

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 7 日現在

機関番号：34310

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13611

研究課題名(和文) 農業応用を目指した全大気圧イオン照射システム

研究課題名(英文) All atmospheric pressure ion irradiation system aiming at agricultural application

研究代表者

和田 元 (Wada, Motoi)

同志社大学・理工学部・教授

研究者番号：30201263

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では大気圧イオン質量分析方法のうち、スルーputが大きいゲルディエンコンデンサ法によるイオン流生成を実証し、農作業現場でプラズマを生成することにより土壌、灌漑の成分改良が可能であるか検討を行った。スルーput的には未だ不十分なものの、RFプラズマ源とゲルディエンコンデンサを組み合わせることにより、簡便で高効率、短時間に大気組成の概要を評価できる計測システムを構築できた。また、大気イオン検出電極材料の大気圧中での変質が、数十分程度の比較的速い時間で発現することを見出し、プラズマ生成についても高圧低周波放電や、高周波放電などを用いて、安定で反応率の高い大気圧イオン流源を実現することができた。

研究成果の概要(英文)：A throughput higher than an ion mobility spectrometer of mass separated atmospheric pressure ion production has been demonstrated with a Gerdien condenser, and the possibility of applying the system to improve soil and irrigation water quality at the site of agricultural production. A compact analysis system has been successfully assembled with a radio-frequency driven atmospheric pressure plasma source, which was capable of evaluating the condition and components contained in the atmosphere. The performance of the analysis system was studied and the surface of the ion detection electrode of a Gerdien condenser was found aged with the time constants of the order of ten minutes. A substantial improvement in stability for atmospheric pressure ion production was obtained by increasing the discharge frequency of an AC discharge power supply. The produced flow with nitrogen ions was guided to radish seeds on a hydroponic bed to examine effects due to ions on the seeds' growth.

研究分野：プラズマ工学

キーワード：大気圧プラズマ イオン移動度 イオン流 atmospheric plasma ion mobility ion flow

1. 研究開始当初の背景

大気圧プラズマ研究の発展とともに、既に大気圧プラズマの農業分野への応用が本格化し始めた。国内外の研究者がプラズマ大気窒素固定化、カビや微生物の大気圧プラズマによる不活性化、大気圧プラズマを用いた混入農薬の分析などにも用いられてきた。しかしながら、大気圧イオン流はイオン種分離が難しいことから、適切な質量選択されたイオン流を農業に適用する得失については十分な検討がなされてこなかった。これは大気圧質量分析・分離がスルーブットの小さなイオン移動度スペクトロメーター構造によってなされてきたからであり、より簡便なゲルディエンコンデンサ構造を用いた検討が必要であった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、「農業へのイオン流応用」という新たなプラズマ工学の応用研究領域を創製するため、大気圧プラズマが大気・農業水組成に対して与える影響を調査し、農地オンサイトにおける肥料生成、害虫駆除、産物除菌を可能とするプラズマ機器、および専用の電源回路を提案し、農場現地での使用に耐える可搬型装置の実現を目指すことである。実現にあたっては大気圧プラズマ流の電離成分最適化が不可欠となるため、移動度イオン分析をはじめとする大気圧プラズマ流制御技術を生成技術と統合し、農業産業を高効率化するうえで有効となるプラズマ応用・診断器科学を整理する。

3. 研究の方法

米国の大気圧質量分析研究の第一人者 Guharay 氏と連絡を取りつつ、実務者2名と実際の装置化イメージを構築し、装置サイズを大型とする。当初は数100W規模のオンフィールド装置の完成を目指した。またイオン流分析にあたっては、減圧環境下での四重極

質量分析器によるイオン種の評価を試みた。さらに検出効率の面から、開発装置の原理をイオン流計測にも利用して、ゲルディエンコンデンサ型移動度分析スペクトロメーターも試作し、性能評価に供した。実際に植物種子にイオン流を適用して効果が現れるか、確認試験も行った。

