

令和元年6月17日現在

機関番号：33302

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06245

研究課題名(和文) オゾンバブル放電による水中生成物の成分制御と農作物生長促進への応用

研究課題名(英文) Concentration control of underwater products by electrical discharge inside barrier discharge treated gas bubbles and its application to plant growth promotion

研究代表者

大澤 直樹 (OSAWA, Naoki)

金沢工業大学・工学部・准教授

研究者番号：40454227

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、エジェクタと誘電体バリア放電(DBD)装置を組み合わせ、各種条件でDBD処理された空気の泡を含む流水を生成する手法と、その流水中でパルス放電を発生させる手法を開発した。また、開発した実験システムを用いて各種放電処理水を生成し、コマツナの生長促進効果を調べた。その結果、1000ppmのオゾンガスを混合した水において、コマツナの地上部乾燥重量が大きくなることを明らかにできた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

大気圧中のプラズマで発生したイオンや活性種の農業応用が国内外で盛んに研究されており、放電処理水を連続的に生成する手法の構築が切望されている。本研究で開発した手法では、オゾン気泡を含む水、窒素酸化物の気泡を含む水、パルス放電処理したオゾン気泡を含む水、パルス放電処理した窒素酸化物の気泡を含む水を連続的に生成できることを明らかにした。また、オゾン気泡を含む水では、コマツナの生長がわずかに促進することが明らかにした。この成果は、農作物の生産性向上に寄与するものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：Non-thermal plasma is a promising technology for agricultural field. In this research, plasma treated water generation system which consists of an ejector, a dielectric barrier discharge device, and pulsed discharge device was developed. Using this system, the effect of water with various dielectric barrier discharge treated air bubbles and pulsed discharge application on growth characteristics for Brassica rapa var. perviridis was investigated. Plant growth promoting effect for Brassica rapa var. perviridis was confirmed under the condition of water included both 1000 ppm ozone gas bubbles and liquid fertilizer.

研究分野：放電・プラズマ

キーワード：放電処理水 水中気泡放電 パルス放電 誘電体バリア放電 農業応用 オゾン 窒素酸化物 ラジカル

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

食の安心や安全に関する問題が注目されている。農業分野では、残留農薬による被害や農業排水による環境の汚染が問題となっているため、化学的に合成された農薬及び肥料を使用しない有機農業の拡大が期待されている。平成18年12月に制定された「有機農業の推進に関する法律」に基づき、農林水産省は、平成19年4月末に「有機農業の推進に関する基本的な方針」（以下「基本方針」）を、平成26年4月には、有機農業の拡大を図ることを目的に新たな基本方針を策定した。有機農業は、これらの課題を一举に解決できる可能性を有するが、(1) 低い収量レベル、(2) 不安定な生産性、(3) 高い生産コストが課題となっている。一方、農業業界全体では、高齢化や収益性の関係から農業従事者が40年間で1,200万人が200万人に減少したとの報告がある。しかしながら、1人当たりの生産は、3.5トンから25トンと約7倍になっており、この生産性の高さと育種を含めた技術力の高さが日本の農業を支えているとの報告がある⁽¹⁾。これらのことから、更なる安心や安全性の追求、生産性の向上、農業技術力の向上のためには、農薬使用量の削減や省力化が可能な機器やシステムの開発が不可欠である。

近年、大気圧中のプラズマで発生したイオンや活性種の農業応用が国内外で盛んに研究されており、農薬使用量の削減、農業排水量の削減、生産安定性・品質向上が可能であることが示されている^{(例えば (1) ~ (4))}。これらの挑戦的な成果をベースとして、大気圧プラズマの農業への適用をさらに加速させるためには、原料ガス供給用の高圧ポンプや原料ガス供給用のポンプ装置などを使わずにオゾンや硝酸イオンを含む水を連続的に生成する方法の構築や溶存オゾンや硝酸イオン濃度を制御する方法の構築が必要である。このような課題を解決し得るアプローチとして、動力を使用しなくても放電処理したガスを液体に吸引し、混合できるエジェクタの適用や、配水管内での水中気泡放電の適用が考えられる。

