを実証した(右図)。

1. ま え が き

高度情報化社会の進展に伴い、高速・大容量情報処理に必要な光・電子デバイス用キーマテリアルの開発が求められている。光・電子デバイス用機能性材料は、その微視的・分子的特性が機能の発現に直接関与している点に特徴がある。機能性材料を設計する上で最も重要なことは、有力な理論的指針に基づいて分子や分子集合体における電子構造や物性を予測しかつ制御することであり、これは分子設計と呼ばれている。すなわち、分子設計を行うことによって、数限りない候補材料の中から効率良く目的とする材料を選択することや、経験的だけでは望めない全く崭新(斬)な新規機能性材料の設計や開発を行うことが期待できる。

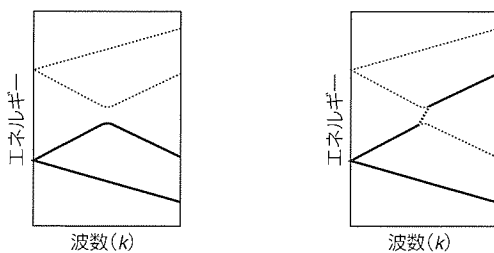
我々は、分子設計を材料開発におけるバーチャルプロトタイプングの有力な一手法と位置付け、分子設計技術の高度化及び分子設計シミュレーションによる光・電子デバイス用機能性材料の研究開発を進めてきた。

本稿では、電子機能性材料の分子設計例として導電性高分子を<sup>(1)~(3)</sup>、そして光機能性材料の分子設計例として非線形光学材料を取り上げ<sup>(4)~(5)</sup>、独自に開発した分子設計手法とこの方法によって得られた上記材料の電子・光学物性について述べる。

2. 導電性高分子材料の分子設計

2.1 バンド(結晶軌道)計算法の高度化

結晶や高分子における電子状態の解析は、通常、バンド理論(結晶軌道法)を用いて行われている。従来のバンド理論では、電子が一つのバンド上を逆格子空間における波数  $k$  に沿って非常にゆっくりと動くとともに、ブリルアン域の端まで同じバンド上にとどまっている(断熱的描像: 図1の(a))。しかし、電子が有限の速度でバンド上を動く場合、その電子は元のバンドから他のバンド上に有限の確率で遷移する(透熱的描像: 図の(b))。したがって、電子の挙動を“断熱”的に記述する従来のバンド理論は、電子の動特性(導電性)を明確に解析することができない。そこで我々は、電子の動的挙動を明らかにすることを目的として、新



(a) 断熱的描像 (b) 透熱的描像

図1. 断熱的バンド構造と透熱的バンド構造

しい電子モデルに基づいたバンド理論(対応結晶軌道法)の構築を行った<sup>(1)(2)</sup>。

図2は、開発した電子モデルの基本概念を模式的に表したものである。従来の電子モデルでは、平均的ポテンシャル場による電子の散乱だけを考慮しているために、電子は常に同一軌道上にある。一方、開発した電子モデルは、電子の動きに伴うポテンシャル場変化による散乱効果も繰り込んでいる。その結果、電子が同一対称性の軌道間だけではなく、対称性の異なる軌道の間を飛び移ることができる。すなわちこのモデルは、動的電子によって誘起される軌道(波動関数)空間対称性の破れをポテンシャル場変化として電子に繰り込んだ新しい透熱準粒子モデルである。

2.2 ドープされたポリアセチレンの電子状態

ポリアセチレン(PA)は、高濃度のドーピング領域において、ソリトン格子からパウリ常磁性の発現を伴った新しい金属の状態への一次相転移を起こすことが報告されている。しかし、この新しい金属の状態の発現機構については未だ明らかではない。そこで、PAの金属状態を透熱的電子観点から明らかにすることを目的として、リチウム原子が高濃度にドーブされたソリトン格子を持つポリアセチレン(LiPA)に対応結晶軌道法を適用した<sup>(3)</sup>。

この方法から得られたLiPAのバンド構造と有効キャリア数を図3に示す。ここで、有効キャリア数とは、この理論から導出される新しい物理量であり、導電性に寄与する

従来モデルによる電子の軌道 今回のモデルによる電子の軌道

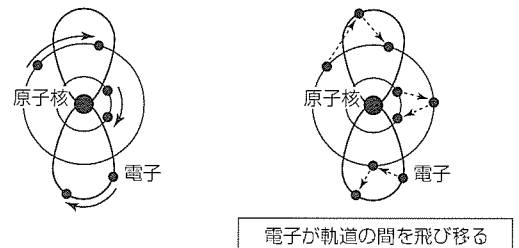
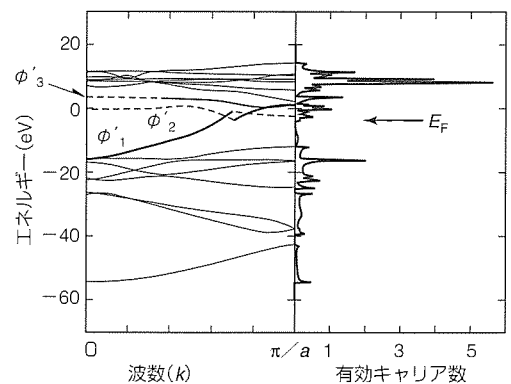


図2. 開発した電子モデルの基本概念



(a) 透熱的バンド構造 (b) 有効キャリア数

図3. LiPAの透熱的バンド構造と有効キャリア数

キャリア数を意味する。図の(a)において、フェルミエネルギー準位( $E_F$ )近傍のバンド $\phi_1$ ,  $\phi_2$ , 及び $\phi_3$ における太線と点線は、各々、炭素原子の $\pi$ 電子性とリチウム原子性のバンドを示す。また、図の(b)における実線と点線は、各々、有効“電子”キャリア数と有効“ホール”キャリア数を表す。この方法によるバンド構造は従来法によって得られたバンド構造と異なり、 $E_F$ におけるバンド $\phi_1$ と $\phi_2$ 間の交差によってバンドギャップが消失している。また、有効キャリアは $E_F$ 近傍に最も数多く分布している。これは、 $E_F$ 近傍の電子(ホール)が導電キャリアであることを明りよう(瞭)に示すものである。なお、これらの計算結果はいずれも対応する実験結果と一致している。

バンド $\phi_1$ と $\phi_2$ は、炭素原子の $\pi$ 電子性とリチウム原子性が $E_F$ において最も大きく混在(相互作用)している。すなわち、バンドギャップの消失は、電子の動きによる炭素原子とリチウム原子の電子間相互作用によって誘起される。また、 $E_F$ 近傍の有効キャリアはこの電子間相互作用に支配されていることから、LiPAの金属的導電は、電子の動きに伴うリチウム原子とPA間の“透熱”的效果が重要な役割を果たしていると考えられる。

### 2.3 スピン電荷密度波の発現

電子の透熱的效果は、結晶軌道における空間対称性の破れを引き起こす。さらに、この対称性の破れは、電子相関を伴って新しい量子状態を生起する。そこで、対応結晶軌道法による新しい量子状態の発現を電子相関の観点から検討した<sup>(3)</sup>。

表1は、電子相関の大きさを示す尺度 $r$ 、スピン密度波特性 $y$ 、全スピン角運動量 $\langle S^2 \rangle$ 、規格化されたスピン密度 $\rho$ (SD)を示したものである。また、比較のためにドーピングされていないポリアセチレンの結果も併せて示す。注目すべきことは、ドーピングされた系の $k=2\pi/3$ において、強い電子相関が起きるとともに、大きなスピン電荷密度波(SDW)が発現することである。また、このSDW発現は $r$ とヒュケル・ハバードモデルの関係から、電子間の反発相互作用の増大に起因していることが分かった。すなわち、LiPAの透熱的電子状態は電子間反発的相互作用に基づく金属的なスピン密度波状態であることが明らかとなった。

表1. ポリアセチレンにおける電子相関の大きさ $r$ , スピン密度波特性 $y$ , 全スピン角運動量 $\langle S^2 \rangle$ , 規格化されたスピン密度 $\rho$ (SD)

	$k$	$r$	$y$	$\langle S^2 \rangle$	$\rho$ (SD)
	0	0.9844	0.0001	0.0309	0.1759
リチウムドーピング	$2\pi/3a$	0.1414	0.7228	0.9800	0.9899
	$\pi/a$	0.9998	0.0000	0.0004	0.0200
ノンドーピング	0	0.9999	0.0000	0.0002	0.0132
	$\pi/a$	0.9113	0.0043	0.1695	0.4117

SDW状態はパウリ常磁性の発現を意味し、これは実験結果と一致する。しかし、従来のソリトン格子モデルではSDWを発現させることはできない。すなわち、この研究におけるSDWの発現は、ソリトン格子モデルにおける電子の透熱的效果の重要性を実証したものである。さらに、ソリトン格子における電子の透熱的状态は、電子間反発的相互作用を介して、パイエルス転移を抑制するとともに、ポーラロン状態を誘起すると考えられる。したがって、電子の透熱的效果はポーラロン状態を誘起し、新しい金属的状态に至ると結論づけられる。

## 3. 非線形光学材料の分子設計

### 3.1 新規非線形光学分子の創出

光スイッチング素子を実現するためには、大きな三次非線形光学定数 $\chi^{(3)}$ 、小さな吸光係数 $a$ 、そして短い光応答時間 $\tau$ を持つ三次非線形光学材料の開発が必要である。我々は $\pi$ 共役系有機材料に着目して、三次非線形光学材料の研究開発を進めてきた<sup>(4)(5)</sup>。これは、 $\pi$ 共役系有機材料が非共鳴領域において大きな $\chi$ (分子二次超分極率 $\gamma$ )が期待できること、高速光応答性(ピコ秒以下)を持つこと、そして分子修飾による機能の人工的な制御が可能であるからである。

$\pi$ 共役系有機分子の非線形光学特性は、分極性の $\pi$ 電子に起因している。分子二次超分極率 $\gamma$ を大きくするためには、基底状態と励起状態間における電子雲の差(電子状態の変調)を大きくすること、及び両状態間における電子雲の重なり(光学遷移確率)を大きくすることが必要である。しかし、両者はトレードオフの関係にあるだけでなく、この関係が非線形光学特性の性能指数である $\chi/a$ 値に反映される。通常の $\pi$ 共役系非線形光学材料における $\chi/a$ 値は、 $a$ の大きな共鳴領域において約 $4 \times 10^{-23} \text{ m}^3 / \text{V}^2$ である。しかし、 $\chi$ 値は $a$ 値のべき乗に比例することから、小さな $a$ と大きな $\chi$ を両立させることは容易ではない。そこで我々は、この問題の解決策として、超原子価構造の導入による $\pi$ 共役系電子構造の変調<sup>(4)</sup>を提案した<sup>(5)</sup>。

以下、具体例として超原子価よう素原子を $\pi$ 共役系主鎖骨格中に持つ系(図4)を取り上げ、分子軌道法による非線形光学特性の解析結果について述べる<sup>(5)</sup>。

### 3.2 非線形光学特性とその発現起源

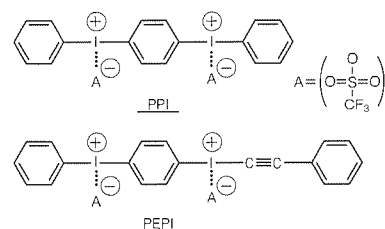


図4. 検討した超原子価よう素分子の構造

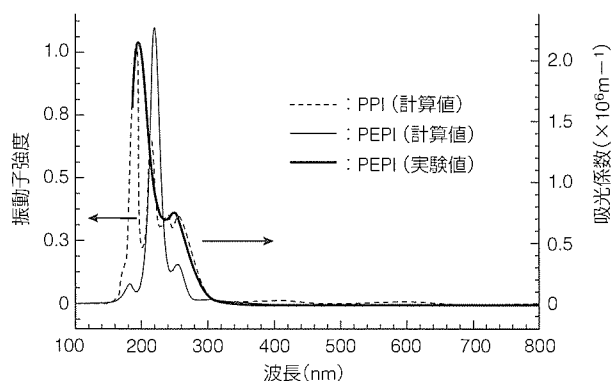


図5. PPIとPEPIの紫外可視吸収スペクトル

検討した超原子価よう素分子の紫外可視吸収スペクトルを図5に示す。ここで、点線と実線はPPIとPEPIの計算値を表し、太線はPEPIの実験値を表す。この図から、PPIとPEPIは280nm以上に吸収を持たないことが分かる。また、計算によるスペクトル形状は実験によるものとよく一致をしていることから、PEPIは近紫外可視光領域において高い光透過性を持っていることが実験からも実証された。

一方、PPIとPEPIの静電場における二次の超分極率 $\gamma$ は、各々、 $2 \times 10^{-49}$ 及び $4 \times 10^{-49} \text{ m}^5 / \text{V}^2$ と算出された。ここで、これらの値は非共鳴領域におけるものである。また、実際に第3高調波発生法(基本波 $1.06 \mu\text{m}$ )を用いてPEPIの $\chi$ を評価した結果、 $\chi$ 値は $2 \times 10^{-19} \text{ m}^2 / \text{V}^2$ であった。これは有機非線形光学材料として報告されているフタロシアニンオリゴマーの $7 \times 10^{-20} \text{ m}^2 / \text{V}^2$ をりょうが(凌駕)する値である。さらに、第3高調波長355nmにおける $\chi / \alpha$ 値は $\sim 10^{-23} \text{ m}^3 / \text{V}^2$ であり、これは $\pi$ 共役系非線形光学材料において報告されているトップレベルの値に匹敵する。ここで、通常の $\pi$ 共役系非線形光学材料は、共鳴増大効果によって $\chi$ を発現している。PEPIの $\chi$ は上に記したように非共鳴領域における値であることを考慮すると、この分子は高い非線形光学特性を持っていると考えられる。すなわち、超原子価よう素分子は、非共鳴領域における大きな $\chi$ と近紫外可視光領域における小さな $\alpha$ の両立が可能であることから、非線形光学材料として大いに期待できる。

超原子価よう素分子の最適化を図るためには、 $\gamma$ の発現起源を明らかにすることが重要である。そこで、新たに構築した解析手法( $\gamma$ 電子配置解析法)による $\gamma$ 発現起源の解析を行った。この解析法では、 $\gamma$ の発現を基底配置関数と励起配置関数間の電子遷移密度と差電子密度として理解することができる。図6は、 $\gamma_{xxxx}$ 値に最も大きく寄与する基底配置関数と1電子励起配置関数間の電子遷移密度を示したものである。大きな電荷分離がよう素原子を含めた分子主鎖骨格にわたって起きていることが分かる。これは、 $\gamma_{xxxx}$ の発現が超原子価よう素原子による $\pi$ 共役系電子構造の変調に起因することを明確に示している。すなわち、

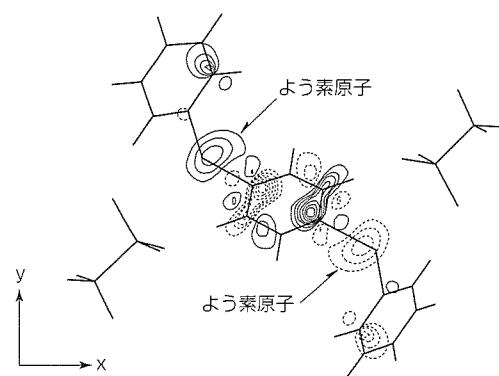


図6. PPIの $\gamma_{xxxx}$ に最も大きく寄与する配置関数間の電子遷移密度

超原子価よう素分子における $\gamma$ の発現は超原子価よう素原子の導入に基づくものであることが明らかとなった。

#### 4. むすび

光・電子デバイス用機能性材料を研究開発するために、新しい電子モデルによる分子設計技術(対応結晶軌道法)を構築した。この方法を高濃度にドーブされた導電性高分子に適用した結果、従来法では説明できなかった金属的電子状態とその発現機構を明らかにすることができた。また、斬新な分子構造(超原子価構造)を持つ非線形光学材料の分子設計( $\gamma$ 電子配置解析法)を行った結果、この材料は高い非線形光学特性と小さな光吸収特性の両立を実現できることを実験からも実証することができた。

今後は、構築した分子設計技術を用いて、光・電子デバイス用機能性材料の開発効率化及び新規高機能性材料の創出を行っていく予定である。

#### 参考文献

- (1) Nobutoki, H., Koezuka, H.: Pseudo-Band Theory with One to One Crystal Orbital Transformation, J. Mol. Struc.(Theochem), **310**, 29 (1994)
- (2) Nobutoki, H., Tsunoda, S.: Quasi-Adiabatic Band Theory with Localized Crystal Orbital Transformation, J. Phys. Chem., **100**, 6189 (1996)
- (3) Nobutoki, H.: Theoretical Studies on Quasi-Adiabatic Electronic Effects in Lithium Heavily-Doped Polyacetylene, J. Phys. Chem. B, **101**, 3999 (1997)
- (4) Nobutoki, H., Koezuka, H.: Molecular Orbital Study on Electron Confinement Characteristics in Heteroaromatic Oligomers, J. Phys. Chem., **100**, 6451 (1996)
- (5) 信時英治, 角田 誠: 超原子価よう素分子の非線形光学特性に関する理論的研究, 分子構造総合討論会要旨集, 4C01 (1998)

