

令和 4 年 6 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H00743

研究課題名(和文)先駆水和電子チャネル形成仮説による水中プラズマ超高速電荷移動機構の学理構築

研究課題名(英文)Development of principle of underwater-plasma ultra-high-speed charge transfer mechanism by hypothesis of pioneer hydrated electron channel formation

研究代表者

佐藤 岳彦 (TAKEHIKO, SATO)

東北大学・流体科学研究所・教授

研究者番号：10302225

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,300,000円

研究成果の概要(和文)：ストリーマ発生・水和電子計測装置の設計作製を行い、水和電子の検出をストリーマ進展方向の画像解析、スカベンジャーによる化学的計測、赤色吸収測定、プローブ光吸収測定、ラマン散乱光計測、細胞応答計測により行う手法を検討ならびに開発した。また、水膜上のストリーマ進展時の電位変化による前駆現象を検証した。これらの結果より、世界で初めてプラズマによる水和電子生成の検証に成功し、ストリーマ進展において水和電子生成が影響を与えている可能性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水中ストリーマにおいて秒速20 km/sを超える速度で水中を電荷が移動する進展機構は、1934年に提案された電子論的破壊理論、気泡的破壊理論に加え近年提案された電歪力による低密度領域形成仮説においても説明できていない。本研究では、雷の発生機構にヒントを得た、前駆的水和電子形成に沿った電界波動の伝搬がストリーマの進展機構であるという仮説を元に、プラズマによる水和電子生成の計測法を開発し、水和電子が水中ストリーマの進展に影響を与えている可能性があることを示した。これらの成果は、水和電子を積極的に利用する新しい工学分野の扉を開くものであり、大きな学術的・社会的意義を有する。

研究成果の概要(英文)：We designed the devices for the streamer generation and the measurement of the hydrated electron, then examined and developed the method for the detection of the hydrated electron by image analysis of the streamer development direction, chemical measurement by scavenger, measurement of red light absorption, measurement of probe light absorption, measurement of Raman scattering light, and the measurement of cell responses. Also, we verified the precursor phenomenon caused by the potential change at the time of the streamer propagation on the water film. These results showed that we succeeded in verifying the generation of hydrated electron by plasma for the first time in the world and that there is a possibility that the generation of hydrated electron have an influence on the streamer propagation.

研究分野：プラズマ流体工学

キーワード：ストリーマ 水和電子 スカベンジャー 電荷 水 ポテンシャル レーザー ラマン散乱分光

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

液中プラズマは、古くは変圧器の絶縁破壊や放電加工の研究に始まり、最近では水中で生成される反応性化学種や紫外線、気泡を利用した、環境、医療、農業、食品など幅広い分野で応用が進められている。例えば、従来のオゾン処理では十分に分解できない水中のダイオキシンやトリハロメタンなどの分解処理や医療用の低温アブレーション治療器具、皮膚切開用メスなどに応用されている。

液中においてプラズマが発生すると、絶縁破壊前駆現象であるストリーマと呼ばれる微細な放電路が最初に形成される。ストリーマ進展機構については、変圧器油や液体炭化水素中においての進展の様子や正負ストリーマの違いなどについて多くの研究がなされている。水中においては、正極性ストリーマに秒速 2 km 程度でフィラメント状かつ半球状に進展する 1 次ストリーマと秒速 20 km 以上の高速でフィラメント状に進展する 2 次ストリーマがあることが報告されている(仏・エコール・ポリテクニック, 独・KIT)。負極性ストリーマについても正極性ストリーマより微小かつ樹枝状に進展する(チェコ・プラズマ物理研)ことが報告されているが、研究例は非常に少ない。

ストリーマの進展機構については、従来提案されている電子論的破壊理論では、電界により液体分子が解離し部分的に導電性を帯び、局所的に蓄積した電荷が移動することでストリーマが進展するとしている。しかしながら、液体中の電子の衝突電離や電荷の超高速移動は困難であると考えられ、この理論だけでは説明ができていない。一方、気泡的破壊理論では、液体中の微小気泡内で絶縁破壊が起こり、それに伴い気泡が成長しストリーマが進展するとしている[1]。しかしながら、気泡を生成しながら 20 km/s で進展する点については同様に説明できていない。また、近年提案されている電歪力による低密度領域形成仮説(米・プリンストン大学)においても超高速の電荷移動は説明できていない。