研究代表者は、大気圧下での空間一様に発生する誘電体バリア放電 (Dielectric Barrier Discharge, 以後 DBD と略す。) を用いた空気原料オゾン発生器による窒素酸化物の発生量制御の研究に従事しており、放電の形態と放電電力を変えるだけで、オゾンガスと N_2O_5 (硝酸イオンの原料物質) の濃度を制御可能であることを明らかにした⁽⁵⁾。また、バブリング法によるオゾン水生成において、注入オゾンガス濃度を制御するだけで溶存オゾン濃度を調整できることを確認した。更に、電力用遮断器の一種であるガス遮断器において電流遮断性能を左右するラバルノズル形状の研究にも従事しており、ノズルの喉(スロート)部での流体の速度や圧力を制御し、アーク放電を消滅させる方法を研究してきた⁽⁶⁾。本申請研究で使用されるエジェクタは、ラバルノズルの機能と類似しており、ノズルのスロート部で発生する負圧を利用してガスを吸引するものである。これらの知見・成果・経験を組み合わせるはじめて、殺菌に有効なオゾンと農作物の生長に不可欠な硝酸イオンを含み、且つ、環境性・経済性・量産性に優れた放電処理水の連続生成法を構築できると考えた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、(1) 形状を変更可能なエジェクタを製作し、ノズル形状が溶存オゾン濃度に及ぼす影響を明らかにする、(2) DBD 装置への放電電力を制御したときの溶存オゾン・硝酸イオン濃度特性を明らかにする、(3) 気泡を含む流水中のパルス放電発生装置を試作し、放電の伸展様相や放電生成物の種類を明らかにする、(4) 各種放電処理水を用いてコマツナの生育実験を行い、本手法で生成した各種放電処理水によるコマツナの生長促進効果を確認する。

3. 研究の方法

(1) DBD 処理された空気の泡を含む流水の生成法の構築

DBD 処理された空気を連続的に生成するシステムの構築と溶存オゾン濃度を高くできるノズル形状を明らかにした。構築したシステムは、DBD 装置、エジェクタ、溶存オゾン濃度計で構成した。エジェクタのスロート部に負圧が発生すると、乾燥空気が DBD 装置を通過して流水中に供給される仕組みとした。DBD 装置には、交流高電圧発生装置が接続されており、印加電圧や周波数を変えることによって放電電力を変えることができる。放電電力の測定には、 $V-q$ Lissajous 法を用いた。オゾンガス濃度は、放電電力を制御して調整した。オゾンガス濃度の測定には、紫外線吸収式オゾン濃度計 (EG-3000/01, 荏原実業) を用いた。溶存オゾン濃度の測定には、紫外線吸収式溶存オゾン濃度計 (EL-600, 荏原実業) を用いた。気泡サイズの観察には、一眼レフカメラ (D800E, ニコンイメージング) を用いた。

図1に形状変更可能なエジェクタの写真を示す。エジェクタは、アクリル製とした。円筒状のアクリル容器の内部には、収束部、スロート部(混合物)、発散部が分割して収納されており、それぞれの部品を交換することによって収束部や発散部の角度ならびにスロート直径を変えることができる仕組みである。ガスの吸引口には、耐オゾンの逆止弁を設け、流水が DBD 装置やオゾン濃度計などに侵入しない仕組みとした。

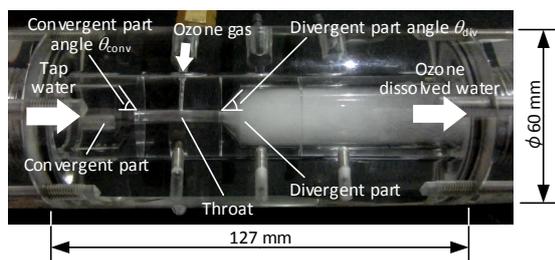


図1 形状変更可能なエジェクタの写真

(2) 溶存オゾンと硝酸イオン濃度の制御

DBD 装置への放電電力を変えて溶存オゾン濃度と硝酸イオン濃度の制御特性を明らかにした。放電処理水の生成法は DBD 装置から排出されるガスのバブリングとした。オゾン濃度と溶存オゾン濃度の測定には紫外線吸収式オゾン濃度計と紫外線吸収式溶存オゾン濃度計を用いた。硝酸イオン濃度の測定にはコンパクト硝酸イオンメータ (LAQUA twin B-743, 堀場製作所) を用いた。濃度測定タイミングはバブリング終了後とした。

