

令和 6 年 6 月 9 日現在

機関番号：22604

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01075

研究課題名(和文) 気体および液体の流体力学的作用を連成した大気圧非平衡プラズマの数値解析

研究課題名(英文) Numerical analysis of atmospheric-pressure nonequilibrium plasma combined with hydrodynamic effects of gases and liquids

研究代表者

朽久保 文嘉 (Tochikubo, Fumiyo)

東京都立大学・システムデザイン研究科・教授

研究者番号：90244417

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,600,000円

研究成果の概要(和文)：高プラズマ密度である大気圧非平衡プラズマではジュール加熱に伴うガス温度上昇により、局所的なガス密度変化やガス流を生じるので、流体力学的作用(特に熱的作用)を考慮したプラズマ形成過程や荷電粒子/活性種輸送過程の考察が必要である。本研究では、液体電極を有する大気圧直流グロー放電に対して、プラズマ解析、気体と液体の流体解析を連成し、流体力学的作用を含む大気圧非平衡プラズマの数値解析の基盤を構築した。また、粒子解析により、陰極に入射するイオンエネルギー分布の放電電流やガス温度に対する依存性を示した。更に、マッハツェンダー干渉計を利用した計測により、ガス温度分布の各種特性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

非平衡プラズマの数値解析においてはガス温度変化やガス密度変化はあまり考慮されてこなかった。しかし、大気圧非平衡プラズマにおいては、高密度のプラズマが局所的に形成されるために局所的ジュール加熱に伴うガス温度上昇が局所的なガス密度低下を招き、更に、ガス流を形成する。即ち、放電物理の基礎として、また、大気圧非平衡プラズマの応用において、上記効果を包含した考察が必要である。本研究では流体力学的作用(特に熱的作用)を考慮した大気圧非平衡プラズマの数値解析のための基盤を構築した。今後、更に様々な物理的・化学的な作用を導入することで、大気圧非平衡プラズマの学理の発展に資するものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：In atmospheric pressure non-equilibrium plasmas with high plasma density, local gas density and gas flow are caused by the gas temperature rise due to Joule heating, therefore, it is necessary to consider the plasma formation process and charged/neutral species transport process with hydrodynamic effects (especially thermal effects). In this study, plasma analysis, gas and liquid fluid analysis are coupled for atmospheric pressure DC glow discharge with liquid electrode to establish a basis for numerical analysis of atmospheric pressure non-equilibrium plasmas including hydrodynamic effects. The dependence of the ion energy distribution incident on the cathode on the discharge current and gas temperature is also shown by particle simulation. Furthermore, the gas temperature distributions are shown by measurements using a Mach-Zehnder interferometer.

研究分野：プラズマエレクトロニクス

キーワード：大気圧非平衡プラズマ プラズマシミュレーション プラズマ液体相互作用 ガス温度計測

### 1. 研究開始当初の背景

この10数年で多様な大気圧非平衡プラズマの生成手法が提案され、材料、環境・エネルギー、医療や農業などの多様な分野で応用研究が成果をあげている。ガス種やリアクター形状、電力投入法などによって個々のプラズマの特性は異なるが、共通する利点としては、プラズマ密度が高いこと、プラズマ化学反応の原材料となるガス密度が高いこと、多様な相(気・液・固)の物質に照射できること、等が挙げられる。高ガス密度の大気圧下では、電離増殖が急峻に進展するために局所的な空間電荷の影響を生じやすく、プラズマが局在化しやすい。これは高電力密度の局在化と等価であり、局在化したジュール加熱によってガス温度上昇を誘発する。例えば、佐々木らは液体陰極上の直流 He グロー放電に伴うガス温度上昇と液体の蒸発(H. Ishigame *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 2015, 01AF02)、野崎らはプラズマ触媒におけるガスと触媒の温度上昇(T. Nozaki *et al.*, *Catal. Today* **211**, 2013, 29)、小室らはプラズマアクチュエータにおけるガス温度上昇の効果(A. Komuro *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **28**, 2019, 055002)を述べている。また、プラズマ医療やプラズマ農業など生体を対象とするプラズマ照射ではガス温度は特に重要なパラメータの一つである。

