[Jpn. J. Toxicol. Environ. Health]
[衛生化学]
42 (2) 151-158 (1996)]

閉鎖系室内におけるオゾンの生成・分解装置の性能評価に関する研究
— 三機種の試験 —

渡辺文夫,^a 福岡勝義,^b 大谷敏之^b
東京都立国際高等学校,^a ㈱田村金属製作所^b

Studies on the Efficiency Assessment of Equipments for the Formation and Decomposition
of Ozone in the Closed Room—Tests Using Three Types of Equipments—

FUMIO WATANABE,^a KATSUYOSHI FUKUOKA^b and TOSHIYUKI OTANI^b

*Tokyo Metropolitan Kokusai Senior High School,^a 2-19-59, Komaba, Meguro-ku,
Tokyo 153, Japan and Tamura Metal Manufacturing Co., Ltd.,^b 424-1,
Kamimabushe, Kadoma-shi, Osaka 571, Japan*

(Received July 24, 1995)

The efficiency of commercially available equipments for ozonization by ultraviolet rays in the rooms was measured and assessed.

The volume of the room was enlarged to 4.5 m³ and to 54 m³, and then, the tests were held using three types of ozonization equipments.

By considering the data including the results of the tests in the small room, the formulas and the line graphs on the relationships between the room volume and the ozone concentration of the steady state, and those between the ozone concentration of the steady state and the input current of a lamp were obtained.

As the result of this experiment, a new phenomenon was found out, that is, the apparent velocity of ozone photo-decomposition by an ultraviolet ray lamp having a constant initial current was slower than that of the spontaneous decompositions, when the room volume was enlarged beyond a certain degree.

This phenomenon was named an inversion volume.

The overall assessments of these three kinds of equipments were as follows:

- 1) In the case of the ozone formation those equipments are useful, because they are efficient enough to obtain the ozone concentration of the steady state within an hour, though the time consumed to achieve it varies according to its room volume.
- 2) In the case of the ozone decomposition in the ordinary laboratory, as far as the decomposition velocity is concerned, setting up one ultraviolet ray lamp and one ozone lamp can be less effective than those of the spontaneous decomposition.

Therefore, to increase the decomposition velocity, it is necessary to increase the input current of one ultraviolet ray lamp, or to set up the lamps in parallel.

- 3) In the extremely clean room, such as a bioclean room, the ozone decomposition by ultraviolet ray (using 140W big type of double wall) is thought to be useful.

Lastly, the efficiency assessments and the comparisons of all the equipments (including the following system) measured in the past was conducted, and therefore, the one in which the greatest improvement could be made was found.

Key words — ozone; ultraviolet ray; room volume; efficiency assessment; ozonization equipment

緒 言

著者らは今までに、無オゾン及び既に若干のオゾンを含む空気または酸素に紫外線（主力輝線波長 184.9 nm）を照射してのオゾンの生成、さらに紫外線（主力輝線波長 253.7 nm）を照射してのオゾンの分解に関して、オゾン濃度のコントロールをいかに効率良く行うかについて研究してきた。

初期の研究では、ガラス製環状二重管構造の流動通過系（以下流通系）装置による種々の測定を行い、基本的現象や装置性能を把握し報告した。¹⁻⁹⁾

さらに、閉鎖系室内におけるオゾンの生成・分解に関し市販のオゾン化装置を用いて諸現象を測定し、装置性能について評価を行った。

すでに本誌前報においては、比較的容積が小さい試験室で同一機種によるオゾン化実験を行い、オゾンランプ数、UV ランプ数、初期オゾン濃度、残留オゾン濃度、到達定常濃度、反応開始時間、反応完了時間などの各種要因相互の関係式や線図を得ることで、閉鎖系室内でのオゾン濃度のコントロールを行うための幾つかの手掛かりを把握し報告した。¹⁰⁾

本報ではさらに、小部屋及び大部屋において、出力の異なるオゾン化装置を数種類使用した場合の各々の性能を評価して、オゾン濃度のコントロールに、より一層具体的な手掛かりを与えようとするものである。

前報では、閉鎖系における詳細な基礎研究を行い、考察に当たっては従来の文献に報告されている光化学の分子、原子レベルのデータや、物理化学の反応速度論的な面からの考察と現実のオゾン化装置から得られる結果とを比較検討してきた。