(3) 気泡を含む流水中の放電特性と生成物特性の解明

様々な条件で DBD 処理した気泡を含む流水中のパルス放電の伸展特性と気泡を含む流水中の放電によって生成された活性種の種類を調べた。ガラスビーズ (直径: 6 mm) が充填された同軸円筒型の DBD 装置を用いた。DBD 処理した気泡を含む流水の生成にはエジェクタを用いた。エジェクタの上流側にポンプを接続し、ポンプを介してタンク内の水道水をエジェクタに供給した。エジェクタに設けたガス吸引口から 160 mm 下流にパルス放電発生用の針電極を設けた。針電極への電圧印加には、磁気パルス圧縮方式の高電圧パルス電源 (MPC3010S-50SP, 立ち上がり時間: 約 50 ns, 末松電子製作所) を用いた。放電は、デジタル一眼レフカメラや紫外線撮影用レンズ (Rayfact UV-105mm F4.5, Nikon) を付けた ICCD カメラ (Ultra-NEO, nac Image Technology Inc.) で観察した。放電によって生成された活性種の種類を明らかにするため、マルチチャンネル分光器 (PMA-50, 浜松ホトニクス) を用いて放電の発光スペクトルを観察した。

(4) 本手法で生成した各種放電処理水によるコマツナの生長促進効果

図 2 に放電処理水生成システムを示す。エジェクタによって DBD 装置を通過した空気が流水に吸引される。気泡を含む流水中の放電の発生には 5 対の針電極を用いた。吸引ガス流量を 2.0 L/min, 流水の流量を 7.3 L/min, 貯水量を 4 L, 水の循環時間を 10 min とした。DBD 装置の放電電力を制御することにより流水に吸引される空気の成分を変えることができる。

図 3 は、FTIR で分析した DBD 処理後空気の IR スペクトルである。DBD 装置の放電電力を 7.6 W にすると、1000ppm のオゾンを含む空気を発生できる。また、46.6 W にすると硝酸や窒素酸化物を含む空気を生成できる。この実験では、(1) 図 6 内 (a) の気泡を含む水、(2) 図 6 内 (b) の気泡を含む水、(3) (1) の条件で生成した水をパルス放電処理した水 (パルス放電の平均電力: 72.2 W), ならびに、(4) (2) の条件で生成した水をパルス放電処理した水を用いて 9 株のコマツナ (BC-06, ユーイング) を 30 日間育てた。栽培には水耕栽培器 (UH-A01E1, ユーイング) を用いた。栽培中は付属の LED を常に点灯させた。4 L の放電処理水に対し 20 mL の液体肥料 (UH-ZK020, ユーイング) を添加した。水は 2 日毎に交換した。地上部草丈, 乾燥重量, 茎の太さなどを測定した。

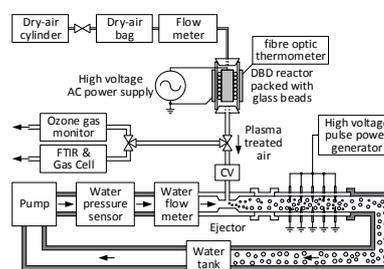


図 2 循環型放電処理水生成システム

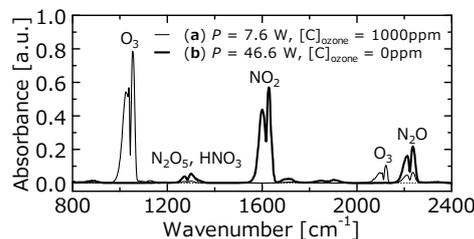


図 3 DBD 処理後空気の IR スペクトル

4. 研究成果

(1) DBD 処理された空気の泡を含む流水の生成法の構築

図 4 と図 5 はエジェクタの形状と溶存オゾン濃度の関係である。スロート直径を大きくすると溶存オゾン濃度が高くなることを確認した。また、収束部の角度は 60° , 発散部の角度は 45° のときに溶存オゾン濃度が高くなることを確認した。最も溶存オゾン濃度が高くなったときの溶解効率は 60% であることを確認した。この理由を明らかにするため、エジェクタ下流部の気泡の直径分布を調べた。図 6 にスロート径を変えたときの球相当気泡直径分布を示す。同図よ