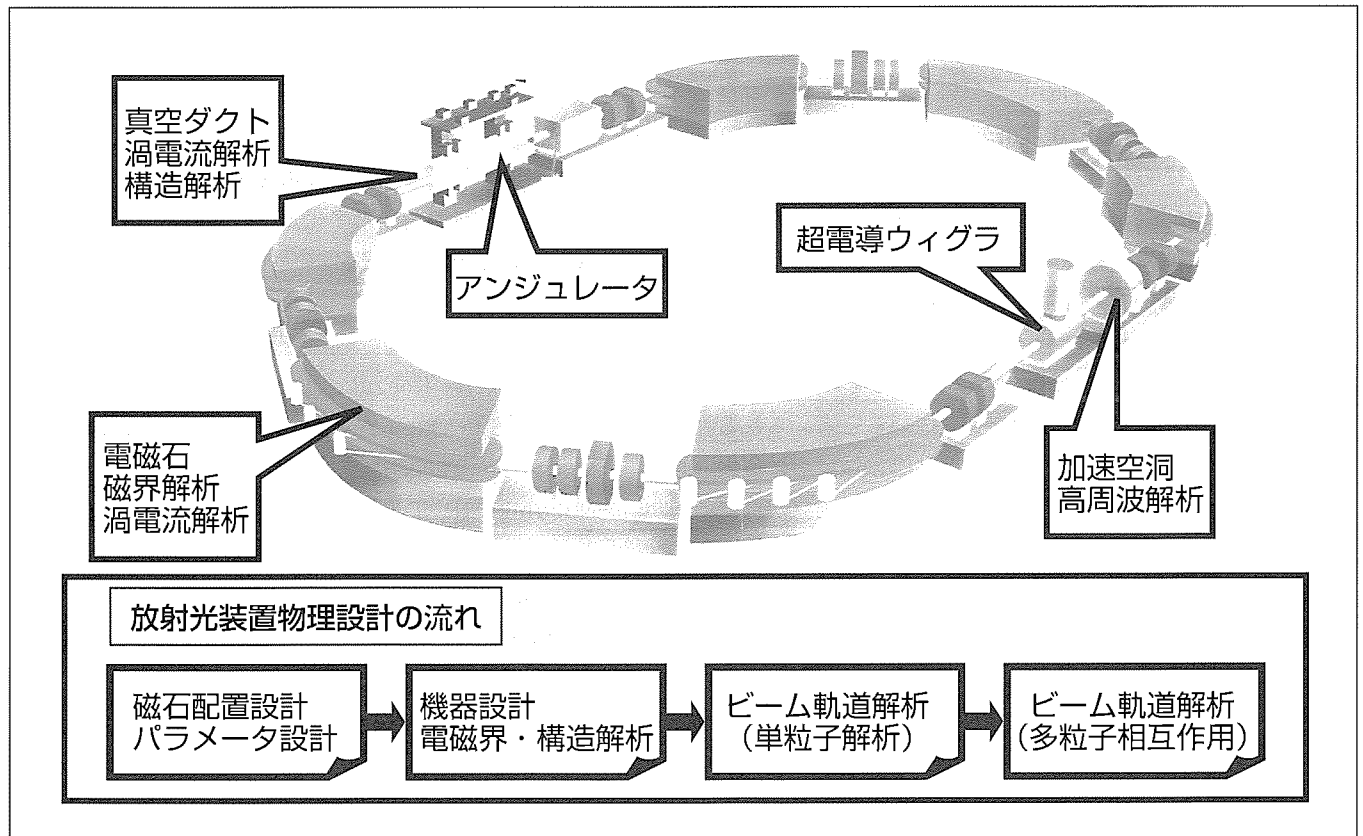
# 放射光装置のビームシミュレーション (三次元磁界対応新手法)

田中博文\*

## 要旨

光の速度近くなるまで電子を加速し、これを磁界で曲げると、シンクロトン放射光と呼ばれる電磁波を発生する。放射光は指向性が良く、高輝度であるので、先端分野への応用が試みられている。放射光装置は電子ビームの運動を電磁界で制御するので、設計には、構成機器の電磁界解析、及び電子ビームの運動シミュレーションが必要である。筆者は、超電導ウイグラの複雑な三次元磁界を精度良くモデル化でき、ハミルトン力学系の性質を崩さずに長時間のビームシミュレーションが可能な、新たな数値解析手法を開発した。さらに、上記手法を用いて、六角形状の小型放射光装置の基本設計を行った。主要パラメータは、エネルギー1 GeV、周長36m、蓄積電流300mA、エミッタンス184

nmradである。X線領域と真空紫外領域の研究が可能となるように、磁場強度7Tの超電導ウイグラとアンジュレータを直線部に配置した。この種の放射光装置が実現可能であるかは、超電導ウイグラを励磁したときのビーム周回安定領域が必要とされる領域よりも広いかどうかにかかっている。開発した手法を含む三つの軌道解析手法を用い、周回安定領域を導出した。その結果、安定領域の形状は手法ごとに異なるが、三つの手法の計算結果とも必要とされる領域よりもかなり大きな安定領域が得られることが分かった。すなわち、設計した小型放射光装置は、安定に電子ビームを蓄積できることが分かった。



## 研究用小型放射光装置と物理設計の流れ

放射光装置は、電子を高周波電界で加速する加速空洞、電子を安定に周回させる磁界を発生する電磁石、必要な波長領域の強い放射光を取り出すために使用する超電導ウイグラ、アンジュレータ等で構成される。製作前の物理設計を精度の良いシミュレーション手法で行うことが、高性能の放射光装置実現のかぎ(鍵)となる。

## 1. ま え が き

光の速度近くなるまで電子を加速し、これを磁界で曲げると、シンクロトロン放射光(Synchrotron Radiation, 以下“SR”という。)と呼ばれる電磁波を発生する。SRは指向性が良く、高輝度であるので、先端分野への応用が試みられている。産業用途では、次世代超LSI転写(X線リソグラフィ)や電子レベルの材料分析などが、また医療用途では、心臓の冠状動脈の診断等への適用が期待されている。当社では、1993年に先端技術総合研究所内にSR装置を研究試作し<sup>(1)</sup>、X線リソグラフィの実用化へ向けた研究を実施している。

SR装置のように大規模な装置は製作後に改造しながら性能を向上させるといった作業が難しく、設計段階で精度の良い数値シミュレーションを行うことが装置実現の鍵となる。

本稿では、SR装置のシミュレーション技術の現状について述べる。また、複雑な三次元磁界分布を持つ超電導ウィグラを考慮できる新しいビームシミュレーション手法についても述べる。さらに、上記シミュレーション手法を用いて設計した研究用小型SR装置について紹介する。

## 2. SR装置のシミュレーション技術

SR装置は電子ビームの運動を電磁界で制御するので、設計には、構成機器の電磁界解析、及び電子ビームの運動シミュレーションが必要である。

### 2.1 電磁界解析

SR装置設計に必要な電磁界解析としては、磁界解析、電界解析、渦電流解析、高周波解析がある。現在では汎用の解析コードが整っており、解析対象ごとに実績のあるコードを使用するのが確実である。ただし、形状が複雑で既存のコードではモデル化が難しい対象や、他コードと錬成して自動最適化を行うときには、自作のコードが必要となる場合がある。また、コンピュータの処理速度の高速化、及びメモリ容量の増加により、三次元計算が実用レベルとなり高精度の電磁界設計が可能となった。

### 2.2 ビームシミュレーション

SR装置のビームシミュレーションコードは、①磁石配置や基本的なパラメータを計算するコード、②ビームが長時間安定に周回するために必要な磁界分布を求めるビームトラッキングコード、③ビームの集団的な運動を解析する不安定性解析コードの3種類に大別できる。①、②のコードはいろいろな研究機関で開発されており、解析対象に合ったコードを導入するのが早道である。ただし、大型の装置を対象に開発されたコードが多いので、小型のSR装置に適用するときには適用可能性の判断が必要である。また、三次元的に複雑な磁界分布を持つ超電導ウィグラ等を含ん

だ解析を行う場合には、自作のコードが必要となる場合がある。③の不安定性解析コードは、解析的に不安定性の増大時間やビーム寿命を計算するコードが存在する。

一方、粒子の相互作用やビームが誘起する電磁波を考慮したビームシミュレーション手法は現在研究段階である。コンピュータの処理速度の更なる高速化が必要な分野である。

## 3. 超電導ウィグラを設置したSR装置の軌道解析コードの開発

### 3.1 シンプレクティック数値積分

電子の運動は、他の物理現象と同様に、ハミルトン力学系で記述される。ハミルトン力学系には運動の過程でシンプレクティック性を保存する性質がある。長時間のシミュレーションでシンプレクティック性を保存しないアルゴリズムを用いると、計算誤差が集積し、実際の物理現象と異なる計算結果となる場合がある。汎用の数値積分手法であるルンゲ・クッタ法やアダムス・モルトン法等はシンプレクティック性を保存しないアルゴリズムであるので、長時間のシミュレーションに用いることができない。例として、調和振動子の運動を汎用の数値積分手法であるオイラー法で計算し、位相平面(座標-運動量平面)上にプロットした結果を図1に示す。図中の×印がオイラー法による計算結果で、実線の円が理想解である。調和振動子の運動は安定であるのに対し数値解は不安定となっており、実際の物理現象と異なる計算結果となっていることが分かる。なお、短時間のシミュレーションでは、シンプレクティック性を保存しない数値解法を使用しても、集積計算誤差が把握可能であるアルゴリズムを用いれば、精度の良いシミュレーションが可能である<sup>(2)</sup>。

筆者は、超電導ウィグラの磁界をかなり正確にモデル化できる新たなシンプレクティック数値解析手法の定式化を行った<sup>(3)</sup>。超電導ウィグラ部の電子の運動を表すハミルトニアンとして以下の式を用いた。

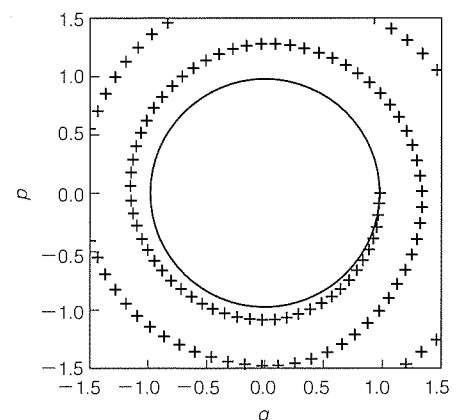


図1. 調和振動子の位相平面図

$$H[x, p_x, y, p_y, l, p, s] = \frac{p_x^2 + p_y^2}{2p} - p - e \frac{p_x A_x + p_y A_y}{p} + e^2 \frac{A_x^2 + A_y^2}{2p}$$

シンプレクティック数値解法の定式化を行う際には、解析力学で用いられる母関数を応用した<sup>(4)</sup>。母関数を用いて導出される方程式は陰解法の式であり、そのままシミュレーションに用いると長時間の計算時間を要する。そこで、陰解法の方程式を解析的に解くことで陽解法の方程式を新たに導出し、シミュレーションに用いることにした。

### 3.2 超電導ウィグラー磁界のモデル化

超電導ウィグラーはビームが進む方向の磁界が複雑に変化する。偏向電磁石や4極電磁石のようにビーム進行方向の磁界が均一であるとした近似を用いると計算誤差が大きくなる。また、低エネルギーの小型SR装置では、ウィグラー磁界の影響で軌道が大きくはずみ、ビームの集束力が大きく変化するので、ウィグラー磁界を精度良くモデル化できる手法が必要となる。超電導ウィグラーでは、以下の条件を満たすモデルの作成が必要である。

- (1) マクスウェル方程式を満たす。

$$\text{rot } B = 0, \text{div } B = 0$$

- (2) ウィグラー通過時のビーム曲げ角が0度である。

$$\int_{-\infty}^{\infty} B_y ds = 0$$

- (3) ウィグラー通過時のビーム位置ずれが0である。

$$\int_{-\infty}^{\infty} s B_y ds = 0$$

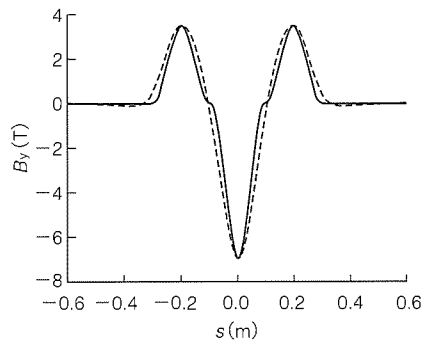


図2. 3ポール超電導ウィグラーの磁界分布

表1. 小型SR装置の基本パラメータ

	ウィグラー未挿入	ウィグラー挿入
エネルギー	1GeV	
周長	36.0m	
RF周波数	500MHz	
ハーモニック数	60	
偏向磁場強度	1.4T	
最大蓄積電流	300mA	
チューン(Hor., Ver.)	(2.27, 1.68)	
エネルギーロス	37.2kV/turn	46.0kV/turn
エミッタンス	180nmrad	184nmrad
エネルギー分散	0.082%	0.089%
ウィグラー磁場強度, 磁極数		7T, 3

- (4) 1磁極ごとに磁界周期が異なる。
- (5) 1磁極ごとに磁界強度が異なる。

筆者は、上記を満足させる以下のようなベクトルポテンシャル式を定式化した。

$$A_x = \frac{B_0}{4k_0} \cos(k_x x) \cosh(k_y y) \sin(2k_0 s + \phi_0) - \frac{B_0}{2} s$$

$$A_y = \frac{B_0 k_x}{4k_0 k_y} \sin(k_x x) \sinh(k_y y) \sin(2k_0 s + \phi_0)$$

図2に、3磁極のポールを持つ超電導ウィグラーのビーム進行方向の磁界分布を示す。点線が三次元の磁界計算コードで計算した磁界分布、実線が新たに提案したベクトルポテンシャルでモデル化した磁界分布である。両者はかなりよく一致しており、超電導ウィグラーの磁界を精度良くモデル化できることが分かる。

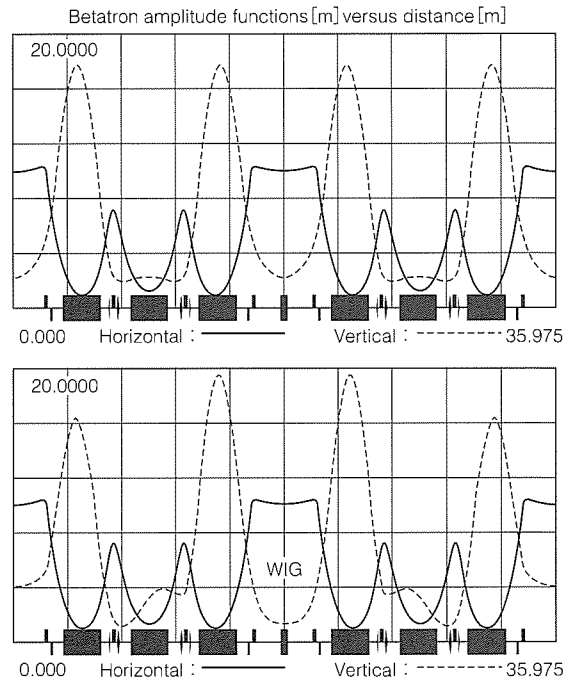


図3. ツイスパラメータ

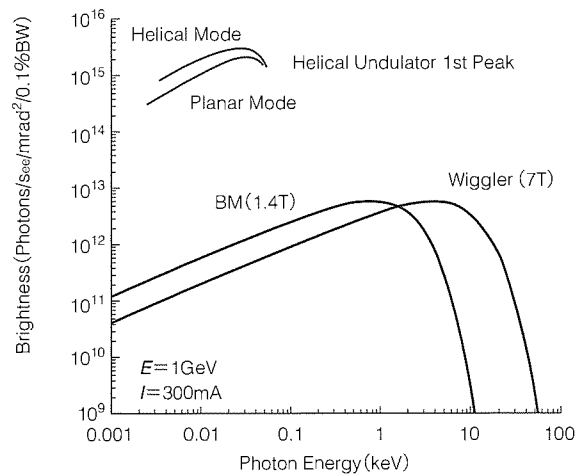


図4. SRのスペクトル強度分布



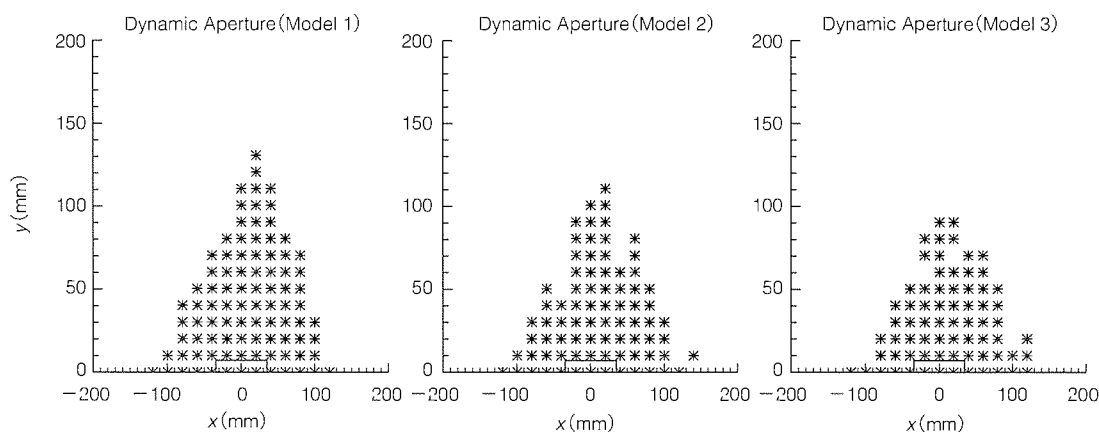


図5. 超電導ウィグラを挿入したときの周回安定領域

周回安定領域のシミュレーションは、超電導ウィグラを、①四角形偏向電磁石で近似したモデル、②アンジュレータ磁界で近似したモデル、③前章で述べたウィグラ磁界のモデル、の3モデルで実施した<sup>(5)</sup>。図5に、長直線部の