本報では、前報での基礎的研究による知見を深めた上で、閉鎖系でのスケールアップ実験を行った。

試験室容積を 4.5 m³ 及び 54 m³ とし、使用装置は TM-38 W に加えて TM-60, TM-140 の 3 機種と、ランプ入力で約 3.7 倍まで増加させた。

この規模は現実に操業を行っている室の大きさ、装置の容量であり、そこから得られるデータは新たに装置を設置する際に十分な手掛りとなり得るものとする。

今回の実験では、前報のように詳細なデータ解析に専念せず、むしろ大局的な観点でデータを解析し、現実に使用者が要望する数値及び設計担当者が必要とする数値を把握することを大きな目的とした。

実 験 の 部

1. 使用機材 1) 密閉試験室——[小部屋]：容積：約 4.5 m³。室内表面：水性ペンキ塗装木製ドア 1.5 m²、コンクリート床 2.0 m²、モルタル塗り白壁 11.7 m²。

[大部屋]：容積：約 54.2 m³。室内表面：水性ペンキ塗装木製ドア 3.1 m²、コンクリート床 24.7 m²、モルタル塗り白壁 61.2 m²、ガラス（窓）面 0.9 m²、鉄材表面 0.1 m²。

2) オゾン濃度測定器——本誌前報¹⁰⁾ と同じ。

3) 紫外線オゾン化装置——田村金属製作所製スペースクリン TM-38 W, TM-60, TM-140, 各 1 台。

3 機種寸法の寸法図は前報¹⁰⁾ Fig. 1 に示した TM-38 W と同様であるが、異なる寸法 (mm) は本体長さ×高さ×幅で、TM-60 は 1000×97×130, TM-140 は 1400×160×200 である。ランプの寸法は全長：フィラメント間距離：管径で、TM-60 は 860：770：15, TM-140 は 1191：980：38 である。

また、ランプのスペクトルは 3 種共に主力輝線波長 254 nm であり、オゾンランプはその他に 185 nm にも小さいピーク（4—5 %）が認められた。

また、各ランプの 254 nm の放射照度と距離の関係の測定値を Fig. 1 に示した。測定器は東京光学社製のトプコン 254-UVR を用いた。

2. 試験方法 密閉試験室内にスペースクリンを 1 台ずつ設置してオゾン化反応を行い、室中央部のオゾン濃度を以下に示す 3 種類の項目について追跡した。

Fig. 1. Relation between Intensity of Illumination (254 nm) and Distance

- 1) オゾンランプ点灯によるオゾン生成能力を測定・評価した。
- 2) オゾンを定常値の濃度に到達させた後、オゾンランプを消灯してオゾンの自然分解速度を測定した。
- 3) オゾンが定常値の飽和濃度に達している状態でUVランプを照射してオゾンのUV分解能力を測定・評価した。

結果及び考察

Fig. 2 は、オゾンの生成についての3機種のパターンを一括したものである。(a) は小部屋、(b) は大

Fig. 2. Ozone Formation

(a) In the small room. (b) In the big room.

部屋についてのデータである。

(a), (b)いずれの場合も、生成初期はオゾンが消費されるが、経時的に急激な濃度上昇を示し、次いでグラフ上で直線関係を示した後に定常状態の濃度 C_s に達した。

(a), (b)を比較して、室容積又は壁面積の変化に対して C_s の値が対応するか否かを検討してみた。

TM-140, TM-60, TM-38 W の C_s について小部屋の値対大部屋の値は各々 $17/2.7=6.3$, $6.5/0.3=6.5$, $2.5/0.3=8.3$ である。

つぎに、大部屋对小部屋の容積比は $54.2/4.5=12.0$ 、面積比は $90.0/15.2=5.9$ であることから、 C_s は室容積よりも壁面積の変化に関連性を有するように考えられる。しかし、このデータでは室壁面の性状が異なるので、現時点では断言できない。

Fig. 3 は、オゾンの自然分解と UV 分解についてのデータを一括したものである。(a) は小部屋、(b) は大部屋についてのデータである。

(a) では、三者共に UV 分解の方が自然分解よりも見かけの分解開始時間 t_b と分解完了時間 t_e が速いことが確認される。

また、 C_0 が高濃度のときの方が t_e が短いことも認められる。

なお、各プロットの右端で O_3 が低濃度になると直線よりもやや右側にずれる傾向がある。これは、室内のオゾンの拡散速度と測定器の感度が原因と考えられる。

(b) の全体的な特徴は小部屋でのデータと同様であるが、注目すべきは TM-38 W については自然分解の方が UV 分解よりも分解完了時間 t_e が小さいという点である。