ガス温度は化学反応速度を決定すると同時に、ガス密度やガス流に影響する。また、ガス温度上昇に伴う局所的なガス密度変化は換算電界を介して電子やイオンの挙動、即ち、放電構造の変化にも影響を及ぼす。このように、大気圧非平衡プラズマの各種応用において、ガス加熱やガス流の効果を考慮した考察が必要であり、流体力学的作用(特に熱的作用)を包含した大気圧非平衡プラズマの学理構築が強く望まれる。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、大気圧下での気液界面プラズマ(液体と接する大気圧非平衡プラズマ)において、気体と液体の流体力学的作用を連成した大気圧非平衡プラズマの数値解析を行い、大気圧非平衡プラズマにおける流体力学的作用(特に熱的作用)の影響を解明することである。解析は主として大気圧グロー放電による気液界面プラズマについて行った。個別の課題としては、課題1:大気圧グロー放電におけるガス温度計測、課題2:大気圧グロー放電による気液界面プラズマにおけるプラズマと流体力学的作用の連成解析、課題3:粒子シミュレーションによるガス加熱を考慮した界面へのイオンエネルギー分布評価、を設定した。

### 3. 研究の方法

#### (1) 大気圧グロー放電におけるガス温度計測

Fig. 1は計測対象とした大気圧 Ar 直流グロー放電である。ノズル電極(内径0.5 mm, 外径0.8 mm)から大気中に Ar ガスを流すことで Ar ガスに沿った大気圧グロー放電を発生させる。対向電極は直径20 mmの球電極であり、ギャップは3 mmとした。ガス温度計測にはマッハツェンダー干渉計を用いた。マッハツェンダー干渉計はレーザー光が通過する媒質中の屈折率変化を位相差として干渉縞より計測するものであり、本研究ではFig. 2に示すように、大気圧グロー放電中のガス温度上昇に伴うガス密度変化に起因した干渉縞より、フーリエ変換、アーベル逆変換によってガス密度分布とガス温度分布を導出する。画像の検出には CCD カメラを用いたが、ハイスピードカメラを用いればマイクロ秒スケールでのガス加熱過程を可視化できる。

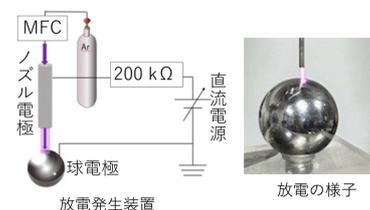


Fig. 1 大気圧 Ar 直流グロー放電

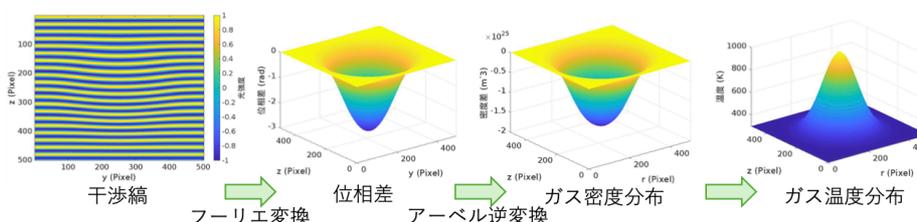


Fig. 2 ガス温度分布を導出する手順

#### (2) 大気圧グロー放電による気液界面プラズマにおけるプラズマと流体力学的作用の連成解析

本研究ではFig. 3に示す、液体電極を有する大気圧 He 直流グロー放電に対して解析を行った。外径0.5 mmの金属ロッドを液面から1 mmの位置に配して陽極とする。液体は導電率 $10^{-4}$  S/cmの電解質であり、およそ電解質濃度1 mMに相当する。液体の深さは1 mmであり、液体底部を