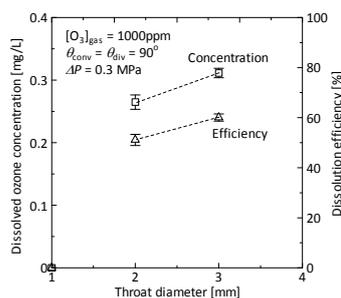


図 4 スロート直径の影響

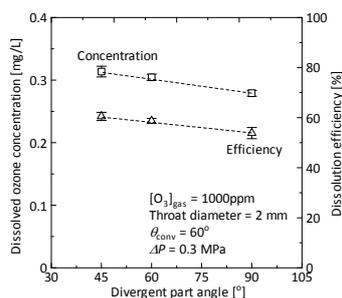


図 5 収束部・発散部の影響

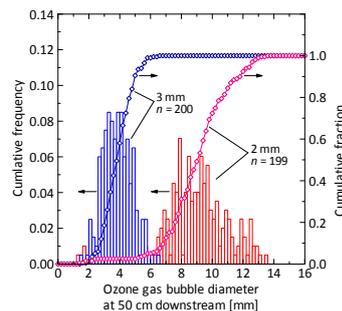


図 6 球相当気泡直径分布

り、溶存オゾン濃度が高くなったスロート径では、オゾンを含む気泡の球相当直径が小さくなっていった。以上のことから、DBD 処理空気の流水への溶解効率を高くするには、気泡直径を小さくできるエジェクタ形状を選択する必要があることを確認できた。

(2) 溶存オゾン濃度と硝酸イオン濃度の制御

図 7 は、放電電力を変えて乾燥空気に注入されたエネルギーを変えたときの溶存オゾン濃度と硝酸イオン濃度特性である。600 J/L までは、注入エネルギーを大きくすると、溶存オゾン濃度が高くなった。注入エネルギーをそれよりも大きくすると溶存オゾン濃度は急激に低下し、0 mg/L となった。これは、DBD 装置の熱や放電空間で発生した窒素酸化物によってオゾンが消滅したためである。一方、硝酸イオン濃度は放電電力を大きくすると高くなった。これは、硝酸イオンの原料となる窒素酸化物の濃度が高くなるためである。以上のことから、放電電力を制御して DBD 処理空気の組成をコントロールすれば、溶存オゾンと硝酸イオンを多く含む水を生成できることがわかった。

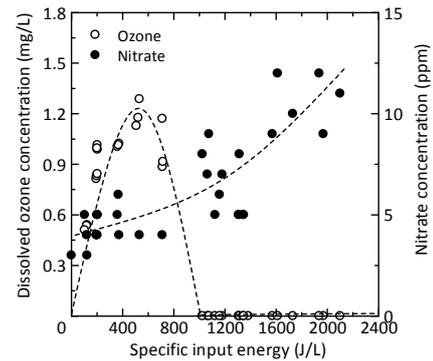
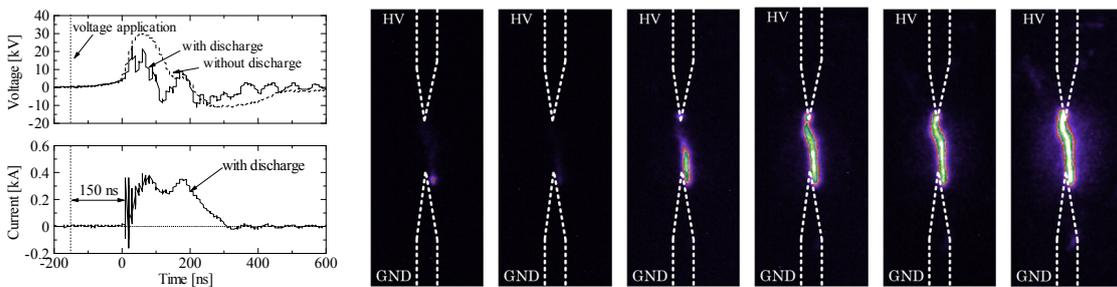