このことは従来の現象からは背反する結果である。オゾンを分解する 254 nm を照射した場合に、自然分解の場合よりも分解開始及び完了が遅くなることは、従来とは別の意味での「逆転現象」である。

従来の「逆転現象」とは、著者が以前に報告した「逆転域」のことであり、¹⁻⁹⁾ 単一ランプを用いた装置の流路中で UV 185 nm と 254 nm との放射照度差と UV 照射時間の長短が主要因となって、生成オゾン濃度が増加から減少へと急激に移行する現象のことである。

しかし、今回の「逆転現象」は閉鎖系における現象で、オゾン生成ランプ1灯の現象ではなくオゾン分解用ランプによる分解速度と壁面を中心とする自然分解の反応速度の差に起因するものと考えられる。過去の文献における閉鎖系に関する報告¹¹⁻¹³⁾ で

Fig. 3. Ozone Decomposition

(a) In the small room. (b) In the big room.

A, spontaneous decomp.; A', UV decomp. by TM-140; B, spontaneous decomp.; B', UV decomp. by TM-60; C, spontaneous decomp.; C', UV decomp. by TM-38W.

も、ガラス壁面に関する自然分解を若干は考察しているものの、逆転現象について言及しているものではなく、今回の実験で新たに見い出されたものである。

既にガス流量域の変化から「逆転域」という用語が照明学会を始めとする各学会で認められている現在、著者は新たに「逆転容積」及び「逆転入力」という仮称を用い、以下のように定義した。

1) 初期オゾン濃度一定の閉鎖室内において入力一定のUVランプによる光分解を行うとき、室容積(又は壁面積)を大きくしていくと、ある容積(又は面積)の値を境にして見かけの光分解速度が見かけの自然分解速度より遅くなる。この逆転現象が起こ

る室容積(又は面積)を「逆転容積(又は逆転面積)」と呼ぶ。

2) 初期オゾン濃度一定で容積一定の閉鎖系室内においてUVランプによる光分解を行うとき、ランプ入力を小さいものにしていくと、ある入力の値を境にして見かけの光分解速度が見かけの自然分解速度より遅くなる。この逆転現象が起こるランプ入力を「逆転入力」と呼ぶ。

今回、「逆転容積(又は逆転面積)」と「逆転入力」とを併せた意味での、見かけの「逆転現象」についての理論的な解析を行うに十分なデータが現在不足であるが、強いてその原因を考察すると、自然分解の見かけの分解開始時間 t_d の遅れを考察した前報の反応機構に立ち返って解析するしか方法はない。

(Mは第3者の固体表面)

壁面での接触分解又は空中での自然分解での素反応の1つに(1)式が、また、UV分解での素反応の1つに(4)式がある。

(1)、(4)式によって生成される原子状酸素が、(2)式で示したように共にオゾン分解する。

供給される(O)の量は自然分解からのものとUV分解からのものが加わり、常に増加する。したがって一般的にはオゾンの総分解量はUV分解の方が常に自然分解のみのときよりも多くなるはずである。

ところが、(O)の量がある程度多くなると、一部で次の反応の速度が増加していくことが考えられる。

このように(O)または(O_2^*)の減少は、

(7)、(8)式などの分解反応が阻害される可能性が考えられる。

すなわち、(O)の生成量はある一定量を超えると減少の方向に傾き、結果的に見かけの O_3 の分解速度は小さくなっていくことが考えられる。

したがって、壁面が極めて清浄で O_3 の分解作用をほとんど示さないようなバイオフィットルームなどでは、UVによる分解は極めて有効であると言え

る。

現時点のデータで見る限り、同一ランプによるUV分解の場合には室容積がある一定値を超えると自然分解量が多くなってきて、そこで逆転現象が起こる。また、一定容積の実験室でランプ入力を増加していくと、ある一定入力から見かけ上の逆転現象に入ることから、合理性が認められる。このことは、流通系反応装置での「逆転域」がガス流量を減少させて行くと現れることとは異なる現象である。