このように、ストリーマ進展機構については、1934 年の理論提案から現在に至るまで解明されていないため、水中を超高速で電荷が移動する機構を説明できる新たな理論によるストリーマ進展機構の解明が期待されている。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、水中プラズマの絶縁破壊前駆現象であるストリーマの進展機構を、落雷の進展機構の相似性から考察した新しい仮説に基づき明らかにすることにある。この相似性とは、落雷と水中ストリーマの電流波形が、いずれも連続電流の後にパルス電流が流れ、連続電流時に高速進展が見られること、また、落雷と水中ストリーマの連続電流における発光は初期のみで、それ以降は発光を伴わないこと、さらに、いずれもパルス電流発生時に再発光することが確認できることなどから考察したものである。仮説は、ストリーマ進展前に先駆的に形成される水和電子チャネル中の電界波動の伝播により超高速で電荷発生部位が移動することにある。これを、実験的・理論的に明らかにし、新しい水中の高速電荷移動の学理を構築することを目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究では、以下の手順により研究を実施した。

水中ストリーマ・水和電子発生方法と計測方法の開発。水中ストリーマ発生装置を利用し、 $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}/\text{Asc}^{2-}$  を利用して UV 照射により水和電子を生成し、赤色吸収法により水和電子の生成について検証した。また、ストリーマを発生させたときに水和電子生成域方向に進展するかどうかで、水和電子生成の検証並びに水和電子生成のストリーマ進展への影響について検討した。図 1 に UV 照射時の計測システムの概要、図 2 に開発したストリーマ進展方向を検証するための

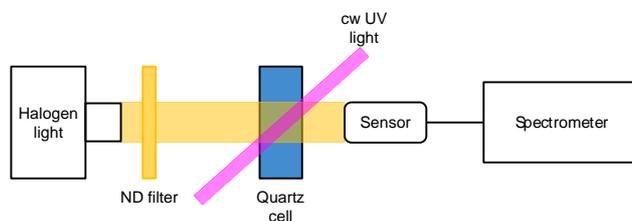


図 1 UV 照射時の水和電子検出の吸収分光システムの概要

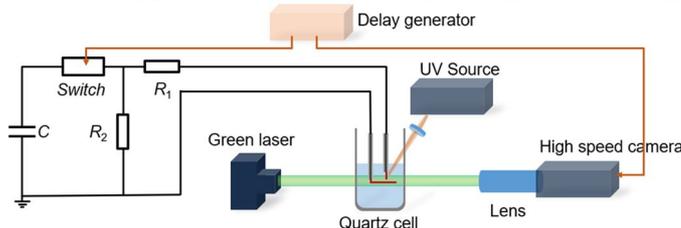


図 2 UV 照射によるストリーマ進展方向を検証するための実験装置

実験装置の概要を示す。

針 - 水面プラズマにより生成される水和電子の検出法の開発。スカベンジャーとしてクロロ酢酸ナトリウムを利用し、気液プラズマが生成する電子により水和電子が発生することを検証するための手法を開発した。図3に開発した実験装置ならびに水和電子検出のプロトコルを示す。

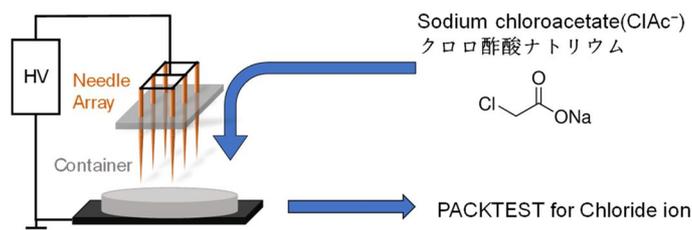


図3 針 - 水面プラズマ生成装置とスカベンジャーによる水和電子検出方法

ラマン分光を利用した水中ストリーマによる水和電子計測方法の開発。水中に電極を設置し、ストリーマ発生時ならびに電圧印加時と印加しない場合における、ラマン散乱光の分光により水和電子を検出する手法を開発した。図4に開発した計測システムの概要を示す。