#### 4. 研究用小型SR装置の設計

##### 4.1 特長

小型SR装置を用いてX線領域の研究を行うには、超電導ウィグラが必要である。また、真空紫外領域の研究を高輝度のSRを用いて行うには、アンジュレータが必要となる。両方の研究が可能である研究用小型SR装置の基本設計を実施した。

設計した小型SR装置の概略鳥瞰(瞰)図を要旨の頁に、また、基本パラメータを表1に、超電導ウィグラの挿入/未挿入時のツイスパラメータを図3に示す。6台の偏向電磁石を用いた六角形状(TBAラティス)の装置で、エネルギー1 GeV、周長36m、蓄積電流300mAである。分散関数が0となる2本の長直線部に超電導ウィグラと円偏向アンジュレータを設置した。また、入射は150MeVの低エネルギー入射を想定した。小型のSR装置でありながら、エミッタンスが184nmradとかなり高輝度のSR装置とすることができた。

図4にSRのスペクトル強度分布を示す。磁界強度7Tの超電導ウィグラでX線領域をカバーし、円偏向と直線偏向のSRを発生できるアンジュレータで数十eV付近のエネルギー領域をカバーすることができることが分かる。

##### 4.2 ビームシミュレーション

超電導ウィグラを励磁したときのビーム周回安定領域の導出は、小型SR装置設計で最も重要なシミュレーションの一つである。磁界強度7Tの超電導ウィグラは、電子ビームの集束作用に与える影響が大きい。さらに、入射時におけるビームの集団的な不安定性を抑えるために強い強度の非線形磁界(6極磁界)をSR装置中に導入する必要がある。ビームの周回安定領域に与える影響が大きい。周回安定領域は電子ビームの集束の程度を表すパラメータであるベータトロン振動数によって大きく異なるが、設計では、ベータトロン振動数を周回安定領域が大きくなる条件に最適化した。

中心位置での周回安定領域のシミュレーション結果を示す。図中の\*が安定領域であり、中心付近の実線の四角部分がビームの安定周回に必要な領域を示す。それぞれの手法で計算した周回安定領域の形状は互いに異なるが、どの手法で計算した結果も安定周回に必要な領域よりかなり大きい。設計した1 GeVの小型SR装置に7Tの超電導ウィグラを挿入しても、電子ビームが安定に周回可能であると予想できる。

#### 5. むすび

SR装置のシミュレーション技術について紹介した。将来は、荷電粒子間やビームが誘起する電磁波との相互作用を考慮したシミュレーションが実現すると考える。

また、超電導ウィグラを挿入した小型SR装置の新しいビームシミュレーション手法を開発し、上記手法を用いて研究用小型SR装置を設計した。将来、産業・医学応用分野のSR利用技術が確立し、多数の装置建設が行われることを期待したい。

#### 参考文献

- (1) 山田忠利：三菱電機の超電導小型SRリング，日本放射光学学会誌，6，No.4，77～83（1993）
- (2) Tanaka, H., Nakanishi, T.: A Beam Tracking of a Compact Storage Ring using Superconducting Bending Magnets, Review of Scientific Instruments, 63, No.1, 777～780（1992）
- (3) Tanaka, H.: Symplectic Integration Method for Superconducting Wigglers in a Low Energy Storage Ring (to be published)
- (4) 大貫義郎：解析力学，岩波書店（1987）
- (5) 田中博文：超電導ウィグラを挿入した小型SR装置のシンプレクティック数値解析手法，日本物理学会1998年秋の分科会講演概要集，第1分冊（1998）

# 連成解析可能なEMIシミュレータ — FDTD電磁場解析とSPICE回路解析の融合 —

田邊信二\*  
山中康弘\*\*

## 要 旨

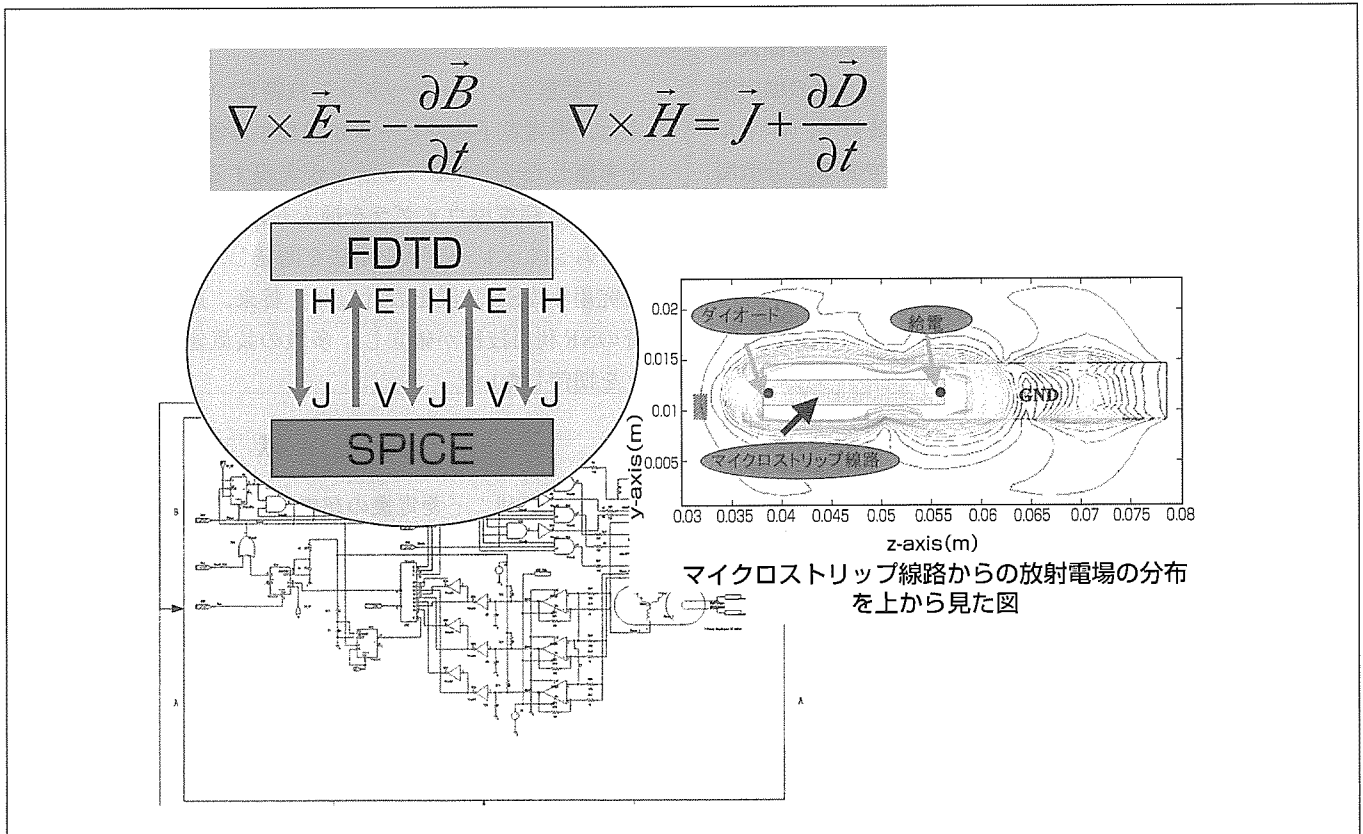
電気・電子機器の開発において、不要電磁ノイズ（電磁放射）(Electromagnetic Interference: EMI)の低減は重要な課題である。迅速な製品開発を行うため、従来のプロトタイプでの対症療法から脱却し、設計段階での計算機シミュレーションを用いたEMI値予測と対策のためのツールを開発した。

複雑な回路構成を持つIC、非線形動作をするインバータなどを含む回路からの電磁放射の解析を可能にするため、タイムドメインでの電磁場解析手法であるFDTD(Finite-Difference Time-Domain)法と、回路解析手法であるSPICE(Simulation Program with IC Emphasis)を融合し

たプログラムを開発した。

プログラムの精度検証のため、線路内での電流・電圧波形を(FDTD+SPICE)法で求めた結果と、SPICE単体で求めたものとを比較し、よい一致を得た。また、(FDTD+SPICE)手法を用い、プリント基板の給電系の揺れ(グラウンドバウンス)を解析し、モデル基板による実測とよい一致を見た。

この手法は従来有効な解析手法のなかった電源系からの電磁ノイズの解析に対する有効なツールとなることが検証された。



## FDTD電磁場解析とSPICE回路解析の融合

(FDTD+SPICE)プログラムにより、バッファICをノイズ源とするEMIやインバータなど電源系ノイズの設計段階での解析が可能となった。上に示す電場のコンタ図は、GND-SIG間にダイオードを持つプリント基板からの放射の解析例である。

## 1. ま え が き

電気・電子機器を出荷する場合、それらからのEMIの値を、VCCI(Voluntary Control Council for Interference), FCC(Federal Communications Commission), CISPR(仏語で、International Special Commission for Radio Interferenceの意)などの規格の定める値以下にする必要がある。設計段階でのEMIに対する定量的予測と図面段階でのEMI低減対策は、製品のタイムリーな開発、コストの低減に欠かせないものである。電磁ノイズの解析手法には、モーメント法(Method of Moments : MoM), 有限要素法(Finite Element Method : FEM), FDTD法などがある。いずれも、マックスウエルの電磁方程式を解く手法であり、ICの複雑な内部回路、ダイオードやFET(Field-Effect Transistor)などの非線形なスイッチング動作を考慮することはできない。そこで、今回、回路解析手法として実績のあるSPICEとタイムドメインでの電磁場解析手法であるFDTDを組み合わせるにより、近年の電子・電気機器において大きな問題となっているバッファICのスイッチング時の給電系のバウンシング、インバータ回路からのノイズの解析を可能にした。

## 2. SPICEとFDTDの融合

FDTDはタイムドメインでのアンテナの解析などに広く用いられている電磁場解析手法であり、測定器に例えると有限要素法やモーメント法が周波数ドメインでの定常状態を測定するスペクトラムアナライザとすると、FDTDはタイムドメインでの測定をするデジタルオシロスコープに当たる。FDTDはその名のとおり時間項を含む差分法による電磁場解析プログラムであり、有限要素法やモーメント法のような逆行列計算を必要としないため、128M、256Mバイト程度のメモリ容量で現実的な規模の解析が可能である。FDTDでは、マックスウエルの方程式の電場磁場のローテーションに関する二つの式、ファラデー則(Faraday's law)とアンペール則(Ampere's law)に基づき、図1に示

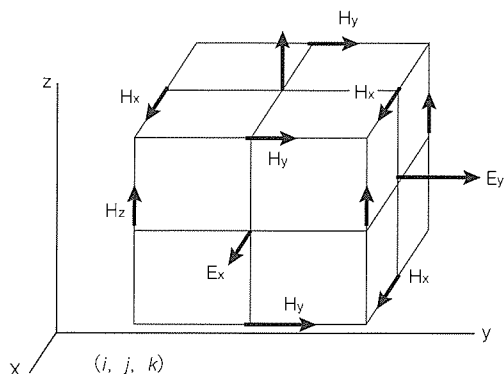


図1. Yee格子

すようなYee格子<sup>(1)</sup>を用いることにより、 $1/2 \Delta t$ 前の磁場(電場)と $\Delta t$ 前の電場(磁場)から現在の電場(磁場)を求めるという具合に順次 $\Delta t$ ごとの電場(磁場)が求まる。Yee格子は電場と磁場とをその空間座標に対し $1/2$ 格子ずつずらして配置した格子で、これによって時間項も含めた差分法が可能となる。例えば、現在 $(n+1/2)$ のある点 $(i, j, k)$ の磁場のz方向成分は、半空間格子隣り $((i-1/2, j, k)$ 又は $(i, j-1/2, k)$ )の、 $1/2 \Delta t$ 時間前の電場のx成分、y成分と空間的に同位置の $\Delta t$ 時間前の磁場のz成分と $(i, j, k)$ 位置での既知の材料定数(この場合、透磁率 $\mu$ (H/m)と磁気損失 $\rho$ ( $\Omega/m$ ))とから求まる。電場については、アンペール則から、電場の時間微分、磁場の空間微分を同様に差分式に変換し、既知の材料定数である誘電率 $\epsilon$ (F/m)と導電率 $\sigma$ (S/m)から任意点・任意時間の電場が求まる。

一方のSPICEは、1976年にUC Berkeleyから発表されて以来回路解析に広く用いられている手法で、ICなどの内部回路をLCRの等価回路に置き換えて伝送線路での反射を解析することで、プリント基板上での各線路の電流分布をFDTDと同じくタイムドメインで求める回路解析手法である。SPICEでは、LCRのほか、独立な電圧・電流源、伝送線路、ダイオード、バイポーラトランジスタ、FETなどの半導体素子が考慮できる。

この両者を図2に示すように決められたタイムステップで交互に繰り返すことにより、複雑な非線形回路を考慮した電磁放射の解析を可能にした。すなわち、FDTDは系の各点各時間における電場Eと磁場Hを求める手法であり、SPICEはある入出力点における電流Iと電圧V特性を求めるものである。図に示すように、FDTDによって求められた磁場Hはアンペール則によって電流Iに変換されSPICEへ引き渡される。そして、SPICEの出力である電圧Vは、ファラデー則によって電場Eに変換され、FDTDへ引き渡される。これを何周期分かのタイムステップ(通常1,000,000ステップ程度になる。)繰り返すことで電源回路などからのEMI放射を正確にシミュレートすることが可能と

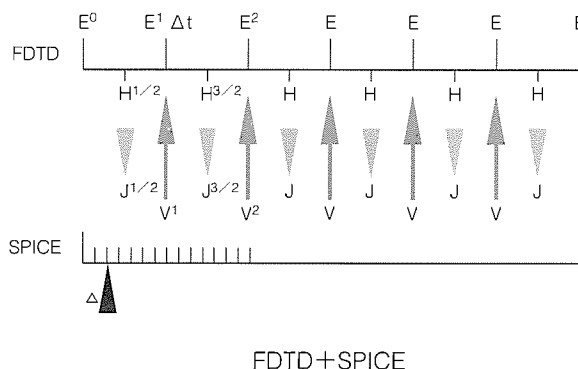


図2. FDTDとSPICEのデータのやり取り

なる。

プログラムの精度を確認するため、要旨の図に示すように、有限なグランド面状のマイクロストリップラインの一端に給電し、もう一端にダイオードを持つ回路について解析した。ここでダイオードの電流電圧特性はSPICEで求められている。要旨の図は、ある時間における電場の分布を回路上方から見たものである。図3は、ダイオードでの入力(給電部)と出力(ダイオード両端)の電圧波形を、今回開発した(FDTD+SPICE)プログラムとSPICE単体で計算したものを比較したものである。この例の場合には、グランド面はいわゆる“ベタグランド”であり、理想的な伝送線路を仮定したSPICE単体での解析結果と、分散定数系で実形状におけるマイクロストリップ線路の伝送特性を考慮した(FDTD+SPICE)プログラムでの結果はほぼ一致する。こ

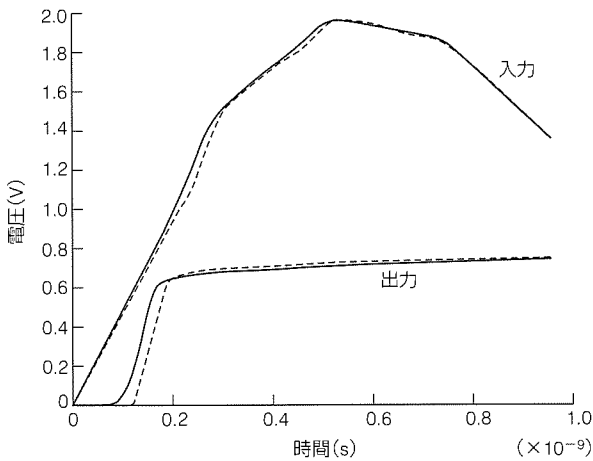


図3. 融合プログラムの精度確認

表1. 解析・実測したプリント基板の仕様

V <sub>dd</sub> 面とGND面間の距離	0.4mm
V <sub>dd</sub> 面とGND面の厚み	35μm
基板の比誘電率	4.8
発振器の周波数	30MHz
“近端”の位置	基板の左端から39mm
“中央”の位置	基板の左端から100mm