これらの逆転現象は本報の実験で見出されたことであり、その発生原因を究明する意図の下での実験ではないことから、解析に必要なデータの種類と量が少なすぎる。

また、本研究で室容積を重要な要因と考えている以上、室内壁表面積及び性状に関しても、生成又は残留オゾン濃度に影響を及ぼすかどうかを調べる必要がある。

したがって、この現象の詳細な究明については今後の課題としたい。

Fig. 4は、小部屋及び大部屋でのオゾンの生成についての、ランプ電流の総量(A)に対しての定常状態のオゾン濃度 C_s の関係をプロットしたものである。

ランプ電流は、TM-38 Wは0.24 A, TM-60, TM-140は各々0.53 A, 1.40 Aである。

Fig. 4の小部屋でのTM-38 W並列とは、前報の実験のオゾンランプを1灯ずつ増加させていったときの生成オゾン濃度の C_s である。

ランプ1灯点灯の場合は、小部屋・大部屋共に I (A) と C_s (ppm) は比例関係を示し、次の関係式が得られた。

$$\text{小部屋: } C_s = 12.07 I - 0.10 \quad (9)$$

$$\text{大部屋: } C_s = 2.00 I \quad (10)$$

また、小部屋でのTM-38 Wの並列では直線関係を示さなかったものの、ランプ数の増加に応じて C_s の増加も納得のいく値を示している。なお、 $I=0.24$ AすなわちTM-38 W 1台使用では、小部屋と小部屋並列との C_s の値は本来同一となるはずである。これが異なっているのは、小部屋のときは装置1台のみの設置であるのに対して、小部屋並列のときは装置5台を密集設置したことの違いが原因と考えられる。

全体的に見ると、三者共に $I=0.24$ Aでは同一種類の直線又は曲線群よりも小さい C_s を示している。これは、 I が小さいときは室内の自然分解の作用が大きく、 C_s を減少させているものと考えられる。

Fig. 4. Plots of Lamp Current vs. Ozone Concentration of Steady State

Fig. 5. Relation between Room Volume and Ozone Concentration of Steady State

Fig. 5は、3種のスペースクリンについて実験室の容積 V (m^3) に対する定常オゾン濃度 C_s (ppm) をプロットしたものである。

ここで、大部屋をビニールシートを用いて $1/2$, $1/4$ に仕切って、異なる室容積の下での測定も追加した。

3種のランプの各大部屋での C_s の値は、ほぼバランス良く分布している。

3種共にグラフの点線を延長した直線の関係式は

次の通りである。

$$\text{TM-140} : \log C_s = -0.72 \log V + 1.70 \quad (11)$$

$$\text{TM-60} : \log C_s = -0.76 \log V + 1.31 \quad (12)$$

$$\text{TM-38} : \log C_s = -0.85 \log V + 0.97 \quad (13)$$

Fig. 5 から、3機種についての室容積 (V) に対する到達可能な定常オゾン濃度 (C_s) の概略値を即座に読み取ることができる。

種々のオゾン生成装置の性能の比較

オゾン生成装置としての性能評価を異なる機種との間において比較吟味する必要がある。この場合、使用しているランプの入力、ランプ寸法、空気流路の形状、空気流量などがそれぞれ異なる。したがってオゾン生成能力は、一般に $[\text{kg O}_3/\text{h}]$ や $[\text{kg O}_3/\text{W}]$ などの単位で絶対量を比較することが多い。しかし本報では、以前の測定で扱った装置¹⁻⁹⁾ に対して、製品としての紫外線オゾン化装置スペースくりんはどの程度のレベルに相当するのかを何らかの尺度で比較しなければならない。

そこで、生成オゾン量は UV 照射時間と放射照度の積に比例すると見なし、装置を次の3つのグループに分けて比較した。

1) 基礎的研究¹⁾ に用いた種々の直管形ランプ (中・大型)

2) 環状路幅と生成オゾン濃度の関係を測定したとき²⁾ のランプ (小型)

3) スペースくりんの3種類のランプ (大型)

まず、スペースくりん3機種が一般に運転されるときのガス流量 G (l/min) に対する生成オゾン濃度 C (ppm) を基準に考えた。TM-38 W, TM-60, TM-140 は各々 $G=0.33, 0.55, 1.80 \text{ m}^3/\text{min}$ で $C=6.9, 8.8, 9.8 \text{ ppm}$ である。次に小型ガラス製二重管群で $C=3-13 \text{ ppm}$ を示す G は 5.0 l/min であり、中・大型二重管群では $G=10.0 \text{ l/min}$ で $C=3-18 \text{ ppm}$ を示すので、この条件で比較した。