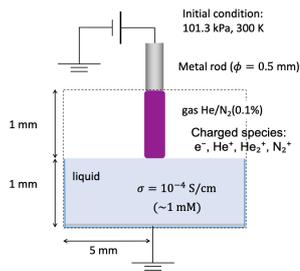


Fig. 3 解析対象

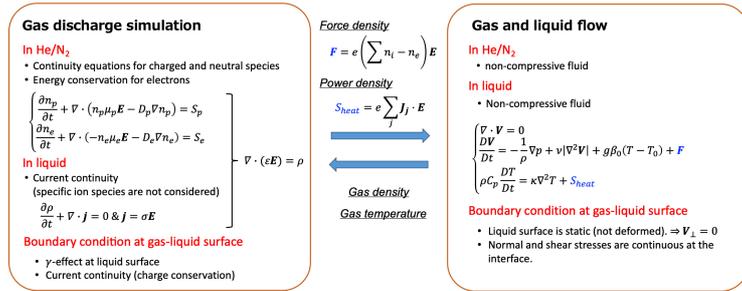


Fig. 4 解析モデル

接地とした。ガスは He/N<sub>2</sub>(0.1%)とした。

計算は放電プラズマの計算、ガスおよび液体の流体計算に分けて行った。放電プラズマでは気中の荷電粒子に関する密度連続式、液中の電流保存式を支配方程式として、両者にポアソン方程式を連立することで気液中の電位分布や電界分布、気中の電子・イオン密度分布等を計算する。このとき、同時に、ジュール加熱の熱源、プラズマによるガスの駆動力を計算する。ガスと液体の流体計算では両者ともに非圧縮性流体として、密度連続式とナビエ・ストークス方程式を計算する。更に熱伝導方程式を計算することで温度の影響を評価している。プラズマの計算と流体の計算では現象を支配する時定数が大きく異なることからそれぞれを分けて計算し、必要なパラメータ（ジュール加熱、ガス温度等）を相互にやり取りすることで連成を行った。

### (3) 粒子シミュレーションによるガス加熱を考慮した界面へのイオンエネルギー分布評価

大気圧直流グロー放電において、陰極（液体）に入射するイオンエネルギーの評価には Particle-in-Cell/Monte Carlo Collision(PIC/MCC)法を用いた。解析モデルは Fig. 5 に示す通りであり、ガスは大気圧 He、ギャップは 200 μm とした。ギャップが短い、大気圧放電における陰極シース厚はこのギャップ長よりも十分短く、陰極シースにおけるイオン加速を評価するには十分である。得られた電流密度分布と電界分布より評価したジュール加熱を熱伝導方程式に取り込み、ガス温度上昇も評価し、更に、温度上昇（ガス密度低下）を踏まえたイオンエネルギーを再度評価した。

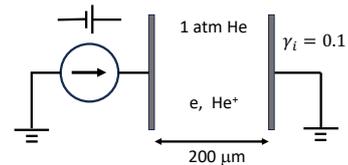


Fig. 5 解析モデル

## 4. 研究成果

### (1) 大気圧グロー放電におけるガス温度計測

放電電流 17 mA、ガス流速 0.5 L/min の条件で得られたガス温度分布を Fig. 6 に示す。Z = 0 mm は球陰極、Z = 3 mm はノズル陽極の位置を示す。陰極近傍では最大で 1800 K まで温度上昇している。ジュール加熱の熱源(W/m<sup>3</sup>)は電流密度(A/m<sup>2</sup>)と電界(V/m)の積で評価されるが、電界が集中する陰極降下領域ではジュール加熱が生じやすく、この結果は妥当なものと判断される。計測データの処理アルゴリズム、単位長さ当たりの干渉縞数と CCD カメラの画素サイズの関係等を詳細に見直すことで Fig. 6 に示す急峻な温度変化の可視化を可能とした。電流密度の増加、ガス流速の低下に伴うガス温度上昇も確認しており、放電条件とガス温度の関係も妥当なものであった。現在、パルス電圧印加に伴う放電形成とガス温度上昇の過渡過程解析へと展開している。

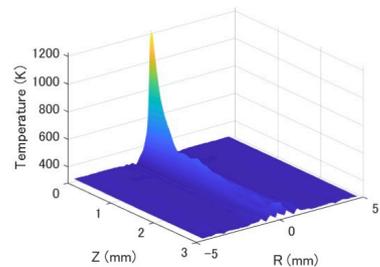


Fig. 6 計測されたガス温度分布

本研究では大気中の Ar 流に沿って生成された直流グロー放電についてガス温度解析を行った。これは屈折率に関するグラッドストーン・デール係数が空気と Ar で同程度であることによるが、グラッドストーン・デール係数が異なるガスにおけるガス温度計測が課題である。