のことから、FDTDとSPICE間の各タイムステップにおけるデータの受渡し、SPICE、FDTDそれぞれにおける前タイムステップデータの受渡しが完全に行われていることを確認した。当然のことながら、放射の解析は、SPICE単体ではできない。

### 3. グランドバウンシングの解析

近年、プリント基板の高密度実装化が進み、ICのスイッチング時にグランドとV<sub>dd</sub>レベルが大きく変動する、いわゆる“グランドバウンシング”が電磁ノイズ発生の大きな原因となっている。表1に、今回解析したプリント基板の仕様を示す。このプリント基板は、長さ175mm、幅12mmの0.4mm離れたV<sub>dd</sub>層とGND層の2層からなる基板上に、30MHzの発信器とバッファIC(LVT244)を配したものである。図4は解析結果の検証のために試作した実験用基板であり、その仕様は解析モデルと同じにしている。解析では、図5に示すように、バッファICとバイパス抵抗からなる回路をSPICEに持たせ、付加となるV<sub>dd</sub>、グランド面をFDTDメッシュに分割して解析している。図6の点線で示す入力によるゲートの30MHzでの“開け閉め”により、V<sub>dd</sub>-GND間電圧はバウンシングする。バッファICのV<sub>dd</sub>-GND両端のバウンシング電圧波形を図6の実線で示す。このバウンシングは、おおよそ基板の時定数(共鳴周波数の測定から算出)である5nsで減衰している。バウンシング波形は、モデル基板を用い電波暗室で測定した実測とよ

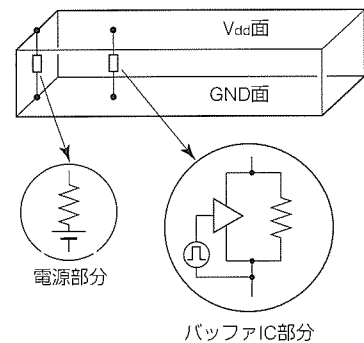


図5. 解析モデル

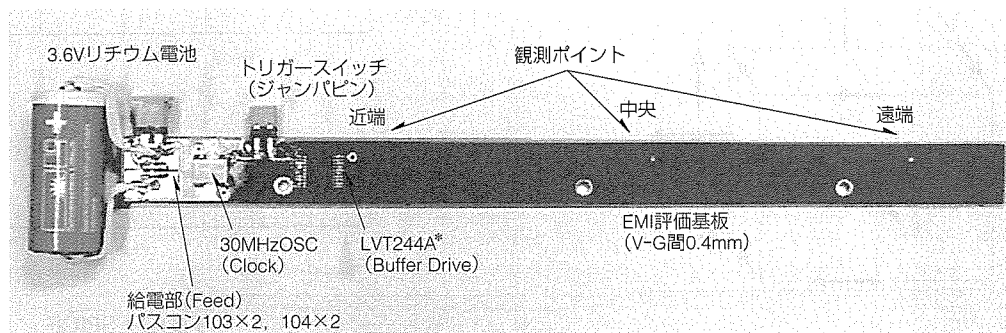


図4. 実測用プリント基板

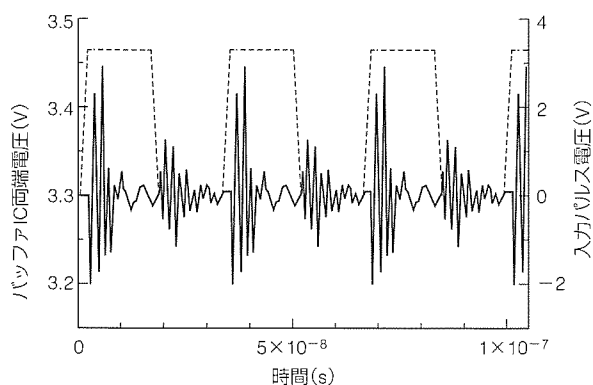


図6. 解析バウンス波形

く一致している。

#### 4. む す び

ICなどの複雑な電子回路，FET，ダイオードなどの非線形アクティブ素子を持つ回路基板からの不要電磁輻射(EMI)を解析するため，アクティブ素子部分は回路解析ツールであるSPICE，線路などの分散定数系部分，放射解析はFDTDに受け持たせ，SPICEとFDTDをタイムドメインで繰り返し計算するプログラムを開発した。

これにより，

- (1) ダイオードを含むマイクロストリップ線路のダイオー

ド出力端の電圧特性を，上記組合せプログラムと(マイクロストリップ部を理想伝送線路とした。)SPICE単体で解析した電圧特性を比較し，両者の一致，すなわち，FDTDとSPICE間のデータの受渡しが行われていることを確認した。

- (2) 軽量小型化したプリント基板からのノイズ発生源の主な原因の一つであるICのスイッチング時のグラウンドバウンスをSPICE+FDTDプログラムで解析し，モデル基板による実測値とよい一致を見た。

今後，インバータなどに起因する電源系ノイズの解析，アクティブ素子を含む回路からの放射解析に広く適用していく所存である。

#### 参 考 文 献

- (1) Yee, K. S.: Numerical Solution of Initial Boundary Value Problems involving Maxwell's Equations in Isotropic Media, IEEE Trans. Antennas and Propagation, 14, 302~307 (1966)
- (2) Kobidze, G.: Incorporating SPICE into an FDTD Code, EMC'99(Tokyo) (To be published)
- (3) Nishizawa, A., Shimazaki, M., Tanabe, S.: Ground Bouncing Analysis using a Program linking FDTD and SPICE, EMC'99(Tokyo) (To be published)

# LSIパッケージ構造設計支援システム

佐藤 満\*  
安田直世\*\*

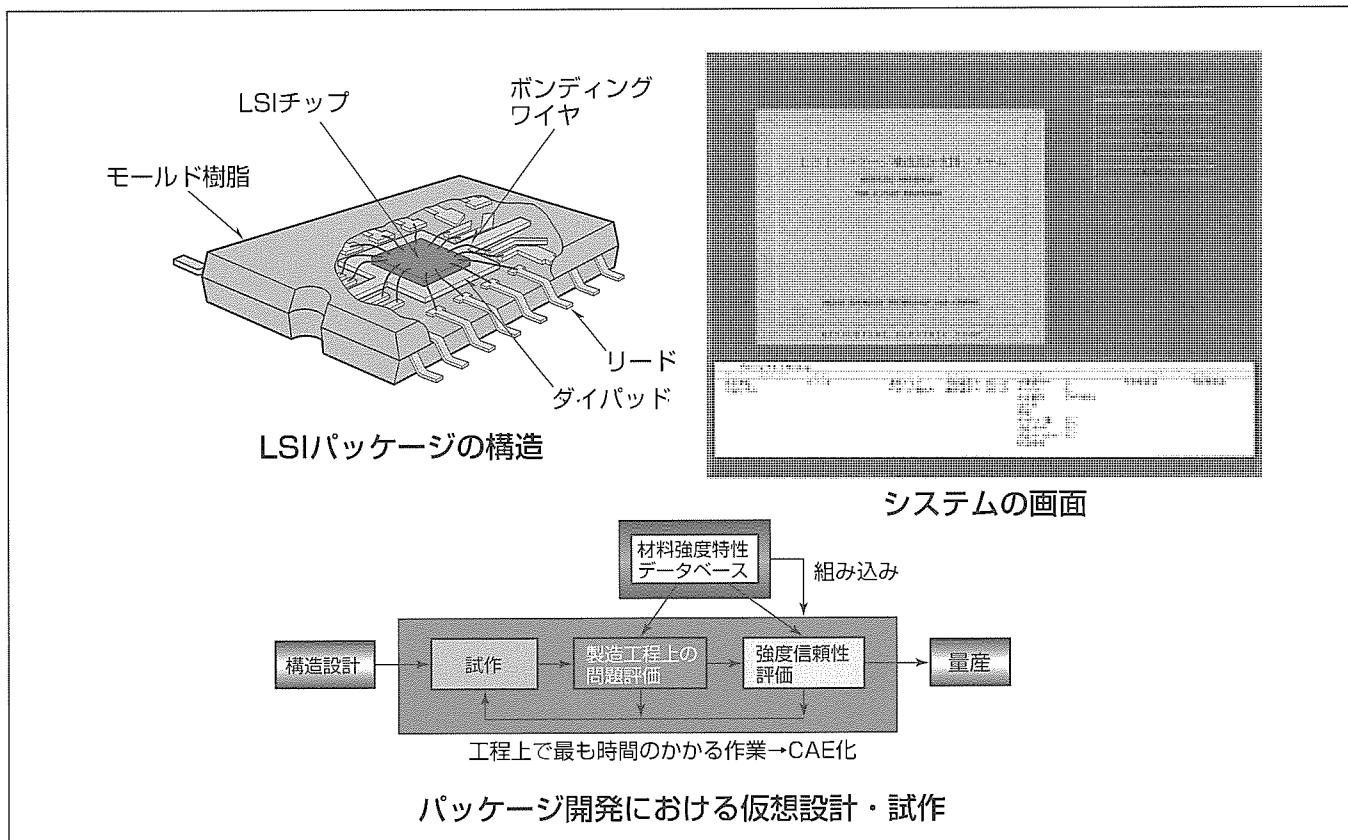
## 要 旨

DRAM混載ASIC, 携帯電話用フラッシュメモリ等の先端パッケージの開発においては, 一層の微細化・高密度化・複雑化の傾向が進んでいる。信頼性の高いパッケージ構造開発には設計段階での十分な検討が重要となる。また, 競争力強化が要求されるプラスチックパッケージ等の基幹製品では, 信頼性の確保, 製品の低コスト化, 開発の短縮化が必要である。

この要求に対する解答がコンピュータ上での仮想試作及び仮想信頼性試験であり, これは, 従来の試作を繰り返す半経験的設計手法や, 設計完了後に多数のサンプルを投入する信頼性確認試験を大幅に省略できる可能性を秘めている製品開発手法である。

半導体パッケージの構造に関する技術課題としては, チップのダイボンド時の熱変形・熱応力を始めとして, 樹脂モールド後の残留変形・応力の低減, 及び基板実装時のクラック(樹脂に吸湿された水分が加熱され水蒸気圧として作用しパッケージが割れる現象。)の防止などがある。

今回開発した設計支援システムは, パッケージモデルの作成時間を従来の1ケース数時間に対して数分に短縮できる自動メッシュ機能を搭載し, 変形や応力分布, さらにリフロー時のはく離やクラックの評価パラメータを設計現場で容易に得ることができる。また, 材料定数・強度特性データベースによる評価機能などの搭載によってLSIパッケージの構造設計が大幅に効率化される。



## LSIパッケージ構造設計支援システムと開発目的

このシステムは, 樹脂モールドLSIパッケージをコンピュータ上で仮想設計・試作を行うことを目的として開発された統合化構造設計支援ツールである。操作体系をメニュー形式として設計者の使いやすさを追求した。これにより, パッケージ開発上最も時間のかかる工程を半自動化し, 量産までの時間の短縮を可能にした。

### 1. ま え が き

最近のDRAMやASIC等のLSIパッケージの開発における最大の課題は、開発期間の短縮による早期市場投入及び試作コスト削減である。この要求にこたえるためには、設計の初期段階におけるシミュレーションによる構造設計面での信頼性評価が十分に行えるCAEシステムの構築が必ず(須)である。

図1に、代表的なパッケージの構造設計における主な機械的設計課題を示す。LSIパッケージの製造工程では、Siチップをダイパッドに接合し、チップとリード間にワイヤボンディングを行った後、素子部分を樹脂で封止し、リードを実装形態に合わせて曲げ加工する。その後、使用条件下での信頼性を確認するために、種々の条件による信頼性評価試験を行う。以上の一連の工程では、LSIパッケージが異種材料で構成されているために、特に製造時や試験時の熱負荷に起因した変形や応力などに対する強度検討が重要になる。このため、それらの評価を設計者が容易に実行できるように、上記の工程全体を評価対象とするLSIパッケージ構造設計支援システムを開発した。

### 2. システムの構成

図2にシステム全体の解析フローを示す。このシステムでは、パッケージ設計に必要な解析項目を加工工程ごとにメニュー形式で盛り込んで、操作体系を極力単純にすることにより、設計者がパッケージを試作する以前に構造検討を行えるように工夫している。プリプロセッサでは、単位系、加工工程、パッケージのタイプと寸法、熱負荷条件、材料定数の各設定と、自動メッシュ生成及び解析計算実行までが行われる。ポストプロセッサでは、解析結果を変形図、応力コンタ、主応力ベクトル、界面応力分布等で表示し、さらに、評価画面で最大主応力を材料強度値と比較した結果を表示する。

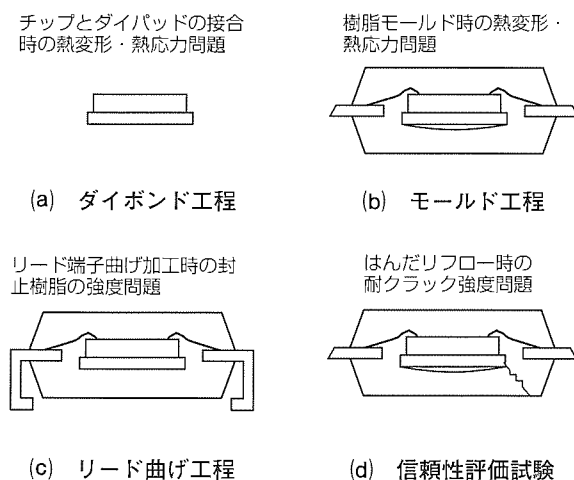


図1. LSIパッケージの機械的評価課題

加工工程は以下の代表的な7工程を想定し、これに対応する解析機能を組み込んでいる。

- (1) ダイボンド工程(熱変形・熱応力)
- (2) モールド工程(熱変形・熱応力)
- (3) リード曲げ工程(樹脂への機械的応力)
- (4) ヒートショック工程(過渡温度分布・過渡熱応力)
- (5) ヒートサイクル工程(熱変形・熱応力)
- (6) リフロー工程(水蒸気圧・熱応力ではなく離・割れ)
- (7) 吸湿解析工程(樹脂内部の吸湿量分布)

モデル形状を決定すれば、メッシュの分割数や材料定数も各工程を通して一貫して固定され、メッシュサイズの違いによる誤差が生じやすい応力集中部でも比較が可能となるので、どの工程が設計制約条件となるかを明確にすることができる。各工程では選択した現象に応じて解析ソルバ(有限要素法:FEM, 又は境界要素法:BEM)が選択され、そのソルバに応じたメッシュデータが生成される。また、このシステムは材料定数・強度特性データベースを内蔵しているため、各部分の材料定数を候補一覧から選択するだけで設定でき、またポストプロセッサの評価画面では、各工程で求めた強度パラメータ(応力など)を材料強度値と比較して判定結果を自動的に表示する。

### 3. システムの特長

#### 3.1 自動メッシュ生成機能

このシステムでは、設計者の負担を最小限に抑えるため、自動メッシュ生成機能を搭載している。設計者は、図3に示すような各パッケージモデルに合わせたサイズ設定画面で指定された必要な寸法を入力する。形状確認は画面上で

