

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 8 日現在

機関番号：16301

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560236

研究課題名(和文) 高圧液中プラズマと高圧下におけるプラズマ細長化現象に関する研究

研究課題名(英文) Study of underwater plasma under high pressure and thin and long growth of its plasma

研究代表者

向笠 忍 (MUKASA, SHINOBU)

愛媛大学・理工学研究科・講師

研究者番号：20284391

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：高圧水中プラズマの細長化現象の解明を目的として、従来の高周波電源をマイクロ波電源に替えた実験と、高周波電源を用い、電極を下向きにした実験、プラズマジェットの実験を行った。マイクロ波電源を用いた場合、プラズマの細長化現象は観察されなかった。電極を下向きとした場合、プラズマは一旦消滅した後に再び発生した。プラズマジェット方式では1MPaにおいてもプラズマは安定した。プラズマ発光スペクトルから高圧下において連続スペクトルが発生し、H α と連続スペクトルを分割した像の高速度カメラ画像から、H α の発光は細長化したプラズマから強くみられ、連続スペクトルは細長化したプラズマから発光分布が広がった。

研究成果の概要(英文)：To clarify a phenomenon of thin and long growth of high-pressure underwater plasma, three kinds of experiment were conducted, an experiment exchanging the conventional radio-frequency power supply for a microwave power supply, an experiment turning the electrode downward and an experiment using a plasma jet. Using the microwave power supply, the thin and long growth of plasma was not observed. Turning the electrode downward, the plasma often generated intermittently. Using the plasma jet, the plasma remained stably even at 1 MPa. A continuous spectrum was emitted from the underwater plasma at higher pressure than atmospheric pressure. Two images separated into H-alpha emission spectrum and the continuous spectrum were captured simultaneously using a high-speed camera. The intensity distribution of H-alpha emission spectrum was almost matched to the thin and long growth of the plasma, while that of the continuous spectra widened more from the thin and long growth of the plasma.

研究分野：熱工学

キーワード：液中プラズマ 高圧力 発光スペクトル 気泡 高速度カメラ

1. 研究開始当初の背景

液体中に浸漬した電極にマイクロ波や高周波を印加して発生させるプラズマを液中プラズマと呼ぶ。液体は有機溶媒から水まで様々なものを用いることができる。例えば、アルコール中でマイクロ波プラズマを発生させダイヤモンドの高速成膜に成功し、亜鉛などの金属電極を用いて水やアルコール中でプラズマを発生させて金属・酸化金属ナノ粒子の生成に成功している。さらに、有害物質の分解や水処理などへの有用性も確認された。

液体中でプラズマを発生させる方法として、本手法以外に高電圧の直流パルス放電がある。本手法と比べると低エネルギーであり、水処理において有利となるものの、絶縁性の高い液体でないと発生しないなどの制限がある。一方、本手法は液体の種類や導電率にはほとんど影響しない。このことは放電形態の違いによる。パルス放電を観察すると液体中にストリーマ状の細長い発光筋がみられるが、マイクロ波・高周波を用いた本手法では、通常電極の先端部分を囲むように発光するのが観察される。高速度カメラの観察では、プラズマの熱で周囲の液体は蒸発するため、プラズマは気泡内で発生する。そのため、液体の導電率にはほとんど影響しない。

このことから、本手法は海水中の利用で大きな有利がある。例えば生簀での海水魚飼育における殺菌などへの適用などがあるが、最も注目しているのは海底部に存在するメタンハイドレートの採掘である。メタンハイドレートは海底約 500~1000m 付近に分布しており、特に四国沖をはじめとする日本近海に日本の天然ガス消費量の約 96 年分が埋蔵されていると推計されている。メタンハイドレートは固体のため石油や天然ガスのような自噴を起さないで、現在のところメタンハイドレートが融解する条件の温度・圧力まで加熱または減圧しメタンガスを採取する方法が主に試みられている。しかし、メタン採取途中でのハイドレートの再形成が問題となっている。本手法の場合、プラズマでメタンを分解し水素として採取するので、ハイドレートの再形成は生じない。また、炭素分を海底中に留めることになり CO₂ の排出削減にも一役買うことになる。