4. 研究成果

(1) 大気圧プラズマ流発生装置

本研究に用いた移動度分析に基づく、弱い質量分析機能を伴った大気圧イオン照射システムの第二世代機の原理図と写真を図1、図2にそれぞれ示す。図1にあるように、大気流を生成し、これに対向して電離したアルゴンガスイオン流を供給する。正イオン供給の場合は中心の領域に大気を供給し、電子/負イオンを針状電極より供給して空間電荷を中和し、前方へと空気流を形成する。図中に示したバイアスシリンダーに電圧を加え、正イオン流を中心領域へとガイドし、導管によって気流として形成したのちに外部に放出する。

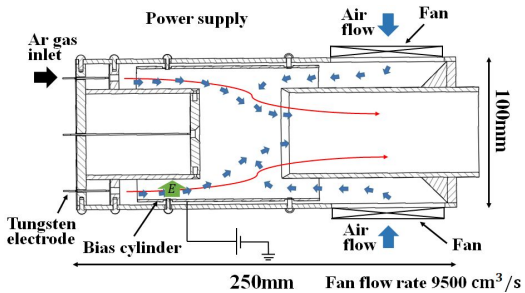


図1. 移動度分析機能付加型大気圧イオン流発生器



図2. 移動度分析機能付加型大気圧イオン発生機

図2の写真では製作した装置の、イオン流射出口から見た外観を示している。空気流形成用のファンにはDCモーターを用いて電圧制御により流量を調節できるようにしている。図1ではイオン射出を促すために外部から大気を取り入れる方向に流れ場を形成しているように示されているが、中央イオン生成室に供給する反応ガス/大気の圧力を上げると、ファンを逆向きに回転させることによってイオンのみを選択的に中心部に集めることができる大気流構造も実現できる。

(2) 生成プラズマとその診断

プラズマ生成は容量性結合 RF (13.6 MHz), 電極間マイクロ波 (2.45 GHz), 交流 (400 Hz) 電極放電などについて調査し, RF が安定なプラズマを生成することを確認したが, 特にイオン生成効率について見れば, 大きな違いは観察されなかった。但し, 交流放電はノイズが大きいために生成プラズマの計測に際しては注意が必要となった。図3にプラズマ生成部の写真を示す。図3に示すように, プラズマの色は電力に応じて変化する。これは大電力放電の際には電極材料が生成プラズマに混入するとともに, 電極の加熱に伴ってブラUNK放射が生じ, プラズマが電球色となるためである。これを光放射スペクトル分析によって計測した結果を図4に示す。図の高電力運転においてブラUNK放射が現れているとともに, タングステ

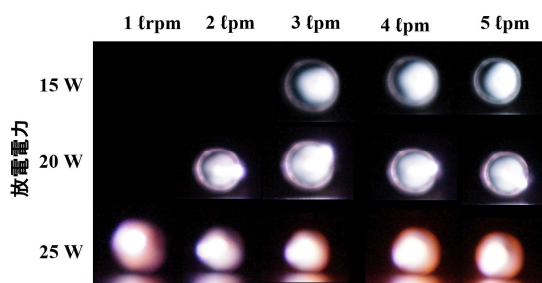
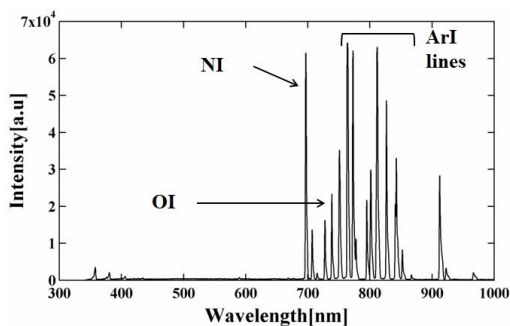
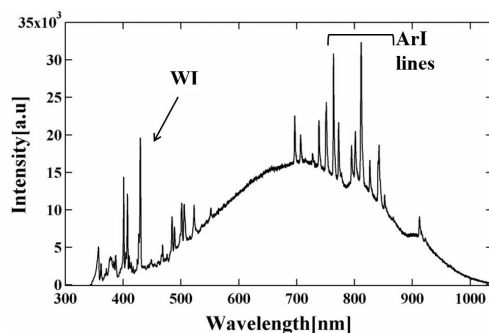


図3 . 中央部針状電極放電状況 . イオン流形成ガスは Ar.