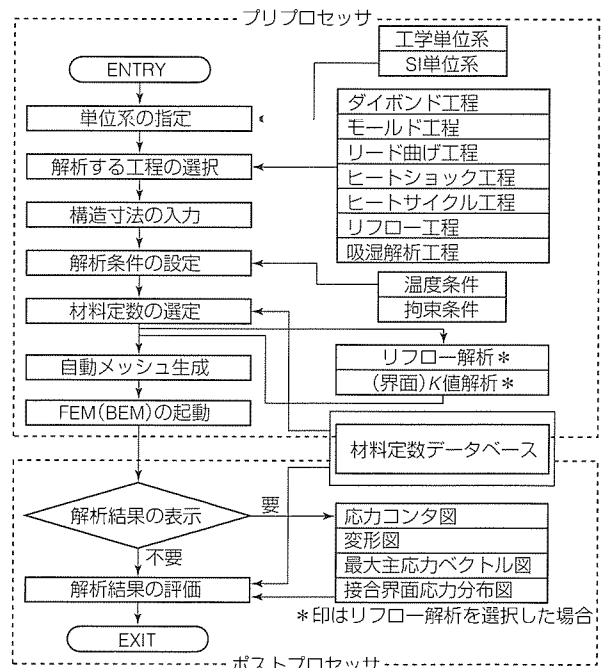


図2. システム全体の解析フロー

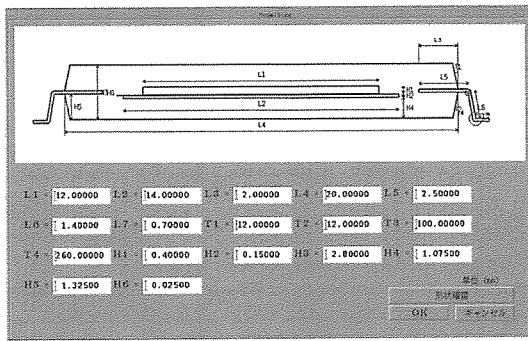


図3. モデルサイズ設定画面例

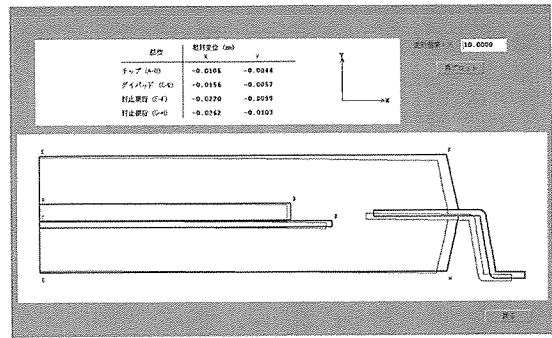


図6. 変形図表示例

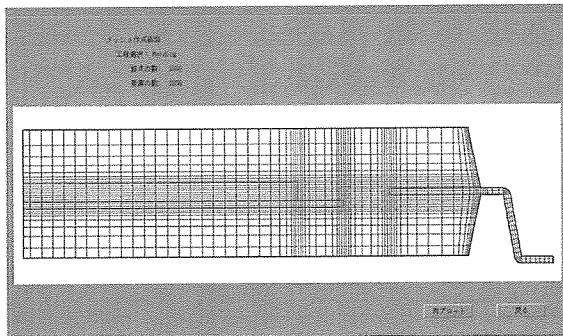


図4. 自動メッシュ生成後の画面

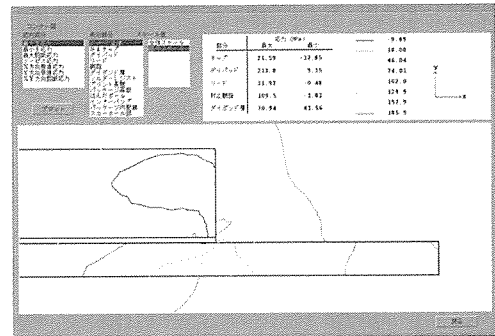


図7. コンタ図(応力集中部)表示例

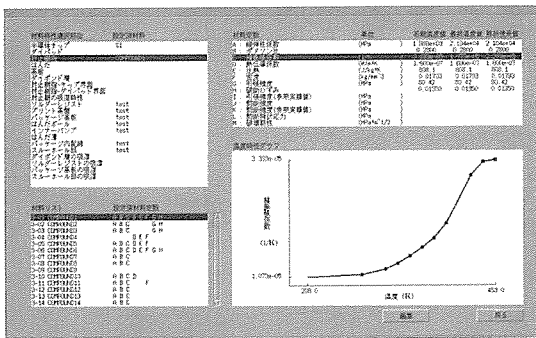


図5. 材料定数・強度特性データベース画面

瞬時に行える。その後、メッシュ生成ボタンを押すと、図4のような有限要素メッシュが十数秒で自動的に作成される。

### 3.2 材料定数・強度特性データベース

解析に必要な材料定数及び機械的・熱的特性は、図5のように、各種測定実験結果や文献値等をデータベースとして組み込んでいる。各材料特性は温度依存性データとして保存されており、解析には各温度条件での値が用いられる。これらの材料特性は各工程を通して一元化されたマスターデータベースで管理されており、各工程間の応力や変形等の比較が極めて容易に行える。また、必要に応じて材料や特性データの新規登録が可能である。

## 4. 解析例の紹介

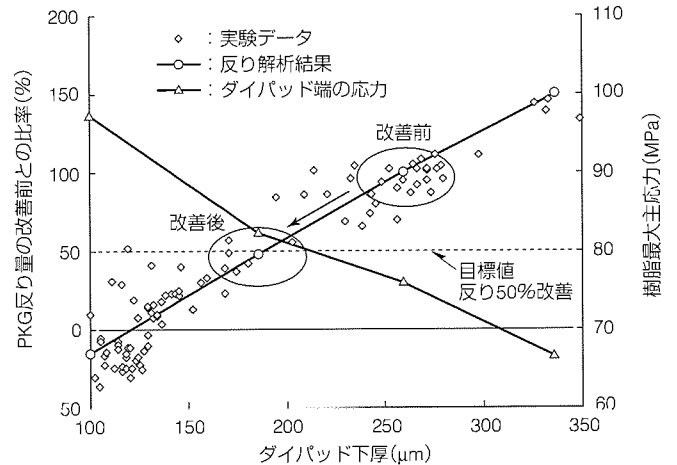


図8. ダイパッド下厚に対する反りと最大主応力の関係

このシステムの機能の特長的なものに関して数例の解析例を紹介する。

### 4.1 モールド工程の熱変形・熱応力の解析例

図6及び図7に、QFPパッケージの樹脂モールド時の熱変形と熱応力の結果表示画面を示す。樹脂モールドは453Kの高温で行われるため、室温まで冷却すると線膨脹係数の違いによって樹脂に残留応力が生じ、パッケージに反りが発生する。また、Siチップの端部の樹脂に応力集中が生じる。パッケージ設計時には反りと応力双方を抑える構造が必要となる。図8に示すように、ダイパッド下厚に対して両者は一般に相反する傾向にある。ここでは反りが



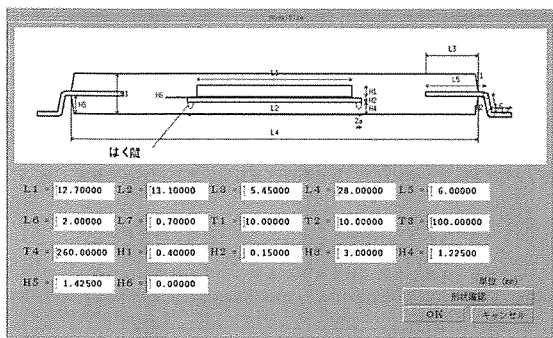


図9. 界面はく離解析モデル

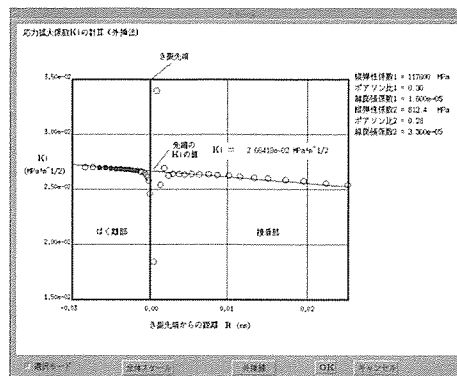


図11. 界面の応力拡大係数計算画面

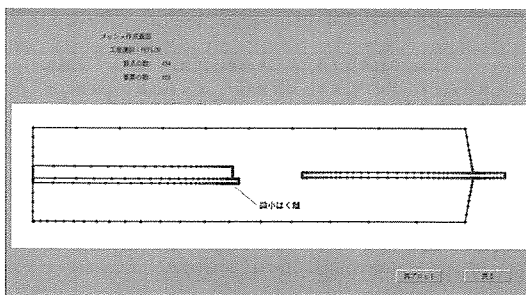


図10. 界面はく離解析用の境界要素メッシュ

表1. 解析時間の比較例(QFPのモールド時の解析例)

項目	今回のシステム	従来CAE
FEMモデル作成時間	30秒	1時間
材料定数設定時間	60秒	10分
拘束条件設定	10秒	20分
解析時間	80秒	30秒
結果ポスト処理時間	60秒	30分
トータル時間/ケース	240秒	2時間

開発目標値に収まるように設計値を改善した例を示している。

#### 4.2 リフロー時の界面はく離解析例

このシステムでは、信頼性評価をコンピュータ上で行うために、熱応力によるダイパッドのはく離進展、及びダイパッド下面はく離後の水蒸気圧によるクラック発生を考慮できる機能を付加している。ここでは、その中でQFPパッケージのダイパッドと樹脂間の界面はく離解析機能の例を紹介する。

プリプロセッサでリフロー工程を選択した後、界面はく離解析を選択すると、モデル寸法設定画面において、図9に示すように、ダイパッド端部に自動的に微小はく離が設けられ、これを界面き裂とみなして図10のような境界要素メッシュを用いて解析が行われる。設計者は特にき裂を意識せずに各部寸法のみ入力すればよい。計算の終了後、き裂部分の変形結果から界面の応力拡大係数  $K_i$  が図11のように対話的に求められた後、データベース中の評価温度での界面破壊じん性  $K_c$  と比較される。  $K_i < K_c$  であれば、微小はく離が発生しないと判定する。

この解析例では、成形温度453Kからリフロー温度533Kまでの加熱で  $0.027\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$  の応力拡大係数が発生するが、データベース中の533Kの界面破壊じん性  $K_c$  ( $0.07\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ ) と比較して小さく、はく離進展なしと判定される。もしこの要件を満たさない場合は、初期メニューに戻り、材料の再選定や構造形状の変更を行う。このコンピュータ上での材料と構造形状の絞り込みによって、

信頼性試験を実際に行うまでの試作個数や最終設計仕様決定に要する時間を削減できる。

リフロー解析工程には、以上の解析例のほかに、リフロー時の吸湿による水蒸気圧の計算機能、水蒸気圧がダイパッドのはく離部分に加わった場合の微小き裂を用いた解析機能が組み込まれている。また、別途吸湿のみに特化した二次元非定常吸湿拡散解析機能も備えている。

なお、表1に、このシステムと従来のCAE評価にかかる時間の比較を行った例を示す。解析時間が大幅に減少していることが分かる。このようにLSIパッケージを構造パラメータを変更しながら設計できるこのシステムは、設計効率化に有効な方法として今後が期待できる。

## 5. む す び

LSIパッケージ開発における製造工程や信頼性試験時の熱負荷に起因した変形や応力に対する構造検討をコンピュータ上で行う設計支援システムを開発した。このシステムは、工程全体の評価をメニュー形式で自動的に実行できる。今後、設計者が製造現場で容易に利用でき、設計の大幅な効率向上が期待できる。

### 参考文献

- (1) 佐藤 満, 吉岡純夫, 谷 周一, 樋口徳昌, 三角和幸: LSIパッケージの構造強度評価システムLSTEPの開発, 日本機械学会第73期通常総会講演会講演論文集(I), 253~254 (1996)

# ユーザーフレンドリなファンの設計支援システム

## 要 旨

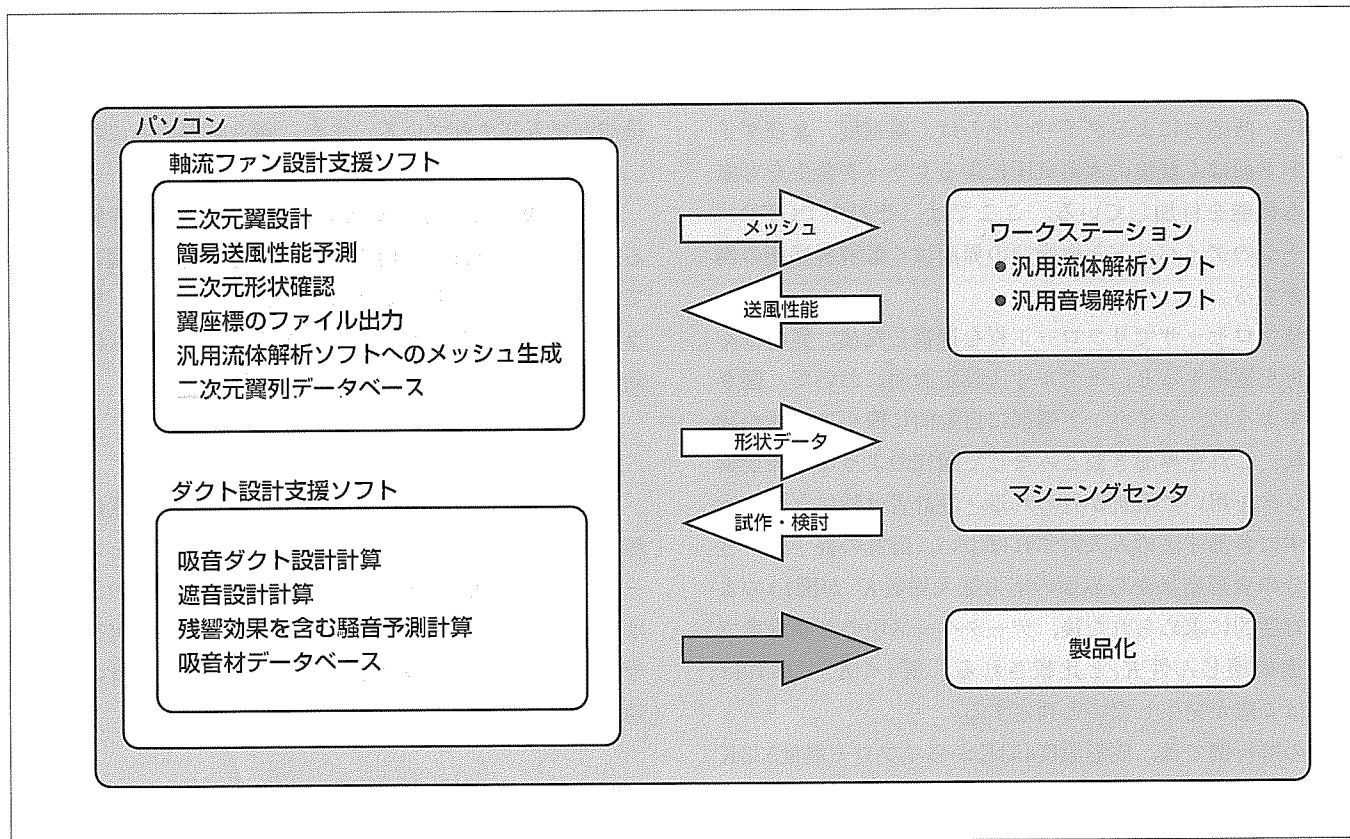
パソコンやマシニングセンタなどハードウェアの発達とウィンドウズやネットワークなどのソフトウェア環境の充実に伴い、マンマシンインタフェースの向上と計算時間の短縮化、データベースの共通化が現実のものとなった。これらの利点を軸流ファンの設計と吸音ダクトの設計に応用し、初心者にも使いやすく自由度が高い設計支援システムを開発した。

軸流ファン設計支援ソフトは、ファンの三次元形状の設計、形状の確認、簡易的な送風性能の予測が可能である。また、形状データを用いた自動メッシュ作成ツールにより、EWS上の汎用数値流体解析ソフト上に数分で流体要素を

作成でき、計算機上で送風性能を精度良く予測できる。さらに、汎用データフォーマットとして出力された形状データをマシニングセンタに送り、ファンの試作時間を短縮できる。

ダクト設計支援ソフトは、吸音材をデータベース化し、関連する計算式を含めたので、減音量の検討が従来よりも短時間で可能となった。また、騒音に関する一般的な計算法についても網羅しているので、吸音ダクト設計だけでなく、一般的な騒音に関する計算がパソコン上で可能である。

これらのシステムによって、ファンや吸音ダクトの机上検討に要する時間を大幅に短縮できた。



## ファン設計支援システムの概要

軸流ファンの設計や吸音ダクトの消音設計などの各種設計ツール、データベースをWindows上に構築した。ファイル出力は、EWS上の汎用ソフトやマシニングセンタなどに対応させ、高精度化と試作時間の短縮を図った。また、吸音材をデータベース化し、検討時間の短縮化を図った。

## 1. ま え が き

大型発電機やトランスの冷却装置、家庭内換気扇、エアコンなどの要素部品として用いられるファンの設計では、送風性能の予測と吸音ダクトなどによる低騒音化が重要である。

従来、ファンの送風性能予測や形状設計、吸音材などを用いる吸音ダクト設計には、Fortran等で記述したシステムを用いていた。これらのシステムは、入力作業が煩雑であったり拡張性に乏しいため、通常の設計者が容易に使用できるものではなかった。

近年のパソコンの発達とウィンドウズなどのソフトウェアの充実に伴い、計算時間の短縮化、入出力の簡易化、データベースの共通化が可能となった。この利点を生かして、ファンや吸音ダクトを容易に設計できるファン設計支援システムを開発した。

本稿では、このシステムを構成する軸流ファン設計支援ソフトとダクト設計支援ソフトについて述べる。

## 2. 軸流ファン設計支援ソフト

軸流ファンの設計支援ソフトの概要を図1に示す。各プログラムはVisual-Basicで作成されており、プルダウンメニューによって実行する。以下に、各プログラムの詳細を説明する。

