

令和 2 年 11 月 26 日現在

機関番号：17201

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2015～2018

課題番号：15K04715

研究課題名（和文）複雑な立体形状に適応した大気圧非平衡プラズマの安定化メカニズム

研究課題名（英文）Stabilization mechanism of atmospheric non thermal equilibrium plasma for complicated three-dimensional shape

研究代表者

三沢 達也（Misawa, Tatsuya）

佐賀大学・理工学部・助教

研究者番号：70346873

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000 円

研究成果の概要（和文）：「水誘電体多層電極」を用いて生成される、立体形状を持つ大気圧非平衡プラズマ生成技術のメカニズムの解明を行った。放電電極として用いられる誘電体の温度と電気的特性を放電挙動と比較することにより、本技術のメカニズムの解明と応用技術の開発を行った。水の作用によって、局所的な放電が高速で移動しながら放電が繰り返されることによって、不均一な電界を持つ電極でも、均一な放電が実現されていることが分かった。立体形状の対象物への均一なプラズマ処理が可能となり、農水、工業分野での応用が期待できる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

複雑な形状物を持つ農産物や工業製品へのプラズマ処理ができる立体形状を持つ大気圧非平衡プラズマの生成が可能であることは、既存の大気圧非平衡プラズマの研究と比較しても、非常に独創的である。その発生メカニズムの解明は理学、工学の両面から極めて有意義である。この放電のメカニズムを解明することで、形状やサイズの為にプラズマ利用が出来なかった、農業・工業などの新しい分野でのプラズマ応用の展開が期待できる。

研究成果の概要（英文）：The stabilization mechanism of atmospheric non thermal equilibrium three-dimensional plasma using “water dielectric multi layer electrode” were studied. Clarification of discharge mechanism were carried out by observation of discharge phenomena with control of temperature and electric property of water involved in the discharge electrode. In addition, application of this electric discharge to industrial technology was also studied. It was clearly observed that uniform discharge under non uniform electric field had been realized by the high-speed transfer of local discharge which was occurred by temperature rise of the water. The application of uniform plasma treatment to three-dimensional shaped agricultural products and industrial products is expected in the near future.

研究分野：プラズマ理工学

キーワード：大気圧熱非平衡プラズマ 立体形状プラズマ 水-誘電体多層電極 プラズマ応用 放電メカニズム

特記事項：

現在、本技術の実用化に向けて、企業と特許出願を進めており、主な研究成果については、既定の期日（2021年6月12日）まで、公表を差し控える。また、下記内容については、暫定の内容となっている。

1．研究開始当初の背景

大気圧非平衡プラズマは、大気中での低温のプラズマプロセスが可能であり、高い反応性を持つ活性種を容易に生成可能であるなどの理由から、ガス分解やオゾン生成、プラスチックフィルムの表面改質や表面洗浄などの材料プロセス、プラズマを用いた医療技術やバイオ技術など、幅広い分野で利用され、また理学的な面からも、興味深い放電特性や現象について、様々な研究が行われてきた。近年、国内外において、プラズマを用いた医療、バイオ、農学分野への応用が積極的に行われており、プラズマ応用技術の一分野となっている。医療分野では、活性種生成の高さや反応性を利用した殺菌・消毒・滅菌技術の開発、大気圧プラズマを病気や患部の治療に用いるプラズマ治療技術、バイオ分野では、生体への照射による細胞の変化、機能の発現やDNAの変化や注入など、様々な研究が行われている。

特に農学分野では、農産物表面に存在する細菌、カビ、病原体、毒素を、大気圧プラズマを用いて殺菌・消毒・不活化することにより、農産物の保存・貯蔵期間を延ばし、安全・安心な食を提供する基礎技術の開発が進められている。農産物表面の細菌、カビなどの病原体は、農産物の腐敗や劣化を促進するだけでなく、毒素を発生させることで、食品の安全性をも脅かしてしまう。例えば、輸入されたコショウにカビが感染しており、表面から高い発がん性を持つアフラトキシン（カビ毒）が検出され、輸入停止になった事例がある。しかしながら、収穫後の農産物表面の細菌、カビなどを押さえるポストハーベスト農薬は国内では使用禁止となっており、既存技術で有効な殺菌消毒技術は限られている。大気圧非平衡プラズマを用いた農産物の殺菌消毒技術は、以上の問題を解決して食の安全・安心を支える基礎技術として極めて有望である。