Table I には種々のオゾン生成装置の能力比較のための諸データを示した。ガス流路の平均半径は長径 r_2 対短径 r_1 が2倍以上のものは対数平均とした。スペースくりんの流路断面は四角形なので、相当直径¹⁴⁾ から相当半径を求めた。ランプ中心から r (cm) での UV 放射照度 I ($\mu\text{W}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$) を以前の報告²⁾ 及び Fig. 1 から求めた。それらの数値から、生成オゾン濃度に対応する UV 照射量 Q ($\mu\text{W}/\text{cm}^2$) を

TABLE I. Values about Various Kinds of Ozone Formation Equipments for the Comparison of Those Efficiencies

Equipment	Head	Lamp	Effective length l (cm) (between filaments)	Diameter d_1 length l_1 width l_2 (cm)	Sec-tional area S (cm^2)	Volume V (cm^3) ($l \times S$)	Mean or equivalent radius r (cm)	Air flow ratio G (cm^3/s)	Resi-dence time t (s) (V/G)	UV radia-tion intensity I ($\mu\text{W}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$)	UV radia-tion quantity ($t \times I$) ($\mu\text{W}/\text{cm}^2$)	Ozone concn. C (ppm)
Small type of double glass pipe		8 W	7.3	$d_1 = 1.3$ $d_2 = 1.8$	1.21	8.83	0.755	83.3	0.106	14500	1540	2.8
		8 W	7.3	$d_1 = 1.3$ $d_2 = 2.7$	4.39	32.0	0.966	83.3	0.384	12500	4800	6.0
		8 W	7.3	$d_1 = 1.3$ $d_2 = 3.1$	6.21	45.3	1.035	83.3	0.544	11000	5980	11.0
		8 W	7.3	$d_1 = 1.3$ $d_2 = 3.4$	7.74	56.5	1.095	83.3	0.672	10500	7060	13.0
Middle or big type of double glass pipe		A, 8 W	11.0	$d_1 = 1.3$ $d_2 = 2.8$	4.82	53.1	0.975	166.7	0.318	11100	3530	2.8
		B, 10 W	30.5	$d_1 = 2.4$ $d_2 = 3.1$	3.02	92.2	1.375	166.7	0.552	9600	5300	4.1
		C, 15 W	41.5	$d_1 = 2.4$ $d_2 = 3.1$	3.02	125.3	1.375	166.7	0.750	11000	8250	7.2
		D, 40 W	48.5	$d_1 = 2.4$ $d_2 = 3.1$	3.02	146.5	1.375	166.7	0.877	14000	12300	18.0
"Space clean" (big type of double wall)		TM-38 W 38 W	30.6	$d_1 = 1.5$ $l_1 = 7.2$ $l_2 = 16.3$	113.8	3480	4.10	5500	0.661	6400	4230	6.9
		TM-60 60 W	76.8	$d_1 = 1.5$ $l_1 = 9.8$ $l_2 = 13.2$	125.8	9660	4.61	9170	1.053	7000	7370	8.8
		TM-140 140 W	98.0	$d_1 = 3.8$ $l_1 = 16.2$ $l_2 = 20.2$	304.6	29800	6.53	30000	0.993	6000	5960	9.8

Fig. 6. Plots of UV Illumination Quantity vs. Produced Ozone Concentration about the Comparison with the Capacity of Various Ozone Formation Apparatus

●, small type of double glass pipe; ○, "space clean" (big type of double wall); ▲, middle or big type of double glass pipe.

算出した。

Fig. 6 は種々のオゾン生成装置の能力を比較するための生成オゾン濃度 C 対 UV 照射量 Q のプロットである。Fig. 6 において、3つのグループが明確に識別できる。黒丸印は小型二重管装置群で、18, 27, 31, 34 の数字は環状路外径(mm)である。 $r_2=27$ mm 以外は直線上にプロットされ、関係式は次の通りである。

$$C = 1.84 \times 10^{-3} Q \quad (\mu W/cm^2) \quad (14)$$

$r_2=27$ は同じグループ内では低性能である。このことは、以前の報告²⁾での各環状路外径における酸素を原料としたときの生成オゾン量(A)と空気を原料としたときの生成オゾン量(B)との比でも特異性を示している。