図 7 放電電力を変えたときの溶存オゾン濃度、硝酸イオン濃度特性

(3) 気泡を含む流水中の放電特性と生成物特性の解明

図 8 は、ICCD カメラを用いて気泡を含む流水中で発生したパルス放電を観察したものである。針電極の先端で発生した放電は、気泡や水流の影響を受けて湾曲するのではなく、電極間に直線的に発生することを明らかにできた。



(a) 印加電圧・放電電流波形 (b) 5 ns (c) 10 ns (d) 15 ns (e) 20 ns (f) 30 ns (g) 40 ns

図 8 ICCD カメラによる気泡を含む流水中での放電伸展様相

図 9 は、パルス放電の電力と溶存オゾン濃度の関係である。パルス放電によって溶存オゾン濃度は低下することがわかった。図 10 は、放電の発光スペクトルを調べたものである。オゾン気泡を含む流水中での放電や空気気泡を含む流水中での放電からは 309 nm, 565 nm ならびに 777 nm の発光スペクトルを観察できた。これらのことから、放電によって OH ラジカルや O ラジカルが水中で生成されることを確認できた。OH ラジカルと O ラジカルが発光強度を比較すると、O ラジカルが発光強度は、空気気泡を含む流水中での放電よりもオゾン気泡中での放電の方が高かった。一方、OH の発光強度は、空気気泡を含む流水中での放電よりもオゾン気泡中での放電の方が低かった。以上のことから、パルス放電によって破壊されたオゾンは O ラジカル生成に利用されたと考えられる。

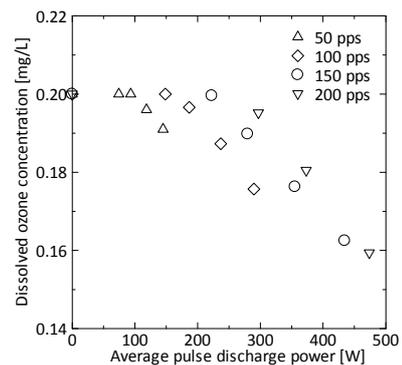


図 9 溶存オゾン濃度の変化

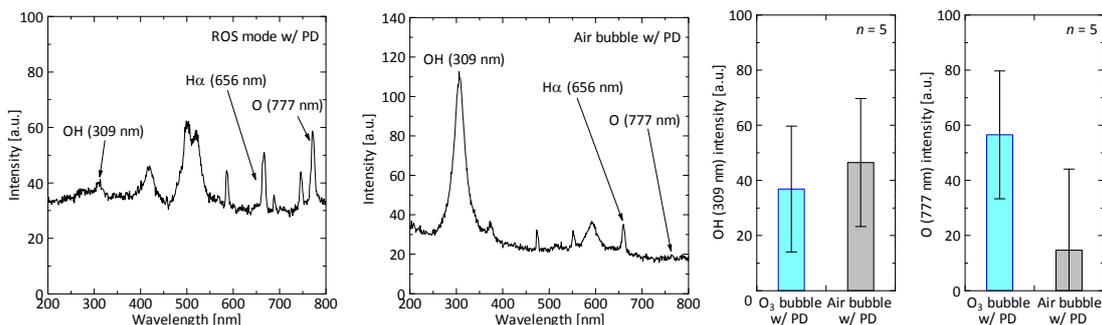


図 10 分光器による放電の発光スペクトルの観察 (オゾン気泡の場合と空気気泡の場合)

(4) 本手法で生成した各種放電処理水によるコマツナの生長促進効果

図 11 は水道水, オゾン気泡を含む水, 窒素酸化物の気泡を含む水でコマツナを水耕栽培したときの 14 日目の写真である。また, 図 12 は, パルス放電処理した水道水, オゾン気泡を含む水, 窒素酸化物の気泡を含む水でコマツナを水耕栽培したときの 14 日目の写真である。オゾン気泡を含む水や窒素酸化物の気泡を含む水を用いても, コマツナが生長することを確認した。