以上の研究動向の中で、生体や農産物などの生物を対象とする研究では、対象物が減圧環境や高温に耐えられない等の理由から、大気圧非平衡プラズマは極めて有効な唯一の研究ツールであり、他の技術では実現することが出来ない反応場であると言える。

既存の大気圧非平衡プラズマの応用研究では、放電の安定性、容易さなどから、誘電体バリア放電が広く用いられてきた。既存の誘電体バリア放電技術では、セラミックスなどで絶縁された導電性電極を用い、放電ガス雰囲気中に設置した2つ以上の電極に交流高電圧を印加することで、大気圧非平衡プラズマを容易に生成する。誘電体バリア放電のメカニズムとしては、放電中に発生した電子が誘電体表面に捕捉、充電されることで、局所的な放電やプラズマの空間的偏りが抑制され、比較的広い面積で一様なプラズマを生成されることが明らかになっている。

しかし、誘電体バリア放電の安定性は電極表面での電界強度分布に強く依存し、不均一な電界強度分布では一様なプラズマ生成が非常に難しい。電極形状は、対向型の平行平板やトーチ型など、対称形でシンプルな電極配置であり、電極間隔も狭い領域での放電となっている。これまでの誘電体バリア放電技術では、電界強度を均一にすることが難しい為、立体形状に対応可能な大気圧非平衡プラズマを作ることは困難であり、複雑形状や凹凸、様々なサイズを持つ農産物に対応することは、非常に難しかった。

研究代表者はこれまでに、任意で複雑な立体形状に適用可能な立体形状を持つ大気圧非平衡プラズマの生成技

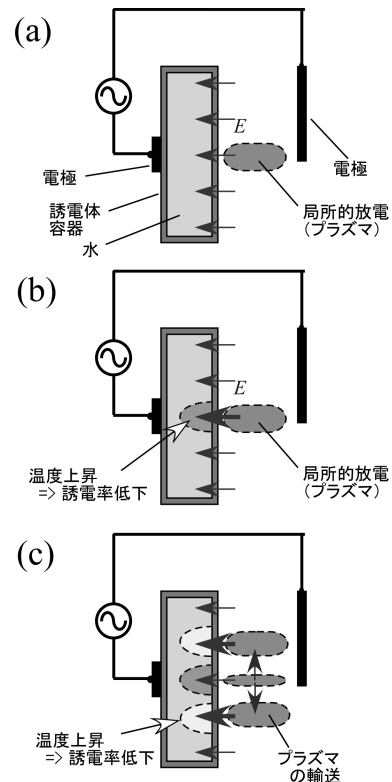


図1 水 誘電体多層電極の安定化メカニズム

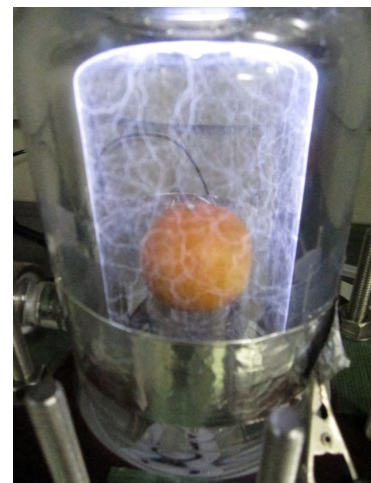


図2 水 誘電体多層電極を用いて生成した典型的放電（放電内にミカンを設置）

術の開発に成功している 1),2) . 本技術では, 電極表面の誘電体として水を利用する「水 誘電体多層電極」を用いている. 本技術では, 水の誘電率の負の温度依存性と, 電界による水の誘電加熱特性を利用する. 水の誘電率は負の温度依存性を持っており, 温度の増加に伴って減少し, また, 水は強い電気双極性を持つ液体で, 交流電界によって誘電加熱を起こす. この 2 つの物理現象が作用して, 以下の様な放電の安定化メカニズムが期待できる.