### (2) 大気圧グロー放電による気液界面プラズマにおけるプラズマと流体力学的作用の連成解析

印加電圧 400V、電流 3 mA の条件で得られた結果を以下に示す。Fig. 7 は放電プラズマの計算で得られた気体/液体中の電位分布、径方向と軸方向の電界を示す。液体直上に陰極降下領域が形成されるため、電界は直上のガス部に集中する。Fig. 8 はプラズマ中の電子・イオン密度であり、プラズマ密度は 10<sup>12</sup> cm<sup>-3</sup> のオーダーとなった。陰極降下領域を除き、準中性条件が満たされている。Fig. 9 は気体・液体の流体計算に用いたジュール加熱の熱源、及び、プラズマからガスに作用する力を示す。液体中にも僅かにジュール加熱源が見られるが、ほとんどは陰極降下領域

に集中していることがわかる。また、陰極降下領域ではイオンからガス分子への運動量移行に伴う力が作用することが確認できる。Fig. 10 はこれらを考慮した計算より得られた温度分布である。気体部でガス温度が上昇し、最大で 700 K 程度に達している。

以上、本研究では、気液界面プラズマに対して、プラズマ・電解液の荷電粒子輸送解析、気体・液体の流体解析を連成し、流体力学的作用（特に熱的作用）を包含した大気圧非平衡プラズマを数値解析するための基礎部分を構築した。

