

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 14 日現在

機関番号：13301

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22740361

研究課題名（和文） 液中内気泡プラズマの基本特性の解明

研究課題名（英文） Investigation of fundamental characteristics of bubble plasma under water

研究代表者

石島 達夫（ISHIJIMA TATSUO）

金沢大学・サステナブルエネルギー研究センター・准教授

研究者番号：00324450

研究成果の概要（和文）：

液中内の気泡内に生成された非平衡プラズマの基礎現象を解明するため、単一の気泡を周期的に発生させ、水中内に設置したアンテナにマイクロ波を印可することで、同一サイズの気泡内に同一サイズのプラズマを生成するための装置を開発した。

時分解の発光画像計測より液中内の気泡に生成されるマイクロ波プラズマは、高電圧パルス印可により生成されるプラズマとは異なりフィラメント状にはならず、アンテナ近傍に局所的に存在することが明らかとなった。時分解発光分光計測より、気泡サイズを小さくすることで溶媒由来の飽和蒸気圧が増加する傾向が示唆された。

研究成果の概要（英文）：

Plasma production system was developed to investigate fundamental phenomena in nonequilibrium microwave excited plasma in a bubble under liquid, which enables us to produce same-sized plasma in same bubble size. Localized microwave plasma production was observed in the vicinity of an antenna by time-resolved optical emission images, while filamentary plasma is produced with use of a high-voltage pulse irradiation in general. Time-resolved optical emission spectroscopy indicated that vapor pressure derived from the solvent was increased in the case of the small bubble size.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：プラズマ生成・診断

科研費の分科・細目：プラズマ科学・プラズマ科学

キーワード：プラズマ計測、プラズマ応用、プラズマ化学、非平衡プラズマ、気泡内プラズマ、マイクロ波プラズマ、気液界面

1. 研究開始当初の背景

プラズマによる液体処理方法は、気相中でプラズマを生成させ、ラジカルを液体へ輸送して処理する方法、処理溶液内でプラズマを直接生成する方法に大別できる。

OH ラジカルは、酸化力が高いが大気中の寿命が約 1 ms 以下と短いため液体と効率よく反応させるためには、距離を十分に近づける必要がある。

一方、液中内においては、絶縁破壊によるプラズマ生成に極めて高い高電圧印可が必要となるため、が気泡を導入することで放電開始電圧を低減させる方法が用いられている。

気泡内部にプラズマを生成させることにより、液体とラジカルを反応させる方法が研究されているが、エネルギー効率を向上させるためには、気泡とプラズマ生成のタイミングを制御することが重要である。

プラズマ-液体の基礎的な現象を解明するため、同一サイズの気泡内に同一サイズのプラズマを生成可能とする装置を着想するに至った。

2. 研究の目的

液体とプラズマの反応をモデル化する上で、プラズマ中の活性種由来の挙動は重要である。

これまでに、プラズマが接触する液体表面近傍のラジカル密度分布は計測されているが、気泡内部の活性種分布やその強度の時間変化は、あまり詳しく調べられていない。

そこで、同一の気泡内に同一サイズのプラズマを生成する装置開発を行い、液体内の気泡内部に生成されたマイクロ波励起非平衡の基本的な特性を調査し、プラズマ-液体相互作用に関する基礎現象の解明を目指した。

3. 研究の方法

水中内に設置したマイクロ波アンテナに単一の気泡を周期的に発生させるため、高速動作のピエゾバルブを用いてガスをパルス的に供給した。

気泡内でのプラズマ生成過程を気泡生成と同期して観測する測定系を構築し、気泡サイズの変化に伴う非平衡のパルスプラズマ生成の様子を高感度の高速カメラを用いて観測する。

また、気泡内の反応プロセスの詳細を解明するため、液体内の気泡内部に生成する非平衡プラズマを時分解発光分光計測した。

4. 研究成果

画像計測より液中内の気泡に生成されるマイクロ波プラズマは、DC プラズマとは異なりフィラメント状にはならず、アンテナ近傍に局所的に存在することが判明した。

プラズマの発光分光計測より、導入ガス種である He 原子からの発光および水の解離に由来して生成される H 原子、OH 分子からの発光が観測された。He ガス導入後のマイクロ波照射タイミングを変化させることで、異なる気泡サイズにおいて、気泡サイズ変化の時間スケールに比べて十分に短い時間の安定したパルスマイクロ波プラズマを生成させることが可能である。