水 誘電体多層電極では, 金属電極の表面に水を内包した誘電体容器 (例えばガラス容器など) を設置した構造を持っている (図 1). 電極間に電圧を印加して誘電体電極表面のある部分に局所的な放電領域が発生して電界が集中すると (図 1 (a)), 電界強度が増加した部分の近傍の水が誘電加熱によって加熱されて温度が上昇し (図 1 (b)), 水中に電極面の放電分布に対応した温度分布が形成される. ここで, 誘電率の温度依存性に従って, 水温が高い領域では, 水温の低い領域よりも水の誘電率が低くなる為, 放電は誘電率の低い領域 (放電領域) から高い領域 (非放電領域) に次々と移動し (図 1 (c)), 結果として電極面に一様な大気圧放電が形成される.

このメカニズムは, 電界が不均一となる複雑・立体形状を持つ電極でも動作すると考えられる. 以上のメカニズムを実験的に実証する為に, フラスコ形状の様に直径が一定でない立体構造を持つ水 誘電体多層電極を用いた放電を行ったところ, 直径 100mm 程度の大きさで立体形状の大気圧非平衡プラズマを生成, 農産物に直接プラズマ処理することが可能となった (図 2).

本研究課題では, 以上の水 誘電体多層電極のメカニズムの解明を進め, その工業的応用の為の基礎的知見を得ることを目的とする. 水 誘電体多層電極では, 誘電体の誘電率の温度依存性や, 誘電加熱特性などの諸条件が重要なパラメータであり, これらを放電中にリアルタイムで計測することは極めて重要である. また, 以上のパラメータと放電特性や発生可能な形状を比較することで, 立体形状大気圧プラズマの最適化や工業的応用への可能性の検討を行う.

- 1) 特許: “プラズマ生成装置” (特願 2011-247680, PCT/JP2012/079297), 佐賀大学, 三沢 他.
- 2) T. MISAWA, et.al., Frontier of Applied Plasma Technology, Vol. 6-1, pp.1-5 (2013).

2. 研究の目的

申請者が新たに開発した「水 誘電体多層電極」を用いて生成される, 立体形状を持つ大気圧プラズマ生成技術のメカニズムの解明を行う. 本技術では, 大気圧非平衡プラズマを生成する際に用いられる誘電体に, 水などの液体を併用することにより, 電界の不均一が発生しやすい立体形状の大気圧非平衡プラズマを容易に生成可能である. そこで, 誘電体の誘電率, 導電率, 電気双極子モーメント等の電気的特性を放電中にリアルタイムで計測し, 放電挙動と比較することにより, 本技術のメカニズムの解明を行い, 表面改質, 農業応用など, 様々な工業的応用に適用可能な, 立体形状大気圧プラズマの実用的技術とすることを目的とする.

3. 研究の方法

本研究で対象とする, 水 誘電体多層電極では, 電極材料に内包する水 (液体誘電体) の電気的特性の持つ温度依存性などが基礎的パラメータになることから, これらの計測がメカニズム解明の為のカギとなる. 本研究課題では研究期間中に, 水 誘電体多層電極を用いた大気圧非平衡プラズマのメカニズム解明に重点を置いて, 主に以下の 3 点を研究, 検討する.