これまで実用化に向けた研究と同時に液中プラズマの基礎的な研究も行ってきた。主として分光法による発光種の特定や温度測定が挙げられるが、これらは数十ミリ秒で時間的変動を繰り返している。これは、プラズマの熱で周囲の液体が蒸発して気泡が発生してから、成長し、やがて浮力によって離脱するまでの周期と等しい。つまり、プラズマは気泡の挙動の影響を受ける一方で、気泡の挙動もプラズマの影響を受けている。このような現象は高速度カメラを用いた観察によって明らかにした。

2. 研究の目的

これまではプラズマが容易に発生する減圧下での液中プラズマの研究が多かったが、最近大気圧より高圧で液中プラズマを発生させて興味深い現象を観察した。減圧下では通常プラズマは電極先端面のほぼ全面で生じていたが、高圧下では電極先端面の一部から細長く発光が伸びていた(図1)。このメカニズムについて明らかにする。供給電力について、1気圧では約 150W 程度に対して5気圧では 600W 程度必要となるように、高圧下ではより多く消費する一方で、発光する領域はしだいに細長くなる。つまり、高圧下で強く発光している部分は高エネルギー密度のプラズマであると予測される。

現在5気圧の水中プラズマの発生に成功しているが、より高圧中でのプラズマ発生に成功したい。このための手段の一つとして現在 27.12MHz の高周波電源を用いているが、これを 2.45GHz のマイクロ波電源に換えて同様の実験を行う。マイクロ波を用いた場合にこれまでと同様の細長いプラズマを形成するかは全くの未知である。

より高圧下でのプラズマの発生によりメタンハイドレートの採取の可能性に大きく近づくことになる。また、これまで高圧下での液中プラズマの現象はほとんど知られておらず、従来の減圧下の現象とは異なると予測されるため学術的にも非常に興味深く、他の分野への適用も期待することができる。

3. 研究の方法

液中プラズマ発生装置の概略を図2に示す。反応容器は、容量約 520 mL、耐圧 10 MPa、2つの観察窓を有している。容器内に純水を満たし、減圧または大気圧下でプラズマを発生させた後、プラズマを発生させたまま加圧装置を用いて 100 kPa 毎上昇させた。電極は、直径 3 mm のタングステン棒の先端を半球状に加工したものである。高周波電源を用いる場合は、電極棒を肉厚 1.5 mm、外径 6 mm の石英管に挿入して使用し、マイクロ波を用

