

令和 2 年 5 月 15 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2016～2019

課題番号：16H02121

研究課題名（和文）プラズマと液体の相互作用に関する学理構築

研究課題名（英文）Construction of Scientific Principle in Plasma-Liquid Interaction

研究代表者

佐々木 浩一（Sasaki, Koichi）

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：50235248

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 32,500,000円

研究成果の概要（和文）：プラズマ・液体相互作用の学術的体系化に資する基礎研究を行った。プラズマと相互作用する液体からの液滴放出メカニズムとして、1) 強電場による液面の変形、2) アルカリ金属微粒子と液面との反応、および、3) 照射されたイオンが中性化後に溶存してガス化する過程の三つを提唱した。液滴から蒸発するとき液滴に含まれる金属イオンが金属原子となって気相に放出されることを観察した。液相に存在するOHラジカルを検出するためにルミノールの化学ルミネッセンスが利用可能であることを示した。また、CTTS遷移と過渡吸収分光法を用いて、プラズマと相互作用する液体中における溶媒和電子の反応周波数を調べた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究を開始した当時には、プラズマと液体の相互作用が新しい研究課題となり、成長著しいテーマになりつつあった。しかしながら、このテーマは緒についたばかりであり、基礎的知見の蓄積に乏しく、学術的体系化は甚だ不十分であった。プラズマと液体の相互作用は、プラズマのライフサイエンスへの応用やプラズマを用いた水処理などの基礎となるものであるが、本研究により、これらの応用研究に有用な学術的知見が得られた。

研究成果の概要（英文）：We carried out fundamental investigation which contributes to the academic progress of plasma-liquid interaction. We proposed 1) distortion in the shape of liquid surface in strong electric field, 2) reaction between liquid and nanoparticle of alkali metal, and 3) the formation of gas in liquid after the neutralization of irradiated ions as the production mechanisms of droplets from liquid surfaces interacting with plasmas. We observed the production of metal atoms from droplets when they were evaporated in plasma. We have shown that the chemiluminescence of luminol can be utilized for the detection of OH radicals in liquid. In addition, we examined the reaction frequency of solvated electrons in liquids interacting with plasmas using CTTS transition and transient absorption spectroscopy.

研究分野：プラズマ応用工学

キーワード：プラズマ・液体相互作用 大気圧プラズマ レーザー応用計測

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

従来のプラズマプロセッシングは、プラズマと固体の相互作用の応用であったが、本研究を開始した頃には、プラズマと液体の相互作用が新しい研究課題となり、成長著しいテーマになりつつあった。液体と固体とは、凝縮相としての共通点を有しているが、プラズマとの相互作用を考えると、固体と液体とで同じかどうか不明な基礎過程や、液体に特異な現象に気づかされる。例えば、2次電子放出の強弱、スパッタリングの有無、局所的高温化・沸騰とそれに起因する流動・粒子輸送、電子の水和、短寿命ラジカルから中寿命ラジカルへの転換などである。これらは、どれをとっても興味深い問題であるが、基礎的知見の蓄積に乏しく、学術的体系化は甚だ不十分であった。プラズマと液体の相互作用は、プラズマのライフサイエンスへの応用やプラズマを用いた水処理などの基礎となるものであり、それがプラズマと固体の相互作用に匹敵するレベルで学術的に体系化されれば、単なる知識を超えた「知恵」として、様々な応用研究の見通しをよくするものと期待された。

### 2. 研究の目的

プラズマと液体の相互作用の学術的体系化に資する基礎的研究を行うことを目的とした。申請時の研究計画調書において、説明すべき具体的ポイントとして以下を挙げた。1) 水面がプラズマと相互作用したときどのような粒子が水面から生成されどのような密度分布で気相に存在するのかを知ること、2) 水面から生成された粒子が気相でどのようにラジカル化して水面に再輸送されるのかを知ること、3) 気相への粒子放出のメカニズムを解明すること、4) プラズマから供給されるラジカルによって生じる液相での化学反応を理解すること、および、5) 液相での化学反応においてプラズマ側から水に供給される短寿命ラジカルの直接的な効果と、それが中寿命ラジカルに転換された後に生じる現象とを区別すること。