(a)



(b)

図4 . (a)低電力運転時, (b)高電力運転時の大気圧イオン源の発光分光分析結果 .

ン原子がプラズマ中に放出されていることが確認できる。

図4の発光スペクトル分析から明らかなように酸素や窒素の単原子からの発光が見られ, これらのイオンが生成されているものと考えられる。電力が大きくなって電極温度が増大すると, 400 nm から分光器の感度上限である 1000 nm に向かってブラUNK放射が見られ, また, 電極材料であるタングステンのラインスペクトルが見られる。興味深いのは 500 nm 近傍のタングステン線スペクトルの他, 低電力では小さかった窒素分子スペクトルが比較的大きくなっている部分であり, ゲルディエンコンデンサの結果とも矛盾していない。

当初計画ではプロトタイプ装置の性能を減圧環境下にて四重極質量分析器を用いて評価する予定であった。構築した大気圧気体の減圧環境四重極質量分析系の概要図を図5に示す。この測定方法では当初予定した大気圧中のイオンの直接測定には至らなかつ

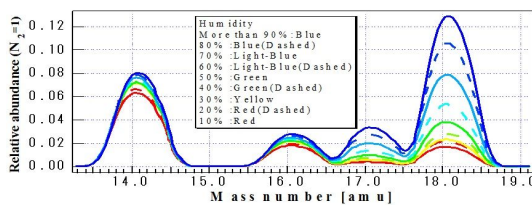
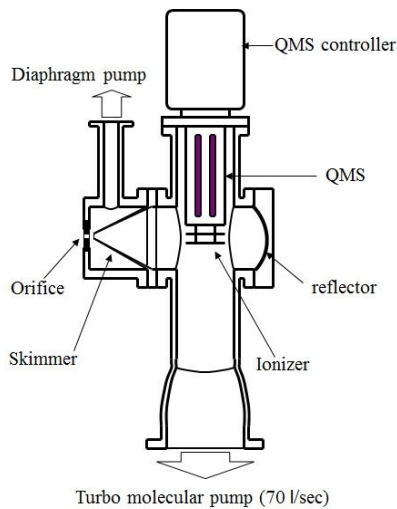


図5．大気組成分析用減圧四重極分析系と湿度変化時に観測された組成変化．

た．図3に示すように四重極質量分析器入口の電離部分をオンにすると分析は可能であったが，電子衝撃電離を行わない限り，計測可能な信号が得られなかった．これは四重極表面を汚染から守るために直角に折った構造にしているからであって，研究期間中には良い対策案が得られなかった．そこで本研究での主要テーマとしているゲルディエンコンデンサを用いた移動度分析によってイオン流の計測を行うことにした．詳細は5の研究成果発表，Journal論文1に記載した通りで，イオン流はほぼ2 cm程度の距離でも再結合によって急速に失われることが分かった．図1にも示される通り，プロトタイプイオン流生成器は15 cm以上のイオン源 - 出口間距離があるため，この部分でほぼ全て再結合反応が生じているものと予想される．

(3) 大気圧イオン流分析技術

大気圧イオン源の研究により，大気圧イオン流の分析自体が難しく，生成されたイオン

流の評価が困難であることが分かった．そこでゲルディエンコンデンサ自体の動作原理を詳細に行うことにし，研究期間中に数件の学会発表を行うとともに，特に重要と考えられる電極の変質現象についてはJournal論文として纏めた．さらにGerdienの初期の提案時からの課題であったRandeffektについては詳細な気流の構造と，それともなう再結合過程の取り扱いから，興味深いとともに多くの基礎過程の知見が必要であることが明確化し，現在，様々な角度から検討中である．現在実施中のゲルディエンコンデンサ内部の気流構造の計算例の一例を図6に示す．

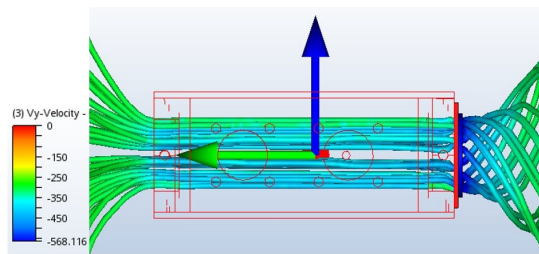


図6．ゲルディエンコンデンサ内の気流構造計算結果

(4) イオン種選別効果の確認

粗いイオン種選別として，外側電極に正の電位を与えた際，イオン流がカイワレ大根の発芽時間に与える影響を調査した．図7に示すように正イオン照射によって改善が見られる結果も得られているが，統計的に有意な差であるかどうかはより多くの実験を実施する必要があり，専門家から意見を頂戴しているところである．