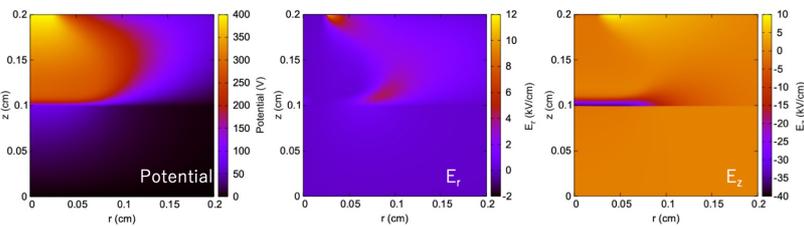


Fig. 7 気液中の電位・電界分布

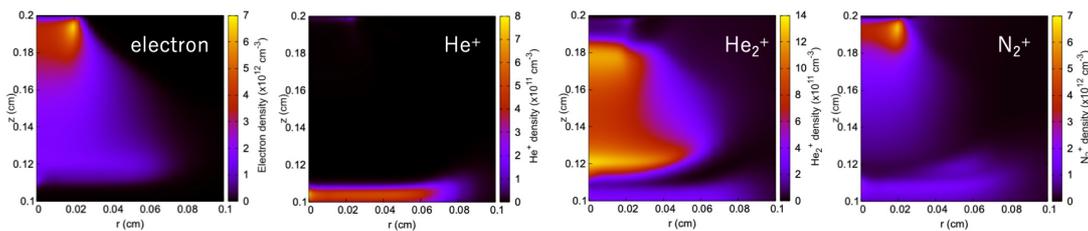


Fig. 8 直流グロー放電における電子・イオン分布

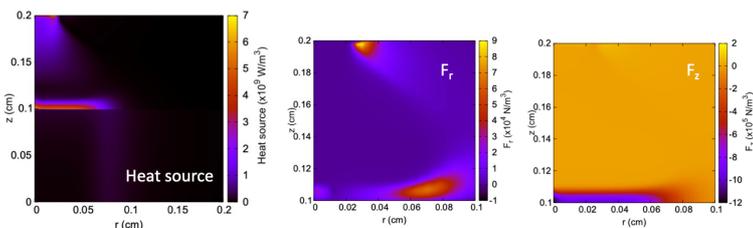


Fig. 9 流体計算に用いた熱源と力学的作用力

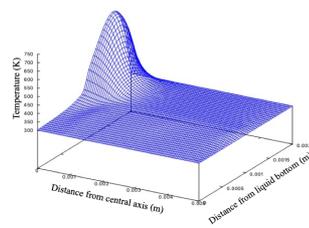


Fig. 10 温度分布

(3) 粒子シミュレーションによるガス加熱を考慮した界面へのイオンエネルギー分布評価

前述した PIC/MCC 法により、放電電流密度をパラメータとして直流大気圧 He グロー放電の計算を行った。Fig. 11 は電界分布と陰極におけるイオンエネルギー分布である。陰極前面に陰極シースが形成されており、電流密度増加（プラズマ密度の上昇）に伴ってシース幅は減少している。大気压下、イオンはシース中で多数の衝突を経験するため、陰極へ入射するイオンエネルギーは小さいが、数 eV のエネルギーを有するため、何らかの影響は想定される。Fig. 12 はジュール加熱より計算したガス温度分布、Fig. 13 は温度上昇を考慮した陰極入射イオンエネルギー分布である。本計算では電極温度を 300 K に固定しているが、ジュール加熱による陰極近傍のガス温度上昇（ガス密度低下）に伴いイオンエネルギー上昇を確認した。

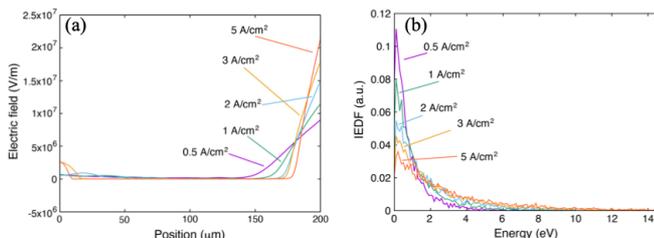


Fig. 11 大気圧 He 直流グロー放電における (a)電界と (b)陰極へ入射するイオンエネルギー分布

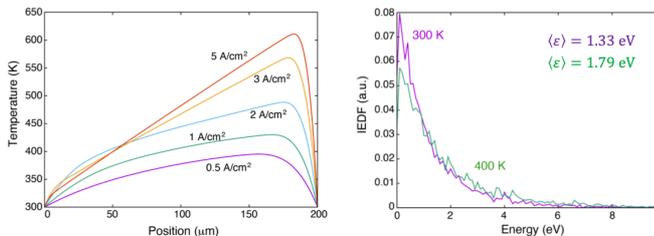


Fig. 12 ガス温度分布

Fig. 13 イオンエネルギーに対するガス温度の影響

以上、ガス温度上昇は電子やイオンのエネルギーにも影響することが示された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計18件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 7件）