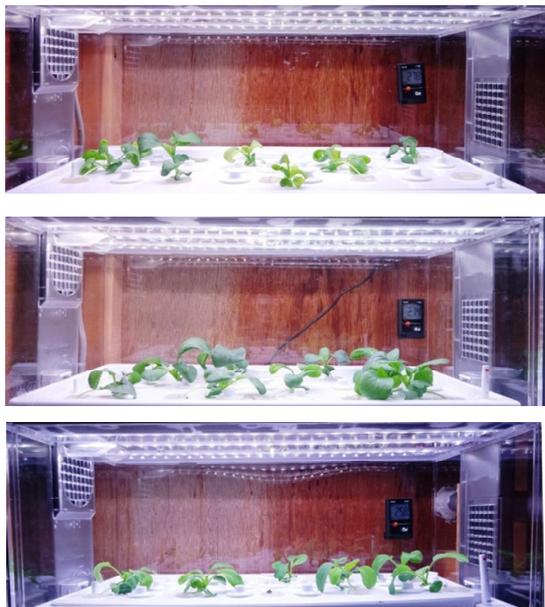


図 11 水道水(上), オゾン気泡を含む水(中), 窒素酸化物の気泡を含む水(下)によるコマツナの栽培(14 日目)



図 12 パルス放電処理した水道水(上), オゾン気泡を含む水(中), 窒素酸化物の気泡を含む水(下)によるコマツナの栽培(14 日目)

図 13 は 30 日目の地上部乾燥重量を整理したものである。水道水, 窒素酸化物の気泡を含む水, パルス放電処理したオゾン気泡を含む水, ならびにパルス放電処理した窒素酸化物の気泡を含む水では, 地上部乾燥重量はほぼ同じであった。一方, オゾン気泡を含む水では, 乾燥重量が水道水よりも 7%大きくなることを確認した。

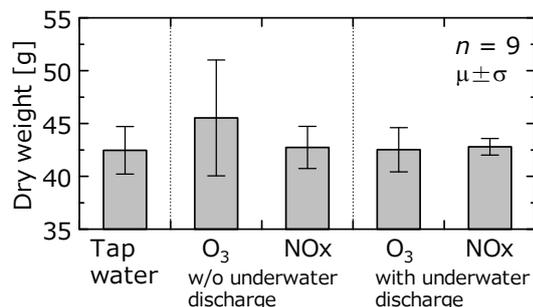


図 13 地上部乾燥重量

<引用文献>

- (1) 高木浩一:「高電圧・プラズマの農水分野への利用」, JSPS プラズマ材料科学第 153 委員会, 一般公開研究会農水食分野への高電圧・プラズマ利用資料(2015)
- (2) 蛭原健治, 高山正広, H. D. Strycowska, 池上知顯, 行徳裕, 立花賢浩:「誘電体バリア放電によるオゾンの広範囲濃度制御と土壌処理への応用」, 電学論 A, Vol. 126, No. 10, pp. 963-969(2006)
- (3) 江原由泰, 高田明宏:「放電生成物による農作物への成長促進作用」, 電学論 A, Vol. 135, No. 4, pp. 211-216(2015)
- (4) A. Bertaccini, E. Biondi, V. Colombo, N. Contaldo, M. Gherardi, R. Laurita, A. Liguori, C. Lucchese, S. Paltrinieri, S. Perez, A. Stancampiano and E. Satta: “*In vivo* investigation on the effects of plasma activated water against plant pathogenic bacteria”, in Proc. of the 22nd Int. Symp. Plasma Chemistry (ISPC), P-I-3-12 (2015)
- (5) N. Osawa, Y. Yoshioka: “Progresses of Fundamental Research and Application of Atmospheric Pressure Townsend Discharge”, J. Adv. Oxid. Technol., Vol. 17, No. 2, pp. 217-229 (2014)
- (6) 大澤直樹, 吉岡芳夫:「熱パuffa式 GCB におけるガス吹付け特性とガス通路構造との関係」, 電学論 B, Vol. 123, No. 10, pp. 1208-1214 (2003)

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① 山口宗一郎, 尾山太一, 中野良祐, 大澤直樹:「オゾン気泡を含む流水中でのパルス放電

の発生とインジゴカルミン分解への効果」, Vol. 43, No. 2, pp. 84-89 (2019)