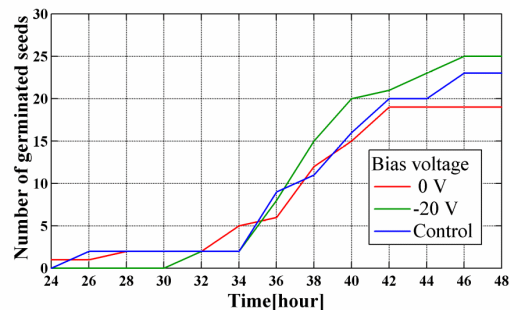


図7．カイワレ大根発芽状況

5. 主な発表論文等
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 2件)

1. Ma Camille C. LACDAN and Motoi WADA, "Effect of Electrode Material to Current-Voltage Characteristics of a Gerdien Condenser", Plasma and Fusion Research, Vol. 11, 1401121/1-6 (2016). (査読あり)
2. Ma Camille C. LACDAN and Motoi WADA, "Characterization of Atmospheric Pressure Plasmas by a Gerdien Condenser", Plasma and Fusion Research, Vol. 11, 2401015/1-4 (2016). (査読あり)

[学会発表](計 7件)

1. 和田 元, Ma Camille Lacdan, 松永純哉, 「ゲルディエンコンデンサによる大気圧プラズマの診断」, プラズマ核融合学会第33回年会, 東北大学, (宮城県・仙台市,) 2016年12月1日.
2. 松永 純哉, Ma Camille Lacdan, 粕谷 俊郎, 和田 元, 「大気圧プラズマの移動度分離による農業野へ応用」, 第77回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ, (新潟県・新潟市), 2016年9月16日.
3. Lacdan Ma Camille Corrales, Wada Motoi, "Effect of Electrode Material to Gerdien Condenser Current-Voltage Characteristics", 第63回応用物理学会春季学術講演会, 東工大大岡山キャンパス(東京都・目黒区) 2016年3月21日.
4. R. Otani, M.C.C. Lacdan, J. Matsunaga, M. Wada, " Pretreatment of samples for vacuum analysis by irradiation of atmospheric pressure plasma", 1st International Symposium of the Vacuum Society of the Philippines, Ateneo de Manila University, Manila, (Philippines,) January 14th, 2016.
5. Ma Camille C. Lacdan and Motoi Wada, "Characterization of Atmospheric Pressure Plasmas by a Gerdien Condenser", 25th International Toki Conference, Toki, Gifu, (セラトピア土岐, 岐阜県・土岐市) November 3rd, 2015.
6. M. Wada, Y. Fujita, T. Kasuya, M.C.C. Lacdan, J. Matsunaga, "Ion Species Separated Atmospheric Pressure Plasma Source", 25th International Toki Conference,

Toki, Gifu, (セラトピア土岐, 岐阜県・土岐市) November 4th, 2015.

7. 松永 純哉(M), 大谷 亮輔(B), Ma Camil Lacdan(D), 粕谷 俊郎, 和田 元, 「マイクロ波針状電極による大気圧放電」, 第32回プラズマ・核融合学会, 名古屋大学, (愛知県・名古屋市), 2015年11月25日.

6. 研究組織

(1)研究代表者

和田 元(WADA Motoi)
同志社大学・理工学部・教授
研究者番号: 30201263

(2)研究協力者

前野 修一 (MAENO Shuichi)
ノベリオンシステムズ社・取締役社長
宮本 直樹 (MIYAMIOTO Naoki)
日新イオン機器株式会社・
I/I事業センター・技師
同志社大学・理工学部・連携教授
Samar Kumar Guharay
米国 Mitre 社・上席研究員
Magdaleno Vazquez
フィリピン大学ディリマン校・
工学部・教授