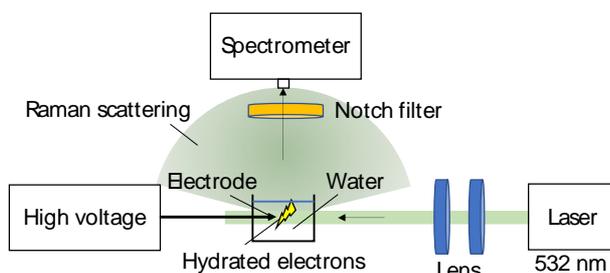


図4 ラマン散乱光の分光を利用した水中ストリーマにより生成される水和電子の計測装置

ポンプ光とプローブ光用のパルスレーザーとヨウ素入りの水を用いた水和電子計測法の開発。ポンプ光となる 266 nm のナノ秒パルスレーザーでヨウ素を多光子励起させ、ヨウ素から電子を放出させ、その電子の溶媒和状態をプローブ光となる白色 LED で計測する方法を開発した。

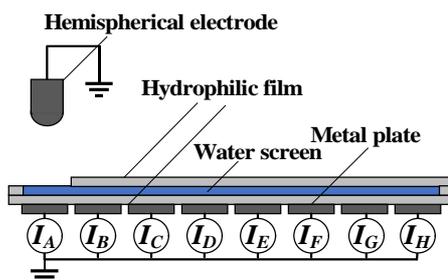


図5 水面上にある親水性フィルム表面を進展するストリーマの電位変化計測装置

水中ストリーマ進展時の異なる位置における電位の時間変化の計測法の開発。気中の針電極から平板上に進展するストリーマの電位を分割電極により測定する装置を開発した。ストリーマは電荷を事前に平板上に供給し、針電極を接地電極として利用した。気中での実験装置を作製し、ストリーマ進展に計測法を確立した後、水面上ならびに水中のストリーマが発生する装置の開発と電位変化の計測を実施した。図5に作製した水面上にある親水性フィルム表面を進展するストリーマの電位計測装置の概要を示す。

高電界中の水和電子の生成機構の解明と水中ストリーマ進展機構の学理構築。水中ストリーマ発生時の水和電子生成過程や水和電子による水中ストリーマの進展への影響について考察した。

#### 4. 研究成果

本研究で得られた成果を以下に示す。

水中ストリーマ・水和電子発生方法と計測方法の開発。UV を照射した場合と照射しない場合の水中ストリーマの発生確率は、印加電圧に関係なく UV 照射の方が 12-22%高いことが明らかになった。図6に水中ストリーマの進展方向の解析結果を示す。UV 照射のある方にストリーマが進展する様子が示されている。これより、UV 照射により水和電子が生成され、水和電子の存在

がストリーマ進展に影響を与えることを示唆する結果を得た。

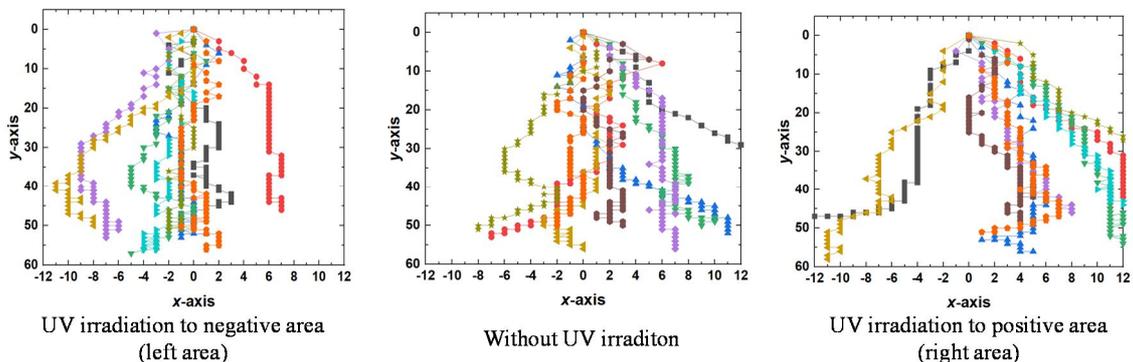


図6 UV照射場所の違いによるストリーマ進展時の軌跡の変化

針 - 水面プラズマにより生成される水和電子の検出法の開発．図7に水和電子と反応し塩素イオンを生成するスカベンジャーを利用して，針 - 水面プラズマにより生成される水和電子濃度を塩素イオン濃度の計測により計測した結果を示す．塩素イオン濃度はプラズマの発生時間に概ね比例して上昇している．電子供給量はプラズマの発生時間に比例していることから，発生した電子が一定量水和電子に変換されていることを明らかにした．