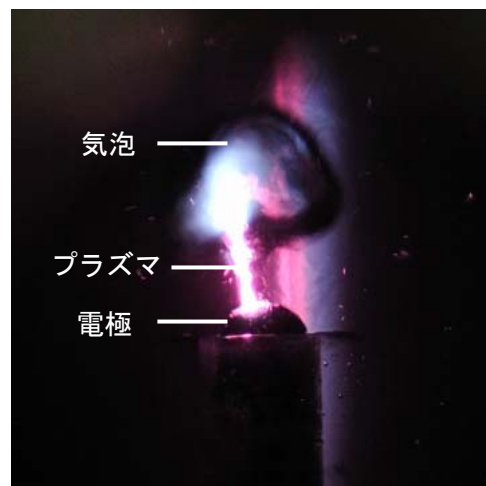


図1 高圧下での高周波水中プラズマ

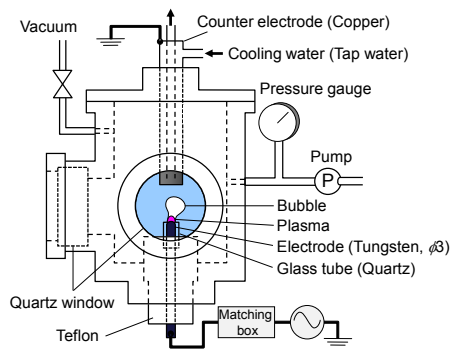


図 2 実験装置概略図

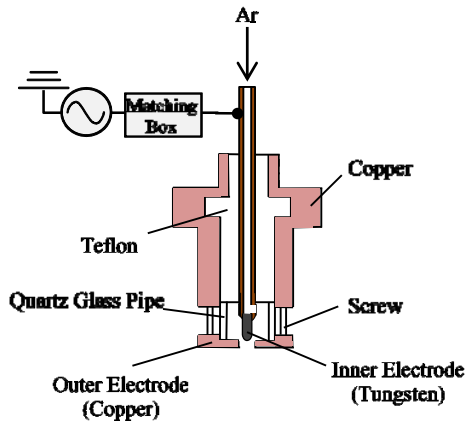


図 3 プラズマジェット用電極概略図

いる場合は、その外側を銅製円筒で覆い同軸型電極とした。これは、電極伝達時のマイクロ波の損失を防ぐためである。対向電極として直径 13 mm の銅棒を使用した。電源として、27.12 MHz の高周波と、2.45GHz のマイクロ波の 2 つの異なる周波数を用いた。また、図 2 に示される反応容器を、上下逆さまにして高周波電源を用いて実験を行った。

プラズマジェット用の高周波印加電極を図 3 に示す。内径 3 mm、外径 4 mm の銅管先端に鈍角に尖らせたタングステン棒を圧入したものを使用した。接地電極は、印加電極先端を覆うキャップ状で、中心にはガス噴出孔の直径 3 mm の穴がけられており、この位置の両電極の間隔はできるだけ狭くしている。アルゴンは印加電極の銅管から供給され、銅管側面に開けられた穴から両電極間を通過し、噴出孔からそこで発生するプラズマとともに反応容器へと放出される。容器内圧力は背圧弁で調整される。このとき、図 2 の反応容器は上下逆さまに設置された。

プラズマおよび気泡について、観測窓を通して高速度カメラ (MEMRECAM GX-1, Nac) を用いて撮影を 2000 fps で行った。H α 発光像と気泡像、それから H α 発光像と 500 ~ 600 nm のプラズマ発光像の 2 種類の同時撮影を行った。

4. 研究成果

マイクロ波電源を用いた場合、プラズマが安定して発生したのは 200 kPa までであつ

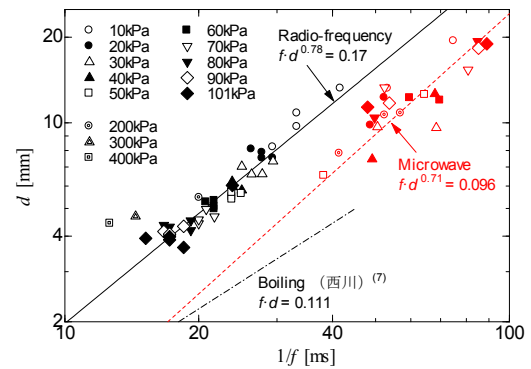


図 4 気泡発生周期と気泡離脱直径 (黒：高周波, 赤：マイクロ波)