白丸印はスペースくりんの群で、TM-60 の他は以下の直線関係を示している。

$$C = 1.65 \times 10^{-3} Q \quad (\mu W/cm^2) \quad (15)$$

TM-60 が同群の中で低性能である主因はランプ外径が流路径に比して小さ過ぎることと容易に言える。また、黒三角印は中・大型二重管装置群であり、ランプ A と B は以下の直線関係を示している。

$$C = 7.93 \times 10^{-4} Q \quad (\mu W/cm^2) \quad (16)$$

ランプ C, D は顕著に高性能になっている。

Fig. 6 の直線部分の勾配がオゾン生成能力を示すものとして黒丸印群の勾配を 1 とすると、白丸印群と黒三角印群はそれぞれ 0.897 及び 0.431 となる。

以上のことから、スペースくりんのオゾン生成能力は小型ガラス製二重管装置群の約 90% であると言える。このことから、TM-38 W と TM-140 の性能は良好であるが、TM-60 は同様に 65% となり、改良の余地があると言える。

結 語

市販の紫外線オゾン化装置について、閉鎖系室内における性能を測定・評価した。

室容積を 4.5 m^3 及び 54 m^3 の 2 室に拡大し、3 機種のオゾン化装置のテストを行い、各機種の室容積と定常状態のオゾン濃度との関係やランプ入力と定常状態のオゾン濃度との関係などを把握した。

また、実験を通して、一定入力の UV ランプによるオゾンの光分解の見かけの速さがある室容積以上では自然分解より遅くなる現象、すなわち見かけの「逆転容積」と、一定容積の室内で UV ランプの入力を減少させていくと、光分解速度が自然分解速度より遅くなる現象、すなわち見かけの「逆転入力」を新たに見い出した。

これらの結果から、本装置 3 機種について次に示すような全体的な評価を得た。

- 1) オゾン生成については室の大小に応じて若干の変動はあるものの、1 時間以内に定常状態のオゾン濃度に達し、十分に用途に対応できるものである。
- 2) オゾンの分解においては、一般の実験室などではオゾンランプ 1 灯に対して UV ランプ 1 灯では顕著な効果が少ない場合や、より速く必要なオゾン濃度の室内環境を提供するためには、ランプ 1 灯の入力を増すか、数灯の並列使用を行う必要がある。
- 3) 極めて清浄な室内では、UV によるオゾンの分解（スペースくりんなどの市販装置の使用）は大変有効と考えられる。

以上の結果を利用すれば、本報で用いた 3 機種について、容積 54 m^3 前後までの部屋におけるオゾンの生成・分解についての各種数値の予測が可能となる。

また、スペースくりんと流動通過系の測定で扱ったガラス製二重管装置とのオゾン生成能力を比較し、TM-38 W と TM-140 はガラス製二重管装置の 90% の能力と評価した。また、TM-60 は 65% であり、改良の余地があることを指摘した。

このように、現状のオゾン化装置の性能を十分に測定・評価することにより、必要なオゾン濃度の環境をつくり出すことを一層容易にし、装置設計者に極めて有効な手掛りとなる数値を求めた。

引用文献

- 1) 村井忠道, 渡辺文夫, 医用衛生紫外線研究会誌, **1**(2), 50 (1982).
- 2) 渡辺文夫, 照学誌, **72**, 591 (1988).
- 3) 渡辺文夫, 照学誌, **73**, 57 (1989).
- 4) 渡辺文夫, 霜村 修, 衛生化学, **35**, 426 (1989).
- 5) 渡辺文夫, 日化誌, **7**, 732 (1990).
- 6) 渡辺文夫, 照学誌, **75**, 288 (1991).
- 7) 渡辺文夫, 照学誌, **75**, 307 (1991).
- 8) F. Watanabe, O. Shimomura, *Jpn. J. Toxicol. Environ. Health*, **37**, 323 (1991).
- 9) F. Watanabe, O. Shimomura, *Jpn. J. Toxicol. Environ. Health*, **37**, 337 (1991).
- 10) 渡辺文夫, 福岡勝義, 大谷敏之, 衛生化学, **42**, 142 (1996).
- 11) A.W. Ewell, *Refrigerating Engineering*, **26**, 68 (1933).
- 12) A.W. Ewell, *J. Appl. Phys.*, **13**, 759 (1942).
- 13) L.R. Koller, *J. Appl. Phys.*, **16**, 816 (1945).
- 14) 藤田重文, “化学工学 I,” 岩波全書, 東京, 1967, p.27.