- ・液体誘電体の誘電率, 導電率, 電気双極子モーメント, 温度等の放電中のリアルタイム計測技術の開発 (基礎特性の計測)
- ・立体形状の大気圧非平衡プラズマの放電挙動と放電メカニズムの解明 (構造とメカニズム)
- ・水 誘電体多層電極を用いた大気圧非平衡プラズマの形状の検討 (放電現象の最適化)

3 - 1. 液体誘電体の誘電率, 導電率, 電気双極子モーメント等の放電中のリアルタイム計測技術の開発

本研究で題材とする「水 誘電体多層電極」では, 誘電体として用いる水の誘電率, 導電率, 電気双極子モーメントなどの電気的特性や, 温度, 熱伝導率などの材料物性が, 立体形状の大気圧非平衡プラズマの生成に強く影響を与えていると考えられる. そこで, これらの物理パラメータの放電中のリアルタイム制御・計測の計測技術の開発を行った.

通常の物性計測では、対象物の電位がほぼ接地電位と同じ為、既存の計測器を用いた計測が可能であるが、大気圧非平衡プラズマの場合、放電中に数 kV 程度の高電圧が常に材料に印加される為、既存の計測器をそのまま用いての測定は出来ない。数 kV 程度の絶縁耐圧を持ち、なおかつパラメータの計測が可能になる、大気圧放電中でも利用できるパラメータの制御・計測システムの開発を行う。

図 3 に、開発した放電装置およびパラメータの制御・計測システムの概略を示す。2 組の円板形の水誘電体多層電極を設置した円筒形アクリル容器に放電ガス (Ar など) を流し、電極間 (図中、メッシュ電極) に交流高電圧を印加することによって、大気圧非平衡プラズマを生成する。水誘電体多層電極は、ガラス容器の一方の表面に金属製メッシュ電極を設置した構造になっており、内部に内包される水はガラス容器側面の 2 ヶ所の導入口を通して循環可能な構造となっている。

プラズマの生成と安定化メカニズムに深く関連すると考えられる水 (液体誘電体) の温度制御、電気的特性の測定、大気圧放電を同時に実現する為に、ガラス製熱交換器で電氣的に絶縁した水の循環型恒温システム、絶縁型温度計、LCR メーターを利用した電気的特性測定システムを開発し、大気圧放電中の誘電率、導電率、双極子モーメントのリアルタイム測定を行った。

本研究の過程において、当初想定していたペルチェ式冷却装置が、放電電源からの漏電と思われるトラブルによって破損する状況が複数発生し、計測系の構成を根本的に考えなければならなくなった。当初、水の電気的特性をリアルタイムで計測することを想定していたが、漏電によるインピーダンスアナライザの破損の可能性が無視できなくなったことから、研究途中で間接的な計測方法に変更した。また、グラウンド電位への漏電電流を出来るだけ減少させる為、放電電源についても、これまでの片側接地型の電源ではなく、トランスの中間点にグラウンドを配置した中性点接地方式に変更することに変更した。このため、高電圧電源は、この実験用の特注品に変更し、当初購入予定だったインピーダンスアナライザは取りやめて既存の LCR メーターで計測することとした。

また、放電の内部構造の変化について、市販の一眼レフデジタルカメラ、高速カメラ、マクロレンズ付きカメラ、分光器などを用いた光学計測を行った。

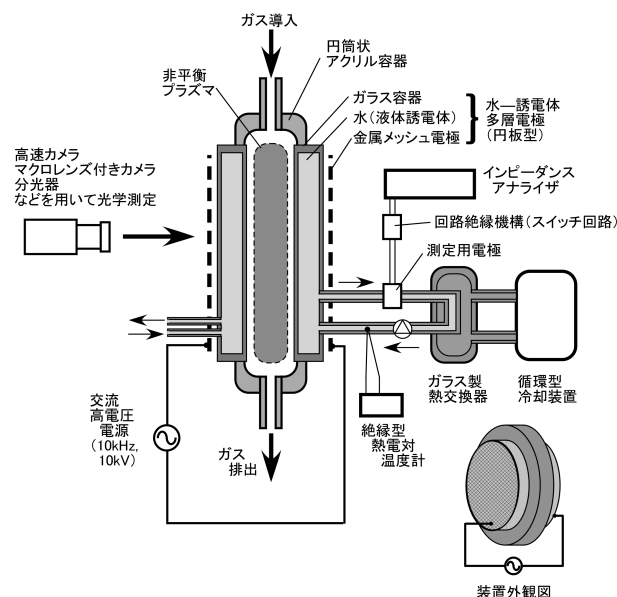


図 3 水誘電体多層電極の放電装置およびパラメータ制御・計測システム概略図

3 - 2 . 立体形状の大気圧非平衡プラズマの放電挙動と放電メカニズムの解明 (構造とメカニズム)