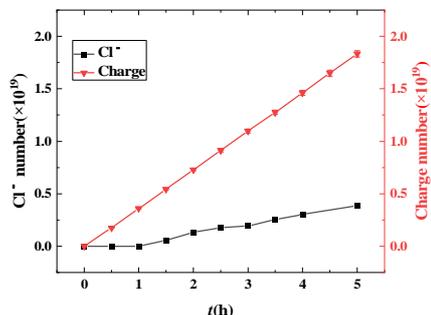


図7 塩素イオン濃度のプラズマ生成時間に対する変化

ラマン分光を利用した水中ストリーマによる水和電子計測方法の開発．図8に水中ストリーマ発生時のラマン散乱光の分光結果を示す．入射光は532 nmの狭帯域レーザーを利用した．印加電圧が-10 kVの場合に1620  $\text{cm}^{-1}$ 近傍にわずかに変化が見られた．水和電子は1625  $\text{cm}^{-1}$ に近傍にピークが現れることから，水中ストリーマによる水和電子の存在を示唆する結果となった．

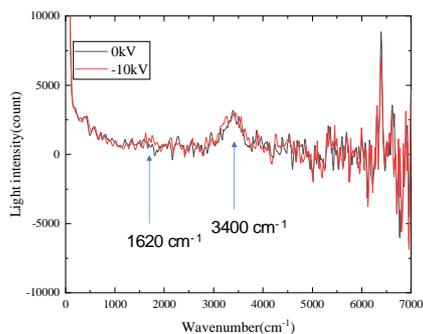


図8 水中ストリーマ進展時のラマン散乱光の分光結果

ポンプ光とプローブ光用のパルスレーザーとヨウ素入りの水を用いた水和電子計測法の開発．図9にパルスレーザーを用いたポンプ光とプローブ光の時間差による吸収率の違いを示す．青がポンプ光とプローブ光を同時に入れた場合で、700 nm近くに極大を持つ吸収が観測されてい

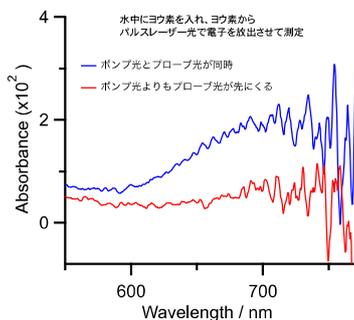


図9 パルスレーザーによるポンプ光とプローブ光を用いた水和電子検出結果

る。一方、この吸収は、プローブ光をポンプ光よりも先に試料にいれると消滅し、吸収率は低下することから、ポンプ光によって生成した水和電子であることが検証する手法を開発した。

水中ストリーマ進展時の異なる位置における電位の時間変化の計測法の開発。図 10 にストリーマ発生時の写真と電位の時間変化の結果を示す。電位計測電極は 8 分割とし、計測電極 A の位置に電極を設置した。グラフの縦軸は計測電極と接地の間に流れた誘導電流であり、電位と比例関係にある。これより、ストリーマ進展と共に電位変化が現れ、最大電位の変化からストリーマの進展速度は、40 km/s 程度であることが示された。これは、気中で実験した場合の進展速度よりも低く、進展と共に最大電位もより減少する。また、気中のデータでは、ストリーマ進展速度が伸長と共に減速する現象が観察され、水中ストリーマと相似性があることが示された。さらに、電位変化の結果より基板表面に帯電している電荷は、接地電極から供給される電子の進展もしくは、表面電荷を媒体とする電界の伝搬により発生した電子との再結合面の進展である可能性があることを示した。これらの成果は、水中ストリーマ進展機構の理解に大きく貢献した。