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>朽久保文嘉, 中川雄介                 |
| 2. 発表標題<br>PIC/MCC 法による大気圧He直流グロー放電の検証 |
| 3. 学会等名<br>第71回 応用物理学会春季学術講演会          |
| 4. 発表年<br>2024年                        |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>木村蓮, 中川雄介, 朽久保文嘉               |
| 2. 発表標題<br>マッハ・ツェンダー干渉計を用いた直流グロー放電のガス温度推定 |
| 3. 学会等名<br>第71回 応用物理学会春季学術講演会             |
| 4. 発表年<br>2024年                           |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>朽久保文嘉, 後藤宇輝, 中川雄介                      |
| 2. 発表標題<br>液体電極を有する大気圧ヘリウムグロー放電の数値解析 - ガス・液体の対流 - |
| 3. 学会等名<br>第33回日本MRS年次大会                          |
| 4. 発表年<br>2023年                                   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>F. Tochikubo, Y. Nakagawa  |
| 2. 発表標題<br>Numerical simulation of atmospheric-pressure helium glow discharge with liquid electrode considering gas and liquid dynamics |
| 3. 学会等名<br>76th Gaseous Electronics Conference (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2023年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>枋久保文嘉, 後藤宇輝, 中川雄介                |
| 2. 発表標題<br>流体作用を考慮した液体電極を有する大気圧直流グロー放電の数値解析 |
| 3. 学会等名<br>第84回応用物理学会秋季学術講演会                |
| 4. 発表年<br>2023年                             |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>枋久保文嘉, 吉川昇汰, 中川雄介                |
| 2. 発表標題<br>マッハ・ツェンダー干渉計を用いた大気圧グロー放電内のガス温度推定 |
| 3. 学会等名<br>第70回応用物理学会春季学術講演会                |
| 4. 発表年<br>2023年                             |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>S. Katsuno, Y. Nakagawa, F. Tochikubo  |
| 2. 発表標題<br>Coupled simulation of negative corona discharge with electrospray from a liquid Taylor cone                        |
| 3. 学会等名<br>15th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2023年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>F. Tochikubo   |
| 2. 発表標題<br>Analysis of Physical Properties of Corona Discharge and Droplet Emission in Electrospray |
| 3. 学会等名<br>第32回日本MRS年次大会 (招待講演)   |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>T. Goto, Y. Nakagawa, F. Tochikubo   |
| 2. 発表標題<br>Numerical simulation of atmospheric-pressure helium DC glow discharge considering gas dynamics |
| 3. 学会等名<br>11th International Conference on Reactive Plasmas/2022 Gaseous Electronics Conference (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>S. Katsuno, Y. Nakagawa, F. Tochikubo  |
| 2. 発表標題<br>Numerical analysis of negative corona discharge from the tip of Taylor cone in electrospray  |
| 3. 学会等名<br>11th International Conference on Reactive Plasmas/2022 Gaseous Electronics Conference (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>枳久保文嘉, M. T. Tabassum, 勝野聡人, 中川雄介 |
| 2. 発表標題<br>負コロナ放電を伴うエレクトロスプレーの基礎特性と制御        |
| 3. 学会等名<br>第83回応用物理学会秋季学術講演会                 |
| 4. 発表年<br>2022年                              |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>後藤宇輝, 中川雄介, 枳久保文嘉                |
| 2. 発表標題<br>He大気圧直流グロー放電におけるガス加熱・対流を考慮した数値解析 |
| 3. 学会等名<br>第46回静電気学会全国大会                    |
| 4. 発表年<br>2022年                             |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>勝野聡人, 中川雄介, 枋久保文嘉                  |
| 2. 発表標題<br>エレクトロスプレーのテイラーコーン先端における負コロナ放電の数値解析 |
| 3. 学会等名<br>第46回静電気学会全国大会                      |
| 4. 発表年<br>2022年                               |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>F. Tochikubo   |
| 2. 発表標題<br>Numerical analysis of plasma-liquid interaction in glow-like discharge |
| 3. 学会等名<br>Gordon Research Conference, Plasma Processing Science (招待講演) (国際学会)    |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>F. Tochikubo, G. Yokota, Y. Nakagawa  |
| 2. 発表標題<br>Study on Plasma-Induced Liquid-Phase Reactions in a Droplet as Reaction Field |
| 3. 学会等名<br>2022 MRS SPRING MEETING (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2022年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>吉川昇汰, 中川雄介, 枋久保文嘉                   |
| 2. 発表標題<br>マッハ・ツェンダー干渉計を利用した大気圧Arグロー放電内のガス温度推定 |
| 3. 学会等名<br>第39回プラズマプロセス研究会                     |
| 4. 発表年<br>2022年                                |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>F. Tochikubo  |
| 2. 発表標題<br>Prediction of plasma-induced reactions in a droplet placed in an atmospheric-pressure helium plasma |
| 3. 学会等名<br>74th Gaseous Electronics Conference (招待講演) (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>木村 蓮, 中川 雄介, 朽久保文嘉                          |
| 2. 発表標題<br>マッハ・ツェンダー干渉気を用いた大気圧アルゴン直流グロー放電中のガス温度推定の精度向上 |
| 3. 学会等名<br>電気学会放電・プラズマ・パルスパワー研究会                       |
| 4. 発表年<br>2024年  |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

|  |
|--|
| <p>東京都立大学・プラズマ応用研究室<br/> <a href="https://gdpal.fpark.tmu.ac.jp/">https://gdpal.fpark.tmu.ac.jp/</a></p> |
|--|

6. 研究組織

|       | 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号)                        | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号)                        | 備考 |
|-------|--|--|----|
| 研究分担者 | 中川 雄介<br><br>(Nakagawa Yusuke)<br><br>(80805391) | 東京都立大学・システムデザイン研究科・助教<br><br><br><br>(22604) |    |

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 |
|---------|---------|
|---------|---------|