### 2.1 ファン形状設計

ファンの翼面形状を設計する手法として、所望の風量と静圧から速度三角形を求め二次元翼列データベースを用いて翼素設計する方法と翼素の設計パラメータを定め実験のデータベースを基にする方法がある。前者の方法は試作が限られている大型送風機に、後者はファンの騒音特性や大きさに制限を持つ家電機器に用いられることが多い。

ファンの形状設計プログラムの構成を図2に示す。各翼

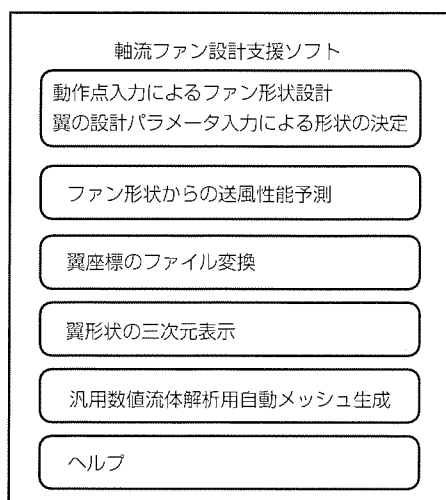


図1. 軸流ファン設計支援ソフトの構成

素パラメータの修正を可能にするため、各ステップを分割し、その出力結果を次のステップで読み込ませている。

風量と静圧からファンの翼形状を設計する場合、各半径位置での流れ場を二次元円筒座標系に展開し、翼素前後の速度三角形から各半径位置での理論全圧上昇(オイラーヘッド)を求める。各半径での圧力損失を差し引いた後、所定の静圧になるまで速度三角形の収束計算を行う<sup>(1)</sup>。各半径位置での入り口と出口の流れの角度が定めれば、結果を画面上に表示させ、問題がなければ、ファイルに出力する。

この計算結果を次のプログラムで読み込み、NACA65系統翼のデータベース又は円弧翼のデータベースから翼の迎え角や反り角などを選定し、画面表示させる。

各パラメータを確認後、座標計算プログラムを起動すれば、翼の座標を二次元的に表示(図3)し、ファイルに出力する。

翼素の設計パラメータからファンの形状を作成する場合は、その出力ファイルを直接座標計算プログラムに読み込ませる。

### 2.2 送風性能予測

大型発電機などに用いるファンは、高効率が要求されているので、動作点を最高効率点にする必要がある。一方、

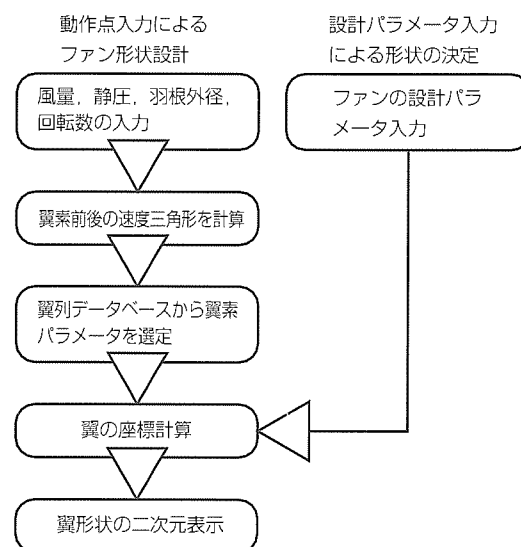


図2. ファンの形状設計のフロー

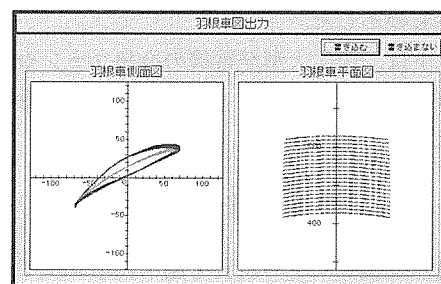


図3. ファン翼の二次元表示

動作点が最大効率点よりも低風量側になると、翼が失速し、サージングを起こしやすい。そこで、使用される風量範囲内の送風性能を予測し、設計動作点がサージング域にないことを確認する必要がある。各翼素の流れ場を二次元ポテンシャル流れと仮定して、Schlichtingの三点法<sup>(2)</sup>を用いた解析から得られたパラメータを補正後、翼素から得られる平均静圧と効率を各風量に対して求めることが可能である<sup>(1)</sup>。この例を図4に示す。

### 2.3 翼座標ファイル出力

軸流ファンの翼座標は、三次元性を持つため、データ数が多く煩雑となりやすい。そこで、図面添付用に円筒座標系のデータフォーマットとマシニングセンタや汎用数値流体解析ソフトに読み込みが可能なユニバーサルファイル形式のデータフォーマットを出力可能とした。

### 2.4 三次元表示

翼形状は、三次元性を持つので、二次元表示だけでは詳細の様子が分からないことが多い。そのため、翼形状を画面上に三次元で表示させた。出力画面を図5に示す。CRT上で三次元的に形状を眺める場合、翼を自由に動かさせた方が形状を確認しやすい。そこで、マウスで自由に移動・回転・拡大できる機能を持たせた。

### 2.5 自動メッシュ生成ソフト

翼形状の出力データを用いて、汎用流体解析ソフト上のマクロコマンドをパソコン上で作成可能とした。出力されたマクロコマンドをネットワークでEWSに転送し、汎用流体解析ソフト上で、メッシュを構築する。作成したメッシュの概要を図6に示す。メッシュ数を10万としたとき、その作成時間は約10分である。

解析時間は、一つの動作点につき、3時間である。実験結果と計算結果を比較し、十分な精度が得られていることを確認している。この方法は、前述の送風性能予測よりも計算時間を必要とするが、製品化した場合の流れの非対称性やファン以外の部品の影響なども考慮でき、より精度の高い予測が可能となる。

### 2.6 ヘルプ

ウィンドウズのアプリケーションの特長として、ヘルプを容易に作成できる点が挙げられる。ヘルプにはファン形状パラメータの定義や計算手法などを記述し、初心者でも理解できるものとした。

このソフトは、既に大型発電機の冷却ファンや家電品のファンの設計に適用されており、ファンの高効率化と低騒音化に寄与している。

## 3. ダクト設計支援ソフト

ダクト設計支援ソフトの概要を図7に示す。このソフトは、各騒音の計算に必要なプログラムとデータベースをウィンドウズ上のプルダウンメニューにまとめたものである。

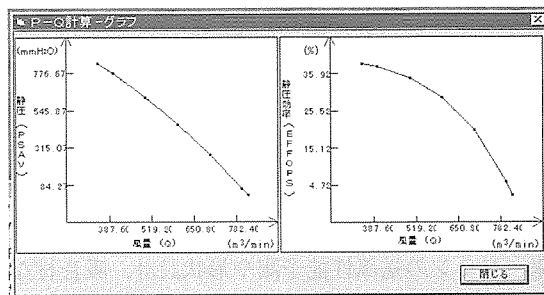


図4. 送風性能予測出力図

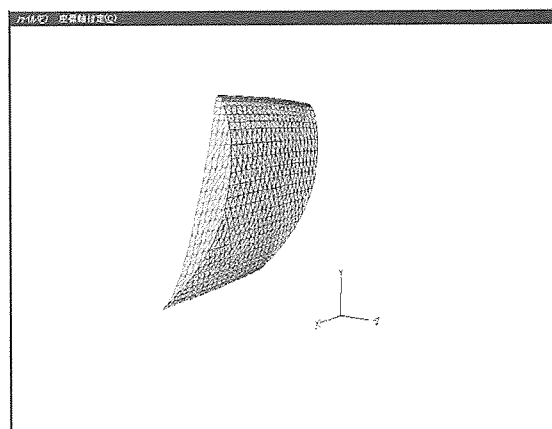


図5. 翼の三次元表示画面

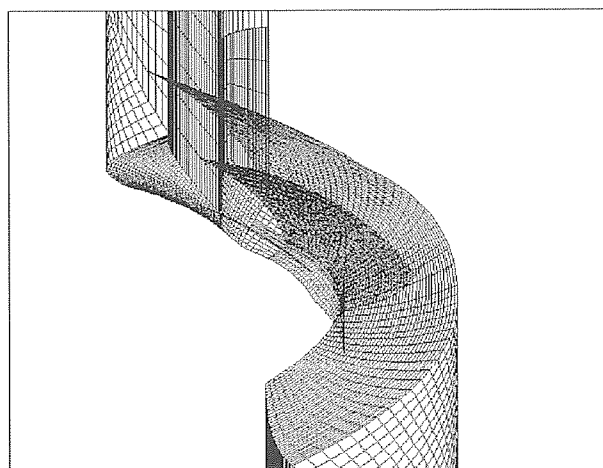


図6. 汎用解析ソフト上の翼回りのメッシュ

プログラムの代表として、ここでは吸音ダクト設計について述べる。

図8に、プルダウンメニューで起動する吸音ダクト設計入力画面を示す。吸音ダクトによる騒音の減音量は、Bruelの式<sup>(3)</sup>によって計算される。

入力する際に、吸音率のデータベースを管理するプログラムを呼び出し、必要な材料を入力する。垂直入射吸音率のデータベースプログラムを図9に示す。グラスウール、ロックウール、ウレタンなど種類別にファイルを分けており、それぞれのデータ名を選択すれば、各吸音率の数値や

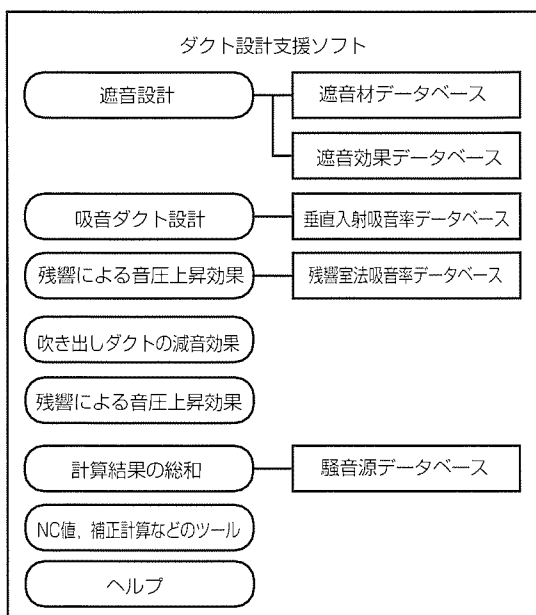


図7. ダクト設計支援ソフトの概要

販売元などを知ることができる。また、グラフボタンを押せば、選択した材料の吸音率がグラフ化される。特定の周波数で最大の吸音率を持つ材料を探すことも可能である。

すべての入力を終了し、計算ボタンを押せば、減音量がグラフ化されて出力される。計算結果をファイルに保存後、他の計算や騒音源のデータベースと併せて、騒音の総量を計算する。

このソフトによって、机上検討に要していた時間を大幅に短縮でき、吸音材による送風機の減音設計の最適化が可能となった。このソフトは、消音型シロッコファンの設計に適用され、従来比80%のコンパクト化を可能とした。

#### 4. むすび

ウィンドウズの特長を生かしたパソコン上のファン設計支援システムについて紹介した。このシステムによって通常のエンジニアが机上検討に要する時間を短縮化でき、データベースの共通化と数値計算への応用が可能となった。

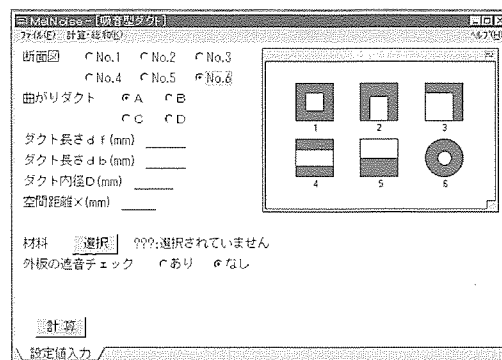


図8. 吸音ダクト設計入力画面



図9. 垂直入射吸音率データ画面

このようなパソコン上のソフトを中心としたシステムが充実すれば、EWS上の汎用解析ソフトやマシニングセンタなどへのデータの共通化が図られ、試作回数の低減、設計精度の向上が可能となると思われる。

#### 参考文献

- (1) 生井武文・井上雅弘：ターボ送風機と圧縮機，コロナ社（1988）
- (2) Schlichting, H.：VDI-Forshungsheft, 447（1995）
- (3) 長友宗重：空気調和設備の騒音制御，鹿島研究所出版会（1963）

# WWW対応圧縮機軸振動計算システム

羽下誠司\* 橋本裕美\*\*  
 福島康之\* 鈴木賢志\*\*  
 月居和英\*\*

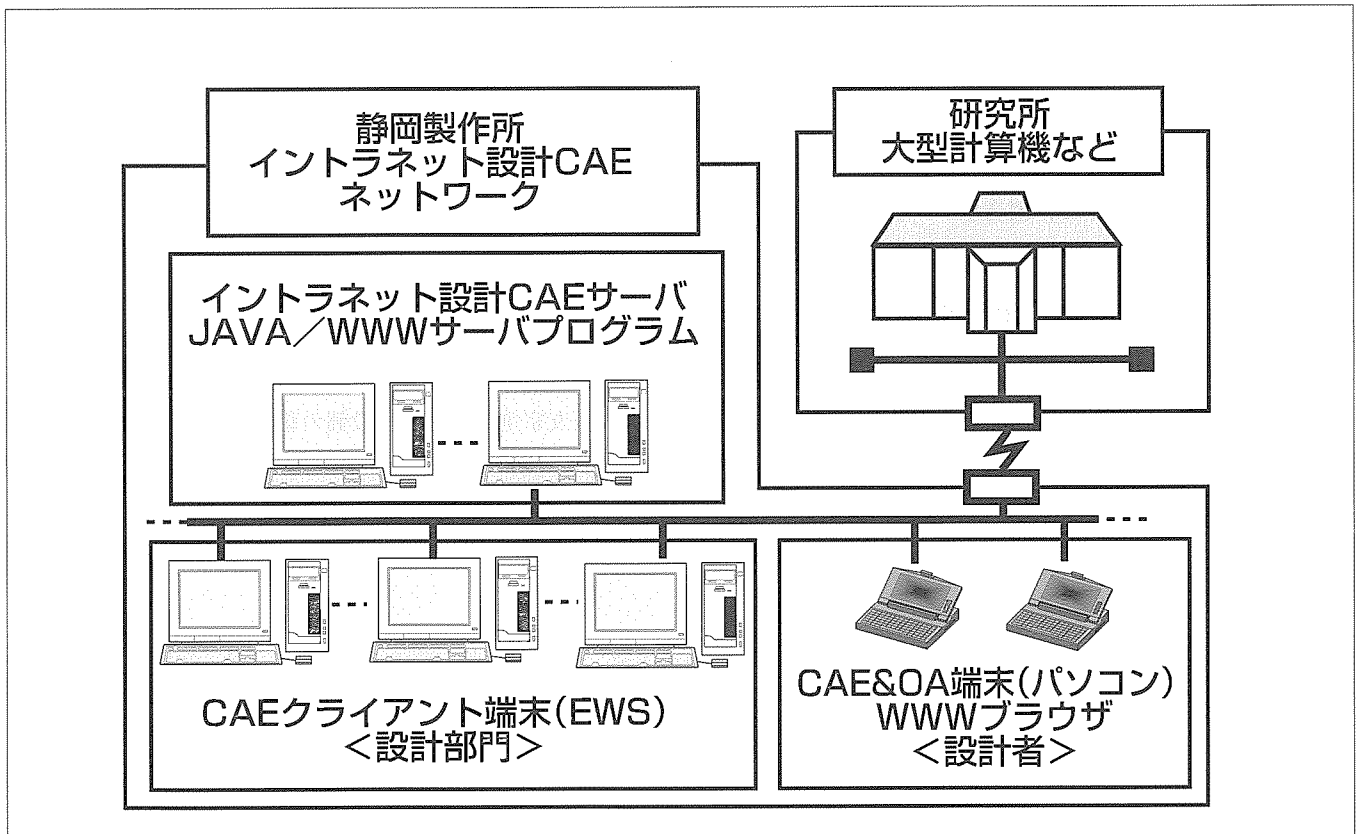
## 要 旨

先端技術を駆使した高付加価値製品の開発とその早期市場投入を可能とする手段として、コンピュータモデルによる仮想試作の実現が期待されている。仮想試作の実現には、設計システム環境と高精度CAE(Computer Aided Engineering)シミュレーションツールを統合した設計CAEシステムの開発が必要である。

従来、三菱電機のCAE用共通基盤は、スーパーコンピュータなど集中型計算サーバを中心に構成されていたが、EWS(Engineering Work Station)やパソコンの性能向上に伴い、分散型CAE環境へと移行した。さらに、社内ネットワークインフラの普及を背景に、インターネット技術を活用した“イントラネット設計CAEシステム”構築への期待が生まれている。

本稿では、イントラネット設計CAEシステムの例として、WWW対応圧縮機軸振動計算システムについて紹介する。このシステムは、サーバ上で稼働する圧縮機軸振動計算プログラムのプリポスト処理機能をWWWとJAVAアプレットによって構築したシステムであり、インターネット技術を活用することで以下を実現した。