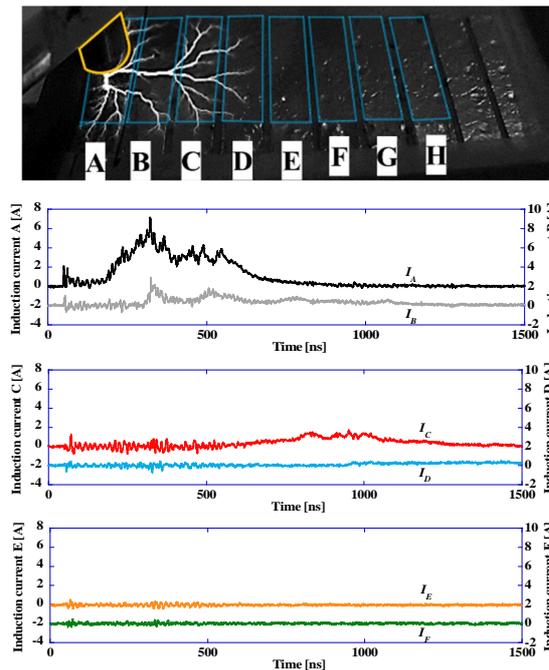


図 10 水面上を進展するストリーマの電位変化

高電界中の水和電子の生成機構の解明と水中ストリーマ進展機構の学理構築。

本研究では、水中ストリーマの進展において、前駆的に水和電子が生成され、その経路を電界が伝搬することで、秒速 20 km を超える高速進展が可能となる仮説を証明するために、新たに水和電子の生成・計測方法を開発し、プラズマによる水和電子が生成されることを世界で初めて明らかにした。また、ストリーマ進展時の高速電位変化から、電荷の移動現象についての理解が深まり、供給された電子が移動する可能性と、存在している電荷を伝搬する電界が生成する電子がストリーマ進展面を形成している可能性があることを示した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Mu-Chien Wu, Satoshi Uehara, Jong-Shinn Wu, YunChen Xiao, Tomoki Nakajima, Takehiko Sato	4. 巻 53 (48)
2. 論文標題 Dissolution enhancement of reactive chemical species by plasma-activated microbubbles jet in water	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 485201/1-12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6463/abae96	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Chia-Hsing Chang, Ken-ichi Yano, Takehiko Sato	4. 巻 14 (3)
2. 論文標題 Distinct biological actions of electrical and chemical factors of cold atmospheric pressure plasma and their synergistic cytotoxic effects	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Plasma Environmental Science and Technology	6. 最初と最後の頁 e03004/1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.34343/ijpest.2020.14.e03004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Satoshi Uehara, Akira Sato, Tetsuji Shimizu, and Takehiko Sato	4. 巻 103
2. 論文標題 Non-contact measurement of electric charges on water surface supplied with plasma	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Electrostatics	6. 最初と最後の頁 103414/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.elstat.2019.103414	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Chia-Hsing Chang, Ken-ichi Yano, and Takehiko Sato	4. 巻 681
2. 論文標題 Nanosecond pulsed current under plasma-producing conditions induces morphological alterations and stress fiber formation in human fibrosarcoma HT-1080 cells	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Archives of Biochemistry and Biophysics	6. 最初と最後の頁 108252/1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.abb.2020.108252	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tetsuji Shimizu, Naoya Kishimoto, and Takehiko Sato	4. 巻 104
2. 論文標題 Effect of electrical conductivity of water on plasma-driven gas flow by needle-water discharge at atmospheric pressure	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Electrostatics	6. 最初と最後の頁 103422/1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.elstat.2020.103422	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計18件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 11件)