- ② N. Osawa, T. Tsuji, R. Ogiso, Y. Yoshioka: “Effect of nitrogen addition to ozone generation characteristics by diffuse and filamentary dielectric barrier discharges at atmospheric pressure”, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*, Vol. 78, 20804 (2017)

[学会発表] (計 9 件)

- ① 早水伸伍, 小木曾良太, 大澤直樹, 吉岡芳夫, 花岡良一: 「エジェクタノズルを利用した気泡の発生とパルス放電による気泡微細化に関する研究」, 平成 28 年電気学会 A 部門大会, p. 278 (2016)
- ② 小木曾良太, 早水伸伍, 大澤直樹, 吉岡芳夫, 花岡良一: 「バリア放電処理された乾燥空気バブリングによるオゾン水と硝酸イオン水の生成」, 平成 28 年電気学会 A 部門大会, p. 273 (2016)
- ③ 小木曾良太, 田邊一成, 大澤直樹, 吉岡芳夫: 「バリア放電処理された乾燥空気バブリングによる溶存オゾン・硝酸イオン濃度特性」, 電気学会プラズマ・パルスパワー・放電合同研究会, PST-16-104/PPT-16-84/ED-16-200, pp. 81-85 (2016)
- ④ R. Ogiso, K. Tanabe, N. Osawa, Y. Yoshioka: “Change of components in dry-air bubbling water treated by plasma due to change of input energy to dielectric barrier discharge device”, in *Proc. 23rd Int. Symp. Plasma Chemistry*, pp. 309-312 (2017)
- ⑤ 山口宗一郎, 倉光勇旗, 小木曾良太, 大澤直樹, 吉岡芳夫, 大西克利, 夷藤喜造: 「エジェクタで生成した水中オゾンバブルへのパルス放電照射と溶存オゾン濃度への影響」, 平成 29 年度電気関係学会北陸支部連合大会講演論文集, 講演番号 A1-13 (2017)
- ⑥ N. Osawa, R. Ogiso, S. Hayamizu, Y. Okabe, Y. Yoshioka, Katsutoshi Onishi, Yoshizou Ito: “Continuous generation of ozone dissolved water by DBD device with ejector nozzle -Effect of nozzle design parameter-”, in *Abstract book, 10th Asia-Pacific Int. Symp. on the Basics and Appl. Plasma Technol.*, p. 131 (2017)
- ⑦ R. Ogiso, S. Yamaguchi, Y. Kuramitsu, N. Osawa, Y. Yoshioka: “Effect of Humidity in Air Treated by DBD on Nitrate Ion Concentration in Distilled Water”, in *Abstract book, 10th Asia-Pacific Int. Symp. on the Basics and Appl. Plasma Technol.*, p. 141 (2017)
- ⑧ 山口宗一郎, 尾山太一, 中野良祐, 大澤直樹: 「オゾン気泡を含む流水中でのパルス放電の発生とインジゴカルミン分解への効果」, 第 42 回静電気学会全国大会講演論文集, pp. 21-26 (2018)
- ⑨ 大澤直樹, 尾山太一, 中野良祐, 山口宗一郎: 「各種放電処理空気を含む水を用いたコマツナの水耕栽培におけるパルス放電の影響」, 平成 31 年電気学会全国大会講演論文集, p. 185 (2019)

[その他]

ホームページ等

金沢工業大学 教育・研究業績 大澤直樹

<https://kitnet10.kanazawa-it.ac.jp/researcherdb/researcher/RAHABI.html>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

いません

(2) 研究協力者

研究協力者氏名: 小木曾 良太, 山口 宗一郎, 倉光 勇旗, 中野 良祐, 尾山 太一,
岡部 洋一, 田邊 一成, 早水 伸伍, 吉岡 芳夫, 花岡 良一

ローマ字氏名: OGISO, Ryota, YAMAGUCHI, Soichiro, KURAMITSU, Yuki, NAKANO, Ryosuke, OYAMA,
Taichi, OKABE, Yoichi, TANABE, Kazunari, HAYAMIZU, Shingo, YOSHIOKA,
Yoshio, HANAOKA, Ryoichi

※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。