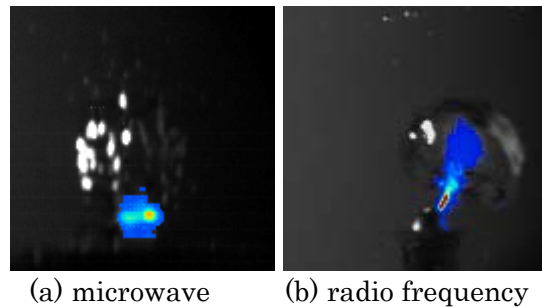


図 5 気泡と発光強度分布の合成図

た。このことから高圧下でプラズマを発生させるのは高周波の方が適切である。発生したプラズマおよび気泡の挙動に高周波の場合との違いがみられた。気泡の発生周期 f と最大気泡直径 d との関係について、横軸に $1/f$ 、縦軸に d としてプロットしたグラフを図 4 に示す。黒色が高周波での結果、赤色が今回のマイクロ波での結果である。いずれの場合においても図中の直線で示すように f と d はべき乗則にしたがう。しかし、マイクロ波の場合の気泡発生周期は、高周波の場合のそれに比べて同じ気泡径に対して 10 ~ 30 ms 長くなる。また、加熱面沸騰の fd 値は 80 ~ 110 mm/s であるため高周波、マイクロ波ともに沸騰とは異なる気泡挙動を示した。

200kPa における H α の発光強度分布と気泡像の合成図を図 5 に示す。マイクロ波によるプラズマはすべての圧力下において電極先端の面全体から発生した。一方、高周波の場合、低圧下ではマイクロ波同様面全体から発生するが、圧力が高くなると電極先端面の一部から細長く上へ伸びることがわかっている。さらに、気泡挙動について、マイクロ波では気泡表面が波打ちながら成長する様子が頻繁にみられた。これは気泡成長が減速するときのレイリー・テイラー不安定性に基づき気泡界面の攪乱が成長するためと考えられる。このことは、マイクロ波水中プラズマにおいて、マイクロ波のエネルギーの一部が周囲の水に吸収されることによる熱の拡散が起きるために、高周波の場合ほど気泡が成長しないことが原因であると考えられる。

次に、電源を高周波として電極の向きを下向きとした場合、プラズマが安定して発生し

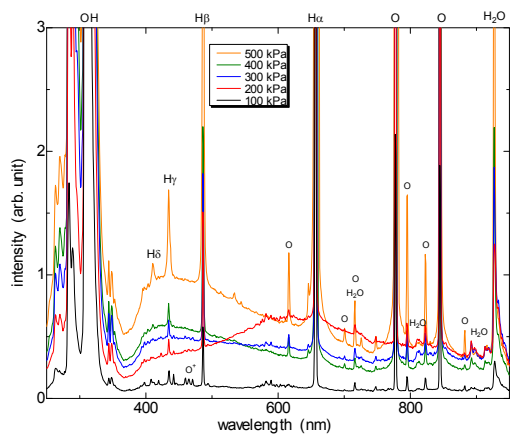
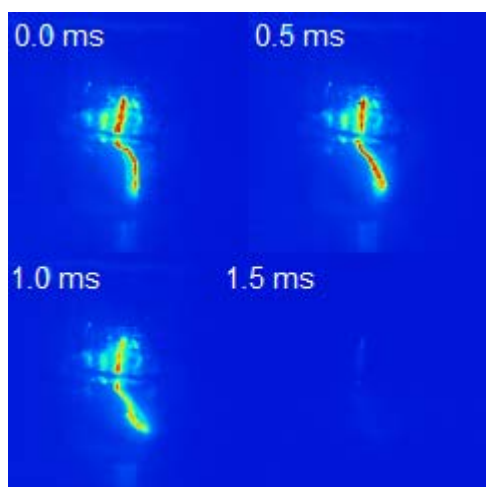
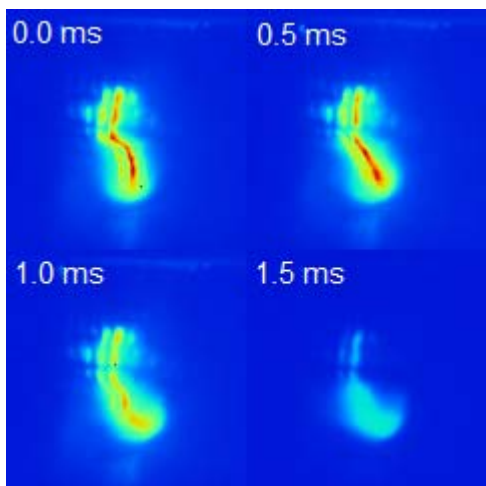