1. 発表者名 Mu-Chien Wu, 上原聡司, 中嶋智樹, Chia-Hsing Chang, Jong-Shinn Wu, 佐藤岳彦
2. 発表標題 高速流を用いたプラズママイクロバブル生成デバイスによる水質浄化
3. 学会等名 第30回環境工学総合シンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 二階堂慎一, 杉本俊之, 佐藤岳彦
2. 発表標題 帯電した絶縁フィルムの表面で起こる沿面放電の誘導電流観測
3. 学会等名 2020年度電気関係学会東北支部連合大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 二階堂慎一, 杉本俊之, 佐藤岳彦
2. 発表標題 誘導電流観測による沿面放電の諸特性調査
3. 学会等名 第44回静電気学会全国大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 張家興, 矢野憲一, 佐藤岳彦
2. 発表標題 電気刺激によるヒト繊維肉腫細胞の間葉系運動の活性化
3. 学会等名 第44回静電気学会全国大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Mu-Chien Wu, Satoshi Uehara, Tomoki Nakajima, Takehiko Sato, Jong-Shinn Wu
2. 発表標題 Concentration Enhancement of Reactive Chemical Species by Plasma-activated Microbubbles Jet in a Water Recirculation System
3. 学会等名 20th International Symposium on Advanced Fluid Information (AFI2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Shota Yamauchi, Kazuaki Abe, Yuya Oishi, Ippei Yagi, Satoshi Uchida, Takehiko Sato
2. 発表標題 Numerical Analyses of Transport Characteristics of Discharge Species Generated by Cold Atmospheric Plasma on Cell Membrane using Fluid Model and Molecular Dynamics
3. 学会等名 20th International Symposium on Advanced Fluid Information (AFI2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hayato Tada, Satoshi Uehara, Chia-Hsing Chang, Takehiko Sato
2. 発表標題 Development of Analyzing Method for Cancer Cell Migration Using Long-term Time-lapse
3. 学会等名 17th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Mu-Chien Wu, Satoshi Uehara, Takehiko Sato, Tomoki Nakajima, Jong-Shinn Wu
2. 発表標題 Comparison of the Concentration of Reactive Chemical Species in Water by Plasma Jet and Plasma-activated Microbubbles Jet
3. 学会等名 17th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Siwei Liu, Yunchen Xiao, Satoshi Uehara, Tomoki Nakajima, Takehiko Sato
2. 発表標題 Liquid Discharge Characteristics Under Exposure to Ultraviolet-rays for Observation of Hydrated Electron
3. 学会等名 17th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Chia-Hsing Chang, Ken-ichi Yano, Takehiko Sato
2. 発表標題 Nanosecond Pulsed Current Under Plasma-producing Conditions Induces Morphological Alterations in Human Fibrosarcoma Cells
3. 学会等名 17th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2020) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤岳彦
2. 発表標題 水中プラズマによる気泡生成過程と計測
3. 学会等名 日本学術振興会 産学協力研究委員会「水の先進理工学」第183委員会 第58回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Siwei Liu, Yi Liu, Yijia Ren, Takehiko Sato
2. 発表標題 Analysis of Influencing Factors on Discharge Mode of Water Under Microsecond High Current Pulse
3. 学会等名 2021年度 (第22回) 静電気学会春季講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takehiko Sato
2. 発表標題 Propagation mechanism and formation process of fine bubbles by underwater plasma streamer
3. 学会等名 2nd Joint Workshop on Bio-medical Sensor Network between NCTU and Tohoku Univ. (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takamasa Okumura, Chia-Hsing Chang, Takehiko Sato
2. 発表標題 Influence of Electric Potential Induced by Atmospheric Pressure Plasma on Cell
3. 学会等名 19th International Symposium on Advanced Fluid Information (AFI2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Chia-Hsing Chang, Kenichi Yano, Takehiko Sato
2. 発表標題 Nano-Pulsed Current Plays a Critical Role in Plasma Treatment on Fibrosarcoma Cells
3. 学会等名 16th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Mu-Chien Wu, Satoshi Uehara, Tomoki Nakajima, Chia-Hsing Chang, Jong-Shinn Wu, Takehiko Sato
2. 発表標題 An Innovative Method of Generating Plasma Microbubbles in a Flowing Water Tube
3. 学会等名 11th Asia-Pacific International Symposium on the Basics and Applications of Plasma Technology (APSPT-11) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Chia-Hsing Chang, Hayato Tada, Ken-ichi Yano, Takehiko Sato
2. 発表標題 Effects of Plasma-generator-supplied Pulsed Current on Cell Behavior and Morphology using a Timelapse Monitoring
3. 学会等名 11th Asia-Pacific International Symposium on the Basics and Applications of Plasma Technology (APSPT-11) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Chia-Hsing Chang, 佐藤岳彦
2. 発表標題 プラズマ誘導性細胞応答における電荷の生理的意義の解析
3. 学会等名 熊本大学バルスパワー科学研究所 令和元年度共同研究成果報告会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 Liquid Treatment Apparatus	発明者 Jong-Shinn Wu, Takehiko Sato 他2名	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、16/885,300	出願年 2020年	国内・外国の別 外国

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

## 6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	杉本 俊之 (SUGIMOTO Toshiyuki) (10282237)	山形大学・大学院理工学研究科・准教授  (11501)	
研究分担者	中林 孝和 (NAKABAYASHI Takakazu) (30311195)	東北大学・薬学研究科・教授  (11301)	
研究分担者	小宮 敦樹 (KOMIYA Atsuki) (60371142)	東北大学・流体科学研究所・教授  (11301)	
研究分担者	宮原 高志 (MIYAHARA Takashi) (70239432)	静岡大学・工学部・教授  (13801)	
研究分担者	内田 諭 (UCHIDA Satoshi) (90305417)	東京都立大学・システムデザイン研究科・教授  (22604)	
研究分担者	上原 聡司 (UEHARA Satoshi) (70742394)	大阪大学・基礎工学研究科・准教授  (14401)	削除：2021年2月4日

## 7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

## 8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関