液体誘電体の電気的特性のリアルタイム測定結果と放電挙動との比較を用いて、放電メカニズムの解明を進めた。温度の上昇に伴って誘電率が減少する (図 4) ことから、この水誘電体多層電極では、目的で述べた放電の安定化メカニズムが発生していると予想される。このメカニズムは、誘電率だけでなく、導電率、電気双極子モーメント、液体誘電体の温度や加熱特性、熱伝導率なども同時に作用していると考えられ、液体誘電体の基礎特性が放電特性に強く影響を与えていると考えられる。

そこで、以上の基礎的パラメータと放電電圧、放電電流、放電構造と動的挙動を比較することにより、メカニズムを解明する。基礎的パラメータの計測には前述

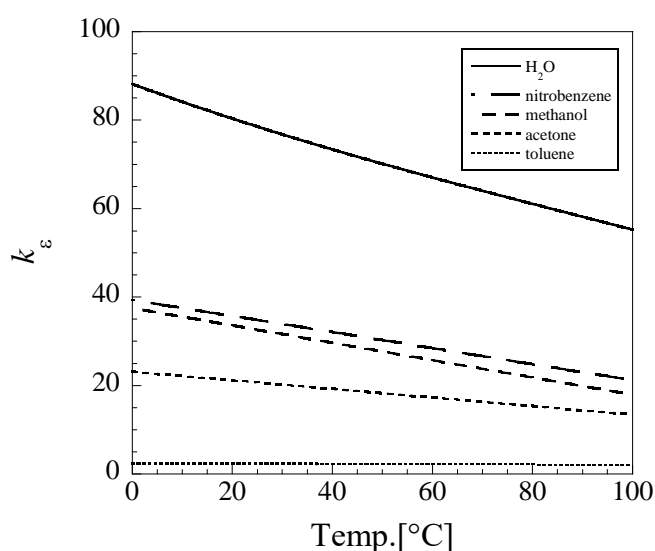


図 4 液体誘電体の比誘電率の温度依存性 (化学便覧より抜粋)

の電気的特性と誘電体温度のリアルタイム計測システムを用い、加えてカメラなどを用いた光学測定を用いて放電構造および発光スペクトルなどの放電挙動の解析を進めた。

また、本技術の最終的な目標である、複雑な立体形状に適応した大気圧非平衡プラズマの生成の為に、大気圧非平衡プラズマの形状の検討を行う。本技術では、不均一な電界分布を持つ放電領域でも比較的一様な大気圧非平衡プラズマを生成出来ることから、複雑な電極形状、複数の電極配置、放電ガスの検討などを行い、具体的な工業製品を対象とする立体形状大気圧非平衡プラズマ生成技術の確立と最適化を進める。

4. 研究成果

3 - 1. 液体誘電体の誘電率、導電率、電気双極子モーメント等の放電中のリアルタイム計測技術の開発

現在、本技術の実用化に向けて、企業と特許出願を進めており、主な研究成果については、既定の期日（2021年6月12日）まで、公表を差し控える。

3 - 2. 立体形状の大気圧非平衡プラズマの放電挙動と放電メカニズムの解明（構造とメカニズム）

現在、本技術の実用化に向けて、企業と特許出願を進めており、主な研究成果については、既定の期日（2021年6月12日）まで、公表を差し控える。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 8 件)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

現在、企業との共同出願に向けて、企業と契約、出願作業を遂行中

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

出願年：

国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：三沢達也

ローマ字氏名：Tatsuya Misawa

所属研究機関名：国立大学法人・佐賀大学

部局名：理工学部

職名：助教

研究者番号（８桁）：70346873

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。