図 6 高圧下における高周波水中プラズマ発光スペクトル



(a) H α



(b) Continuous spectrum

図 7 H α と連続スペクトル(約 500~600 nm)の発光強分布連続画像

たのは従来の場合とほぼ変わらず印加電力 600 W において 500 kPa 程度であった。しかし、上向き電極の場合はプラズマが一度消滅すると再発生することはなかったが、下向きとした場合には、プラズマが断続的に発生した。これは、ガラス管の口よりも電極先端を

やや内側にしており、プラズマ消滅後もガラス管内に気泡が残存し、そこからプラズマが再発生したものと考えられる。なお、電極が上向きときは電極先端をガラス管から少し出すとプラズマはより安定した。

最後に、プラズマジェット電極を用いた場合、1 MPa で安定してプラズマを発生させることができた。このときの印加電力は 200 W を超えることがなかった。このことから、高圧下においてプラズマを発生させるにはプラズマジェット方式が最も適切である。ただし、実用化において本手法は海上から高圧ガスを供給し続けるためコストの増大が懸念される。

高圧下における高周波水中プラズマの発光スペクトルを図 6 に示す。大気圧下ではいくつかの輝線スペクトルのみが現れるのに対して、200 kPa 以上では輝線スペクトル以外に 380 nm から長波長側に連続スペクトルが現れた。連続スペクトルは励起した水分子 (C→A) によるものである。500~600 nm の波長領域では連続スペクトル以外目立つ発光は現れないことから、連続スペクトルの空間分布や時間変化を調べる目的として 500~600 nm での発光像と H α 発光像の同時撮影を行った。500 kPa での結果を図 7 に示す。これは高周波電源を用い電極を下向きとしたものである。H α 発光像は電極面から細長く伸びており、根元付近で発光がやや強く、先端付近で左右に揺れるような軌道を描く。一方、連続スペクトルの発光像は H α と同じ位置で発光が強いものの、先端付近で発光が強く、分布はより広がっている。さらに、H α の発光は 1 フレームでほぼ完全に消滅しているのに対して、連続スペクトルの発光は残存している。

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)

[学会発表] (計 4 件)

- ① 向笠忍, 横山雄大, 野村信福, 豊田洋通, 高圧下における水中プラズマ挙動に対する電源周波数の影響, 第 51 回日本伝熱シンポジウム, 2014 年 5 月 21~23 日, アクティシティ浜松・コンgresセンター (静岡県浜松市).
- ② S. Mukasa, S. Nomura, H. Toyota, Synchronized Observation of Plasma Emissions and Bubbles Generated by Radio-Frequency Plasma in Water, 21st International Symposium on Plasma Chemistry (ISPC21), 2013 年 8 月 4~9 日, 2013, Cairns (Australia).
- ③ 向笠忍, 鎌田敦, 野村信福, 豊田洋通, 高圧下における高周波水中プラズマの発光と気泡の同時観察, 第 50 回日本伝熱シンポジウム, 2013 年 5 月 29~31 日, ウェスティンホテル仙台 (宮城県仙台市).

- ④ Shinobu Mukasa, Atsushi Kamada, Shinfuku Nomura and Hiromichi Toyota, SIMULTANEOUS MEASUREMENT OF BUBBLE BEHAVIOR AND EMISSIONS OF BALMER SERIES IN RADIO-FREQUENCY PLASMA IN WATER BY A HIGH-SPEED CAMERA, The Third International Forum on Heat Transfer (IFHT2012), 2012年11月11～13日, 長崎ブリックホール (長崎県長崎市).

6. 研究組織

(1)研究代表者

向笠 忍 (MUKASA, Shinobu)

愛媛大学・大学院理工学研究科・講師

研究者番号：20284391