気泡内に生成されるパルスマイクロ波プラズマからの He および H 原子由来の発光強度の時分解計測を行った。

He, H 原子由来の発光は、どちらもマイクロ波入射後、単調に増加し、その後減少することが見出された。

発光強度増加の時間スケールは、パルスマイクロ波の入射パワー増加の時間スケールと

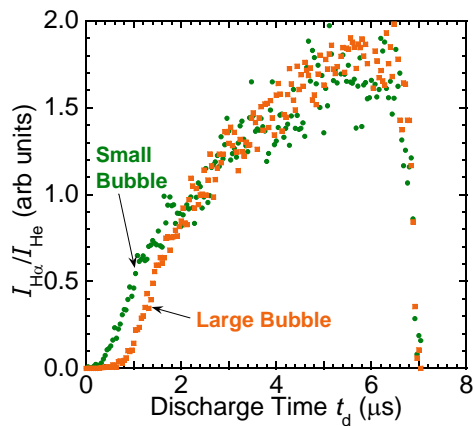


Fig. 1. Time variation of emission intensity ratio.

ほぼ同じであることから、マイクロ波入射パワー変化による電子密度・電子温度変化に起因するものだと考えている。

一方、He および H からの発光強度は、マイクロ波入射パワー増加後一定となる時間帯において減少していることから、気泡内のガス成分変化がプラズマ生成に影響を与えていると考えられる。

気泡内のガス成分変化は、気液界面での相互作用によるため、プラズマ生成に伴う気液界面反応を解明することの重要性を初めて実験的に明らかにした意義あるものである。

He I および H α の発光強度比 $I_{H\alpha}/I_{He}$ は下記の関係式で表すことができる。

$$\frac{I_{H\alpha}}{I_{He}} \propto \frac{k_{H\alpha}(T_e)[H_2O]}{k_{He}(T_e)[He]}$$

気泡内の He の密度は気泡サイズに関わらず一定であることから、 $I_{H\alpha}/I_{He}$ は電子温度または気泡内水蒸気密度の変化の指標になる。

Fig.1 に大小二種類の気泡サイズ時においてマイクロ波を入射し、プラズマを生成した際の発光強度比の時間変化を示す。

放電初期において発光強度比は気泡サイズが小さいものの方が大きいものに比べて早く立ち上がるが、2 μ s 以降は二つの値に大きな差は見られなくなった。

この要因として、マイクロ波プラズマの加熱によって気泡内の水蒸気密度が上昇する

際、気泡サイズが小さいものの方が短時間で飽和水蒸気圧に到達することが示唆される。

今後は、液中内の溶質とプラズマにより生成されるラジカルとの化学反応過程を解明するため、適切な溶媒、溶質を選択し、気液界面における現象を明らかにしたい。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① T. Ishijima, R. Saito, H. Sugihara, H. Toyoda, Refractory of Organic Solute Decomposition in Water using Microwave Plasma, Transactions of the Material Research Society of Japan, 査読有, 36, 2011, 475-478
- ② R. Saito, H. Sugiura, T. Ishijima, H. Toyoda, Influence of temperature and pressure on solute decomposition efficiency by microwave-excited plasma, 査読有, 11, 2011, S195-S198, doi:10.1016/j.cap.2011.02.022

[学会発表] (計 5 件)

- ① 鈴木春香, 石島達夫, 豊田浩孝, 液中気泡内における水蒸気とマイクロ波プラズマの相互作用, 2012 年春季 第 59 回 応用物理学関係連合講演会, 2012 年 3 月 16 日, 早稲田大学 (東京都)
- ② H. Suzuki, T. Ishijima, H. Toyoda, Temporal variation of water vapor pressure inside a bubble under water induced by microwave plasma, The 5th International Conference on

PLAsma-Nanotechnology & Science,
2012.3.9, Freude (Aichi)

- ③ T. Ishijima, H. Suzuki, K. Kanetake, H. Toyoda, Bubble Plasma Production under Water using Microwave - Basic Study in Multi-phase Structure and Application, 12th International Symposium on Biomimetic Materials Processing, 2012.1.24, Noyori Conference Hall (Aichi)
- ④ T. Ishijima, H. Suzuki, H. Toyoda, Time-resolved OES measurement of microwave plasma produced inside controlled bubbles under water, 64th Annual Gaseous Electronics Conference, 2011.11.17, Salt Lake Convention Center (USA)
- ⑤ 鈴木春香, 石島達夫, 豊田浩孝, パルスマイクロ波液中気泡内プラズマの時分解発光分光計測, 応用物理学会 プラズマエレクトロニクス分科会20周年(研究会創設25周年)記念特別シンポジウム, 2011年10月22日, 名古屋大学野依記念学術交流館(愛知県)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石島 達夫 (ISHIJIMA TATSUO)
金沢大学・サステナブルエネルギー研究
センター・准教授
研究者番号: 00324450