- (1) WWWブラウザ上での圧縮機軸形状モデリング、計算条件設定GUI(Graphical User Interface)機能
- (2) WWWブラウザ上での計算結果グラフィカル表示機能
- (3) WWWサーバ上での解析ツール・データの一元化機能
- (4) システム起動時のユーザー認証機能
- (5) 計算結果ファイルのパソコンへのダウンロード機能



## 静岡製作所におけるイントラネット設計CAEシステムのネットワーク構成

三菱電機(株)静岡製作所では、従来からCAEサーバとして稼働していたEWSにJAVA及びWWWサーバプログラムを導入することで、設計者のパソコンに搭載されているWWWブラウザ上のGUIから各種CAEプログラムの入力データの作成・計算結果の表示を行ったり、CAEサーバ上の各種CAEプログラムを実行するシステムを開発した。このシステムを“イントラネット設計CAEシステム”という。

## 1. ま え が き

先端技術を駆使した高付加価値製品の開発とその早期市場投入を可能とする手段として、コンピュータモデルによる仮想試作の実現が求められている。そのための環境として、設計システムと高精度シミュレーションを統合した設計CAEシステムの開発が必要である。

従来、当社のCAE用計算機環境は、スーパーコンピュータ等の集中型計算サーバが中心的役割を果たしてきた。しかし近年のEWS、パソコンの性能向上と普及に伴い、CAE分野においてもEWS、パソコン中心の分散型計算機環境へと移行した。

このような状況の中で、更なる運用コストの低減と柔軟なシステム構築の要求、急速に普及定着化したインターネット/イントラネット技術の活用を背景として、以下のような新たなCAE用計算機環境の展開が求められている。

- EWS、パソコン分散環境での高速大規模な計算を可能とする仕組み作り
- ネットワークを活用したソフトウェア資産の共有化
- 安定稼働、保守容易でかつ環境変化に柔軟に対応できる計算機環境の構築
- マルチプラットフォーム環境下での統一されたユーザーインターフェースの実現

これらの要求にこたえるため、当社では、以下に示すような機能の実現を目指したイントラネット設計CAEシステムの構築を進めている。

- EWS、パソコンの連携によるネットワークコンピューティング機能
- ネットワークによるソフトウェア一元管理、流通機能
- CAE用サーバ群の連携処理機能、自動負荷分散/平準化機能
- イントラネット技術活用による(プラットフォームに依存しない)CAE用標準ユーザーインターフェース

本稿では、当社におけるイントラネット設計CAEシステム構築の例として、静岡製作所(以下“当所”という。)と設計システム技術センターが共同で開発した“WWW対応圧縮機軸振動計算システム”について紹介する。

## 2. イントラネット設計CAEシステム

### 2.1 当所におけるCAE環境のイントラネット化のねらい

当所のCAEハードウェア環境は、図1に示すように、EWSによるクライアント/サーバ方式で構成される。設計部門にはクライアント端末として共用のEWSが設置されており、サーバ又はクライアントEWSに搭載されている各種CAEプログラムを利用している。一方、近年のOA(Office Automation)化の進展に伴い、全設計者にノート

型パソコンが配置され、パソコンネットワーク環境が整備されている。

このような環境下での課題として、以下の3点が挙げられる。

- 開発負荷集中時のクライアント端末(EWS)の不足
- 様々なCAEプログラムの部門別分散管理
- CAEネットワークと分断されているパソコンネットワーク

これらを解決する施策の一つとして、図2に示すイントラネット設計CAEシステムを構築した。このシステムは、既存CAEプログラムを一元管理するイントラネットサーバ(EWS)に、設計者の机上にあるパソコンをクライアント端末として接続し、そのパソコンからサーバ上のCAEプログラムの利用を可能にしたものである。さらに、将来的には、当社研究所等にある解析用大型計算機との接続も行い、そのソフトウェア及びハードウェア資源の活用も図る計画である。これらにより、ハードウェア及びCAEプログラムの投資抑制効果が期待できる。

### 2.2 イントラネット設計CAEシステムの利用技術

イントラネット設計CAEシステムでは、CAEサーバ(EWS)に搭載されている各種CAEプログラムをWWW

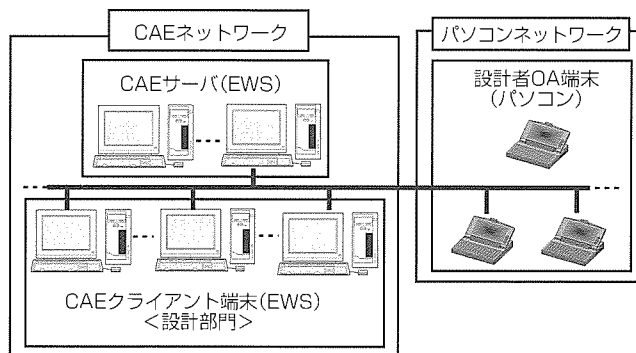


図1. 現状のCAEハードウェアとネットワーク

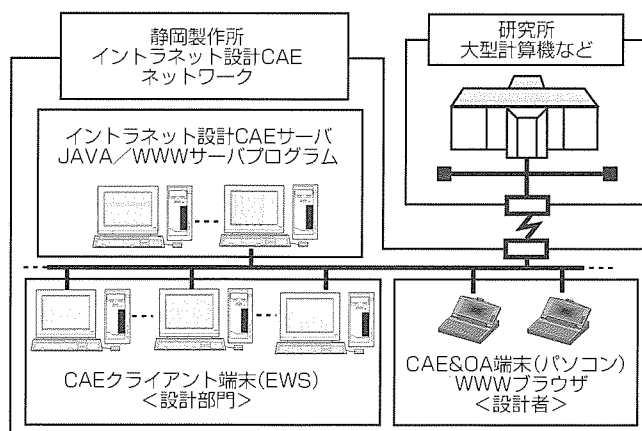


図2. イントラネット設計CAEネットワーク

ブラウザから起動する仕組みが必ず(須)である。WWWにはイントラネットサーバ上のプログラムを実行できるCGI(Common Gateway Interface)という仕組みがあるが、CGIは、単純なGUIしか作成できず、作図機能がないので、CAEのプリポストプログラム(計算モデルの作成、計算結果の表示を行うプログラム)の開発には適していない。

一方、ネットワークに強く、プラットフォームに依存しないプログラミング言語としてはJAVAがある。この特長は、WindowsやX-Window並みの高度なGUIを実現でき、パソコンからEWS上のプログラムを実行する仕組みを構築できることである。この言語で作成したプログラムを“JAVAアプレット”と呼ばれる実行モジュールにすることにより、高度なGUIをWWWブラウザ上でも実現できる。JAVAアプレットは、イントラネットサーバのみに搭載すればよいので、利用面では設計者端末へのプログラムのインストール負荷を軽減し、運用面ではメンテナンス性の向上を図ることができる。

このイントラネット設計CAEシステムのネットワーク環境構築に必要な主なソフトウェアを以下に示す(図3)。

(1) WWWサーバプログラム及びJAVA

イントラネットサーバ(EWS)に搭載する。

(2) WWWブラウザ

クライアント端末(パソコン)に搭載する。ただし、JAVAアプレットをサポートするもの。

(3) JAVAアプレット

イントラネットサーバ(EWS)に搭載する。主にCAEプログラムのプリポスト処理を行う。

また、WWWサーバプログラム、WWWブラウザ、JAVAはフリーソフトとして入手できるため、JAVAアプレットなど新規に開発するプログラムを除けば、ハードウェアやソフトウェアへの投資についても大幅な抑制が期待できる。

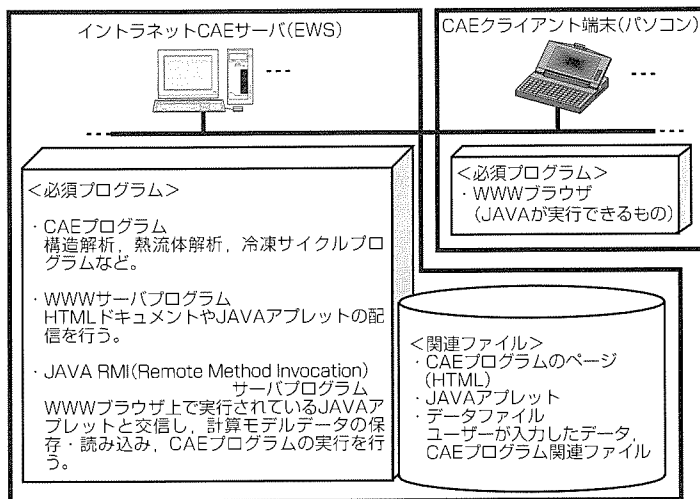


図3. イン트라ネット設計CAEシステム構成

2.3 イン트라ネット設計CAEシステムが提供するサービス

イントラネット設計CAEシステムは、JAVAなどによるCAEプログラムのプリポスト機能だけでなく、以下のようなWWW特有のサービスを提供することができる。

- (1) HTMLドキュメントによるイントラネット設計CAEシステムのホームページの開設、及び各種イントラネットシステムとの相互リンク
- (2) HTMLドキュメントによるオンラインヘルプ
- (3) プラットフォーム依存プログラム(Windows専用のCAEプログラム(Visual Basicプログラム、Excelのマクロなど))のダウンロード機能

3. WWW対応圧縮機軸振動計算システム

3.1 軸振動計算プログラム

軸振動計算プログラムは、当社の先端技術総合研究所で開発したタービン発電機、圧縮機などの回転機械に対する回転軸と軸受系からなる振動解析プログラムである。その数値解析アルゴリズムは、回転軸の複素固有値解析法を応答特性まで発展させ伝達マトリックスを適用している<sup>(1)</sup>。

この計算の特長は、不釣り合い応答、回転数とは異なる周波数の非周期応答、複素固有値など、実機を対象に種々の振動検討できることである。

3.2 当所における軸振動計算プログラムの対象製品

当所における製品開発への軸振動計算プログラムの適用例として、ルームエアコン“霧ヶ峰”に搭載されている密閉式ロータリ圧縮機(以下“圧縮機”という)の軸振動設計がある。図4に、その代表的機種であるツインロータリ圧縮機の構造を示す。

圧縮機の機能は、吸入マフラから圧縮要素部に導かれた冷媒が、シリンダとローリングピストンによる容積変化によって圧縮され、シェル容器内に吐出された後、冷媒回路に圧送することにある。その圧縮要素を駆動するクランクシャフトは、一方側を圧縮室を形成する軸受

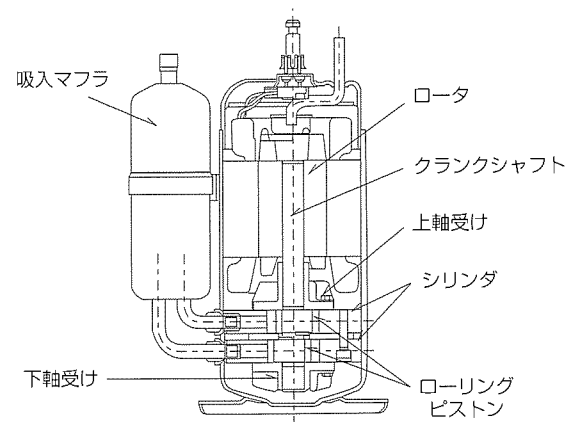


図4. ツインロータリ圧縮機の構造



けで支持し、他端側をロータに焼きばめした片持ちばり構造になっている。

そのため、圧縮機には、アンバランス質量等による回転振動問題を開発段階から十分に考慮する必要がある。

特に、近年は省エネルギー・低騒音化等の要求に伴い、インバータ化や運転周波数の高速化が図られているため、回転軸の振動特性を設計初期段階から十分に検討した市場ニーズにこたえ得る圧縮機の開発が急務となっている。

### 3.3 従来の軸振動計算プログラムの利用環境

当所では、従来の軸振動計算プログラムは、各クライアント端末(EWS)に搭載されており、スタンドアロン方式で稼働していた。図5にその実行フローを示す。

この利用方法は、まずカード形式の入力データをテキストエディタで作成し、実行コマンドをキー入力して計算を開始させる。次に、計算が終了すると自動的に計算結果図が表示される。しかしながら、利用面からは次の課題があり、早急に解決する必要があった。

- 入力データの書式が複雑なため作成に時間がかかり、入力ミスも多い。
- UNIXのコマンドの知識が必要。
- 解析結果図はパソコンで編集しにくい。

### 3.4 WWW対応圧縮機軸振動計算システム

従来の軸振動計算プログラムの利用環境の改善及びイントラネット化による端末不足の解消と運用の省力化の切り札として開発されたのがWWW対応圧縮機軸振動計算システムである。このシステムは、CAEサーバ(EWS)上で動作するこの計算プログラムのプリポストをWWWとJAVAアプレットで構築したものであり、2章で述べた当所のイントラネット設計CAEシステム上の一つのコンテンツをなす

ものである。図6にシステム構成を示す。

また、この機能の主なものとして以下が挙げられる。

#### (1) ユーザー認証

ログイン画面により、このシステムの利用可能ユーザーを限定する。

#### (2) 圧縮機軸形状のモデリングとデータベース化

GUIによるデータ入力と入力データ確認機能により、データ入力ミスを削減できる(図7)。

また、圧縮機をデータベース化することで、データの蓄積、共有化を図る。

#### (3) 計算条件設定

上記圧縮機形状に対し、静解析、固有値解析、周波数応答解析などのそれぞれの解析条件を設定する(図8)。

#### (4) 計算実行

CAEサーバ(EWS)上の軸振動計算プログラムを実行す

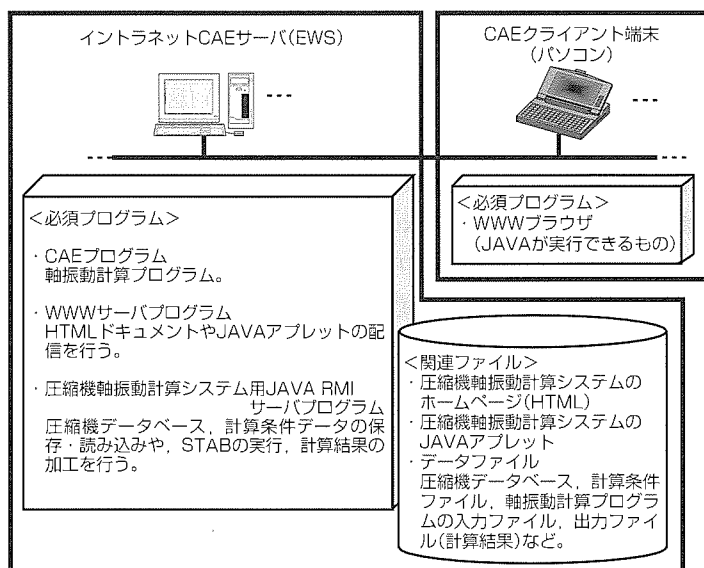


図6. WWW対応圧縮機軸振動計算システムのシステム構成

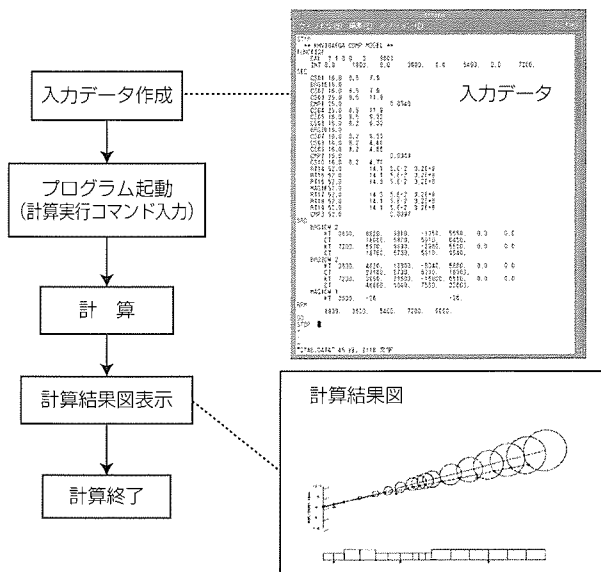


図5. 従来の軸振動計算プログラムの実行フロー

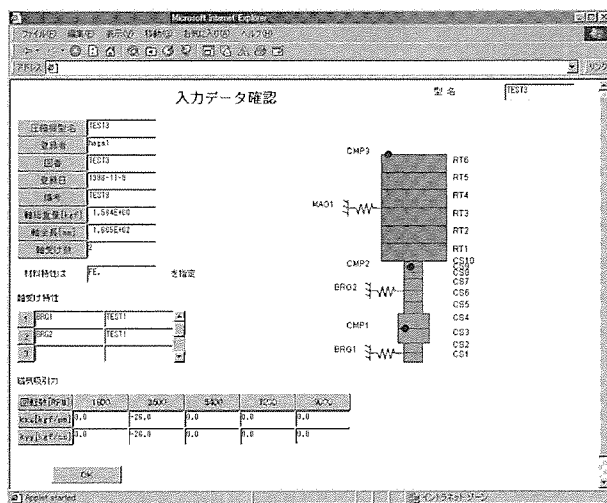


図7. 圧縮機形状のモデルデータ確認画面

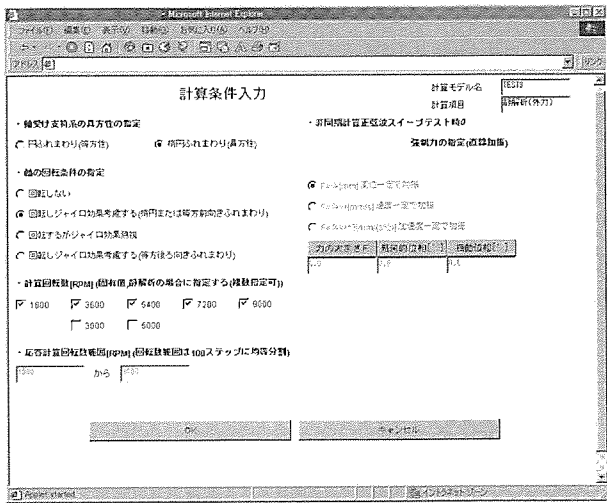


図 8. 計算条件設定画面

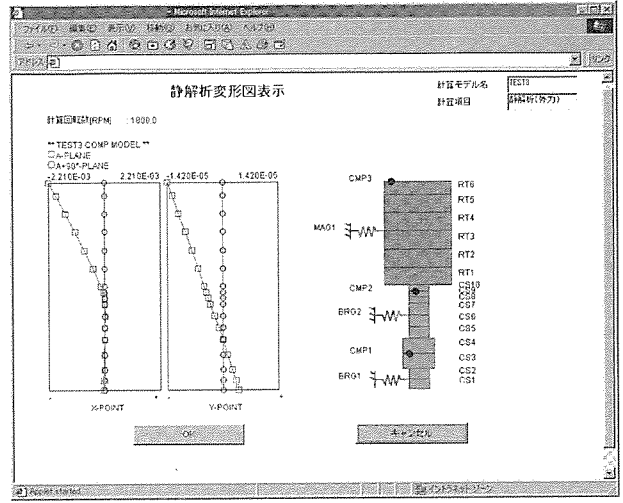


図 9. 計算結果の表示画面(静解析)

る。

(5) 計算結果の表示

計算結果をCAEサーバ(EWS)上から読み込み、変形図、モード図、周波数応答グラフなどの表示を行う(図9)。

(6) 計算結果のダウンロード機能

軸振動計算プログラムのログファイル(計算結果が出力されているファイル)や、Excelで編集しやすく加工したファイル(CSV形式)をダウンロードする。

これらの新機能により、従来の軸振動計算プログラムの利用面での課題であった“テキストエディタによる複雑なフォーマットのデータ入力”“UNIXのコマンド入力”“パソコンで編集しにくい解析結果図の処理”などの作業が改善され、設計者間でのデータの蓄積・共有・再利用ができる機能が付加された。さらに、イントラネット化によってCAEプログラムのサーバ集中管理が可能となり、システム運用業務の省力化を実現できた。

4. む す び

開発プロセスを革新するシステムとして、イントラネッ

ト設計CAEについて具体的に紹介した。これにより、CAE技術とイントラネット技術の融合が図られ、開発に密着したCAEシステムの構築が実現できる。

静岡製作所では、今後このシステムを機軸として技術の最新化を図りつつ設計技術・手法のイントラネット設計CAE開発を強化し推進していく所存である。

また設計システム技術センターでは、同様なシステムを全社に展開するとともに、製作所間で共通して利用できるシステムの統合化と一元管理を図り、全社規模のCAE利用環境の高度化を目指す所存である。

参 考 文 献

- (1) 富沢正雄, 菅波拓也: 回転軸系の複素モード解析法に関する検討, 日本機械学会論文集(C編), 48, No. 433, 1351~1359 (1979)
- (2) 福島康之, 羽下誠司, 橋本裕美: イン트라ネット設計CAEシステムの構築, Development of Intranet-based CAE Systems in MELCO, CALS Expo International 1997 論文集, CD-ROM TS7-6 (1997-11)



# 特許と新案\*\*\*

三菱電機は全ての特許及び新案を有償開放しております

有償開放についてのお問合せは  
三菱電機株式会社 知的財産渉外部  
電話(03)3218-9192(ダイヤルイン)

## 閉鎖ループ系冷却装置 (特許 第1469169号, 特公昭63-16994号)

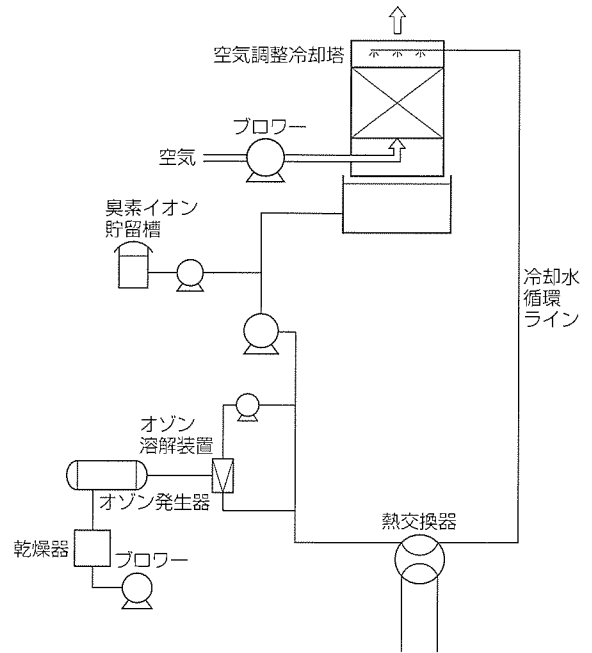
発明者 池田 彰, 中山繁樹

この発明は、臭素イオン含有循環水にオゾン注入する装置を設けることにより、生物付着による障害を未然に防止し、効率的な冷却を可能にする閉鎖ループ系冷却装置に関するものである。

これまでの閉鎖ループ系冷却装置では、熱交換器、冷却用水管及び空気調整冷却塔の壁面等に微生物が付着繁殖して熱交換能力の低下や閉そく(塞)障害を引き起こすため、塩素系薬剤、過酸化水素、オゾンなどが使用されている。塩素系薬剤は、循環水中に塩素イオンが蓄積濃縮されて腐食の問題が生じるという欠点がある。過酸化水素は、酸素と水に分解するので好ましいが、殺菌作用が弱いので多量に注入しなければならず、経済性に問題がある。また、オゾンは、分解して酸素に戻る点と殺菌力が強い点は好ましいが、冷却水に溶解させたオゾンが空気調整冷却塔において大気放散するという問題点があった。

この発明の実施例を図に示す。この発明では、オゾン注入の前に冷却用水に臭素イオンを注入し、臭素イオン濃度が数ppmになってからオゾン発生器稼働させ、臭素イオン含有水中に微細気泡として注入し溶解させる。このと

き、オゾンと臭素イオンが反応して次亜臭素酸イオンが生成して付着生物を死滅させ、生物付着障害を除去する。



## オゾン発生装置 (特許 第1790314号, 特公平04-75842号)

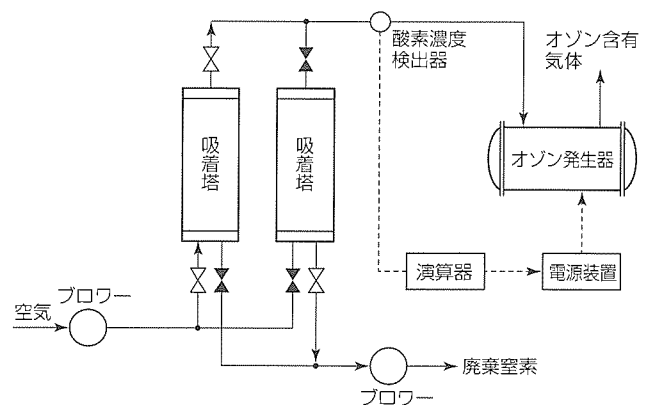
発明者 難波敬典, 遠藤伸司

この発明は、酸素濃縮装置とオゾン発生器を組み合わせたオゾン発生システムにおいて、酸素濃縮装置からの酸素濃度の変動に合わせてオゾン発生器の電源電圧又は電源周波数を調節することにより、低消費電力で常時所定量のオゾン発生できるオゾン発生器に関するものである。

酸素濃縮装置とオゾン発生器を組み合わせたシステムについて消費電力の観点から考察した結果、酸素濃縮装置の吸着塔出口の酸素濃度が40~93%、更に好ましくは60~85%で吸着塔を切り換えるのが最適であることが分かった。しかし、この場合酸素濃度は大きく変動し、これに伴いオゾン発生器の発生オゾン濃度も同様に変動するため、用途によっては適用できないか、又は制約を受けるといった問題点があった。

この発明の実施例を図に示す。この発明では、酸素濃縮装置出口の酸素濃度の最低値が40~93%になるように運転

しながら、かつオゾン発生器に供給されるガス中の酸素濃度を検出し、これに基づいてオゾン発生器への供給電力量を調節する。こうすることにより、低消費電力で常時所定量のオゾン発生できるオゾン発生器を実現できる。





# 特許と新案\*\*\*

三菱電機は全ての特許及び新案を有償開放しております

有償開放についてのお問合せは  
三菱電機株式会社 知的財産渉外部  
電話(03)3218-9192(ダイヤルイン)

## 有機性還元物質を含む排水の処理法 (特許 第1488806号, 特公昭63-24434号)

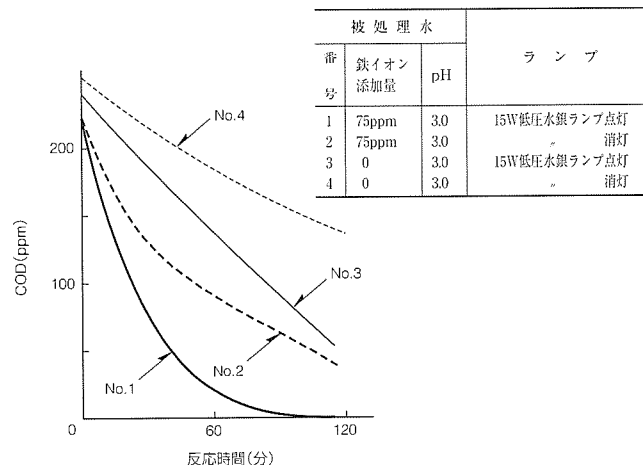
発明者 石澤信也, 佐野 稔, 難波敬典, 中山繁樹

この発明は、有機性還元物質を含む排水の処理において、反応装置をコンパクトにし、かつ少ないオゾン量で効率的にCOD(Cheical Oxygen Demand: 化学的酸素要求量)やTOC(Total Organic Carbon: 全有機性炭素)を低減するオゾン処理方法に関するものである。

に示すように、この処理法によればCOD低減及び有機物(TOC)除去速度が促進され、オゾン反応器がコンパクトになるとともに、オゾン消費量が低減され、全体として効率的かつ実用性の高い排水処理方法が提供できる。

これまでの処理方法としては、凝集沈殿や種々の生物学的処理が経済的と言われているが、COD低減には問題があるのは周知のとおりである。また、オゾン処理についても、オゾン使用量が過大であったり、オゾンの酸化力の限界によってCODを高度に低減できない場合がある。光を併用してオゾン反応を促進する方法もあるが、まだ改良の余地が残されている。

この発明では、排水のCOD低減及び有機物除去に対し、所定量の鉄イオンのような有機金属錯体を形成する金属イオンを添加した後、紫外～可視光を照射しながらオゾン処理する、又はpHを5以下に保って同様の処理を行う。図



### <次号予定> 三菱電機技報 Vol.73 No.5 “環境技術”

#### 特集論文

- 環境技術特集に寄せて
- “持続可能性”から考える21世紀の環境経営と技術
- 有機塩素系溶剤の全廃
- オゾン応用エコプロセス技術
- 家電製品リサイクルプラント
- 業務用有圧換気扇
- リサイクル情報システム
- リサイクル容易性評価に着目した環境配慮型製品設計支援ツール

- エコマテリアル
- 太陽光発電への取組
- 環境に優しいコジェネレーションシステム
- オゾン応用システム
- 燃料電池発電システム
- MDUブレーカ/電力計測ユニットによる省エネルギー管理支援システム
- トロリーバスなど交通車両の省エネルギー
- 自動車の有害排出ガス低減とEGRバルブ
- 蓄熱空調システムの動向

<おわびと訂正> 次のとおり訂正するとともにおわびいたします。

Vol.73 No.2 1ページの巻頭言で、左側の下から11行目 誤「原始的レベル」→正「原子的レベル」

<b>三菱電機技報編集委員</b> 委員長 鈴木 新 委員 山田英世 河内浩明 宇治資正 永峰明彦 植木恵介 内藤明彦 奥山雅和 石川孝治 小林保雄 津金常夫 畑谷正雄 才田敏和 野沢俊治 猪熊 章 井上誠也 幹事 鈴木隆二 4月号特集担当 鐘ヶ江裕三 吉岡純夫	<b>三菱電機技報 73巻4号</b> 1999年4月22日 印刷 (無断転載・複製を禁ず) 1999年4月25日 発行
	<b>編 集 人</b> 鈴木 新 <b>発 行 人</b> 鈴木隆二 <b>発 行 所</b> 三菱電機エンジニアリング株式会社 ドキュメント事業部 〒105-0011 東京都港区芝公園2丁目4番1号 秀和芝パークビルA館9階 電話(03)3437局2692 <b>印 刷 所</b> 菱電印刷株式会社 <b>発 売 元</b> 株式会社 オーム社 〒101-0054 東京都千代田区神田錦町三丁目1番地 電話(03)3233局0641 <b>定 価</b> 1部735円(本体700円)送料別
<b>お問い合わせ先</b> giho@hon.melco.co.jp	

# スポットライト クリーンオゾン水製造装置

三菱クリーンオゾン水製造装置は、当社が開発した超高濃度／高吐出圧力クリーンオゾナイザとオゾン溶解モジュールの最適な組み合わせにより、高濃度で大容量のオゾン水を高速で製造する装置です。

半導体や液晶等の製造プロセス特に洗浄分野では、オゾンの強い酸化分解力及び酸素に戻る特長を生かし、薬液に代わる洗浄方式としてオゾン水の適用が活発化しています。オゾン水を使用することにより、低温処理でも高スループット（高生産性）が得られるほか、廃液処理も軽減され、環境負荷の低減が図れることから、環境に優しい製造プロセスの実現に貢献する装置です。

## 特長

### ● 高濃度・大容量・高吐出圧力オゾン水

オゾン溶解モジュールの性能を十分に発揮できるオゾン発生器の採用により、オゾン濃度：最大30ppm、オゾン水量：最大20ℓ/min、オゾン水吐出圧力：0.2Mpaの高濃度・大容量・高吐出圧力オゾン水を生成します。

### ● クリーンオゾン水

厳選された耐オゾン材料、極短ギャップ電極に非金属材料の採用により、Ca、Cr、Fe、Ni、Cuについてはいずれも測定限界（ $1 \times 10^{10}$ atoms/cm<sup>3</sup>）以下のクリーンなオゾン水を実現しました。

### ● 迅速な濃度立ち上がり・高速応答性

高濃度・高吐出圧力オゾナイザの採用と溶解モジュールの最

適化により、設定濃度までの立ち上がり特性及び濃度・流量変更時の高速応答性を実現しました（立ち上がり時間：3分間で定格オゾン水濃度に到達）。

### ● オゾン水濃度・流量の可変制御

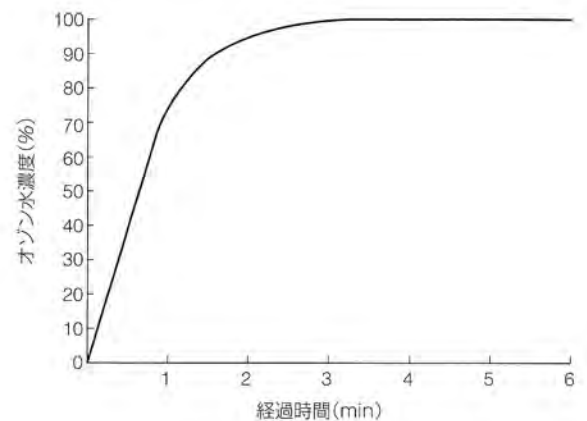
オゾン水の濃度及び流量の可変制御に追従し、安定した濃度出力を確保しています。例えば、オゾン水濃度“高濃度→低濃度→中濃度→ゼロ”等の任意設定に確実に追従します。

### ● 容易な操作性・高信頼性

操作部は、タッチパネル方式の採用により、表示・操作機能を集約化し操作性を向上させました。さらに、構成部材を厳選し、オゾナイザ電極のセラミック化等を図り、信頼性が向上しました。

装置メニュー

型名	仕様	
	オゾン水流量 (ℓ/min)	オゾン水濃度 (ppm)
OW0530	5	30
OW1020	10	20
OW1515	15	15
OW2010	20	10



オゾン水濃度応答特性



クリーンオゾン水装置



モニタ画面