### 3. 研究の方法

研究の目的において説明すべき具体的ポイントとして挙げた 1)-5) の事項に関し、それぞれ以下のアプローチを取って研究を進めた。

- (1) 水面が電極として働く直流大気圧ヘリウムグロー放電を用いて、水面から放出される液滴の密度分布、および、水面から放出される水蒸気が冷却されることにより生成されるミストの密度分布を、レーザーミー散乱法により測定した。また、液体金属を低ガス圧プラズマと相互作用させる実験により、液体金属から液滴が放出される現象を調べた。
- (2) 液滴を介した液相から気相への粒子輸送とラジカル化について調べるため、 $\text{CaCl}_2$  水溶液のミストが存在する空間にパルスレーザー光を照射することによりプラズマを生成し、液滴の蒸発と  $\text{Ca}^+$  および  $\text{Ca}$  の密度の時空間分布を測定した。また、直流大気圧ヘリウムグロー放電中に存在する主要な負イオン種が何かをレーザー光脱離法によって調べた。
- (3) 液相から気相への粒子輸送メカニズムとして特に未解明なのは液滴放出現象であり、それに絞って研究を行った。水面が電極として働く直流大気圧ヘリウムグロー放電では、水面形状の動的変化を高速度カメラを用いて撮影した。また、液体金属と低ガス圧プラズマを相互作用させる実験では、液体金属に照射されるイオンのエネルギー、イオンのフラックス、および、液体金属の温度を独立に制御した実験を行うとともに、液面形状の動的変化を調べた。
- (4) 液相でのマクロな化学反応現象の例として、プラズマ電気分解反応による  $\text{Cu}_2\text{O}$  微粒子の生成実験を行い、液体の pH の効果、液中における溶存酸素の影響、および、液体温度の影響などを総合的に調べた。また、水中で生成される  $\text{H}_2\text{O}_2$  とその流動を呈色反応をもちいて調べた。
- (5) 短寿命ラジカルの効果を直接的に研究するために必要な計測方法の開発を中心に研究した。液中における OH ラジカルを検出する方法としてルミノールの科学ルミネッセンスを利用することを着想し、気相における OH 密度との相関を調べた。また、Charge Transfer to Solvent (CTTS) と呼ばれる一種のフラッシュフォトリシス法を用い、プラズマと相互作用するイオン液体および水中に溶媒和電子を生成し、その過渡吸収波形から溶媒和電子の反応周波数を調べた。

### 4. 研究成果

主要な成果のいくつかについて報告する。

#### (1) 液面からの粒子生成

水面が電極として働く直流大気圧ヘリウムグロー放電では、プラズマ中のガス温度が 2500K 程度であり、プラズマと接する水面から水蒸気が発生するため、プラズマ・液相界面直上の空間の水蒸気密度は局所的に高いことが予備実験の段階からわかっていたが、水蒸気がプラズマ外部に輸送されると、温度の低下に起因して凝縮し、多量のミストが生成されることが新たにわかった。また、ミストによるレーザーミー散乱像から、プラズマ柱の周囲において渦状の気体流れが発生することがわかった。また、このようにして生成されるミストとは別に、水面が陰極として働く場合には、水面から直接液滴が放出されることが観察された。液滴の放出は、水が高い濃度のアルカリ金属イオンやアルカリ土類金属イオンを含む場合に顕著であり、遷移金属イオンを含む場合には比較的顕著ではないことがわかった。

一方、薄膜作成用途に広く用いられているマグネトロンスパッタリング装置において、ターゲ

ットにスズを用い、ターゲットをバックリングプレートにボンディングしない条件でプラズマを生成すると、冷却能力が低いためにスズターゲットが溶融することに気づいたので、この現象を利用して、低ガス圧アルゴンプラズマと液体スズを相互作用させる実験を行った。その結果、ターゲットが液体の場合の方が放電電流が大きいことがわかり、液体スズは固体スズより2次電子放出係数が大きいことが示唆された。また、同じ電圧で生成したプラズマ中に存在する原子状スズの密度およびその分布はターゲットが固体の場合と液体の場合で差異が無く、狭義のスパッタリングイールドはターゲットが液体の場合の方が少し小さいことが示唆された。しかしながら、ターゲットのエロージョン速度はターゲットが液体の場合の方が大きく、その原因は液体ターゲットからの液滴の放出であることを見いだした。図1は液体スズターゲットから発生した液滴の飛行軌跡をレーザーミー散乱法で撮影した結果をあらわしている。

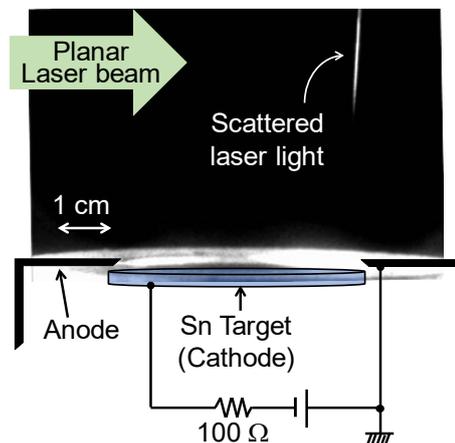


図1 液体スズをターゲットとする直流マグネトロンスパッタリングプラズマで観察された液滴の放出

## (2) 液相起源の粒子のラジカル化

水面が電極として働く直流大気圧ヘリウムグロー放電の場合、水面から発生する水蒸気がプラズマ中で電子衝突解離によりOHラジカルに転換されることは当然であり、OHラジカルの密度分布は予備実験の段階で調べていた。

NaCl水溶液やCaCl<sub>2</sub>水溶液が陰極として働く直流大気圧ヘリウムグロー放電において、プラズマ中にNaやCaが原子状(ラジカル)で存在することは以前からわかっていたが、液相において正イオンとして存在するこれらの粒子がプラズマと水面のあいだの正イオンシースにおける電位障壁を越えて気相に輸送されるメカニズムは不明であった。液面から生成された液滴からの生成は有力な候補であったが、NaCl水溶液やCaCl<sub>2</sub>水溶液を蒸発させれば塩が析出するとの理解が一般的であり、NaおよびCaの生成をストレートには説明できない。そこで、CaCl<sub>2</sub>水溶液のミストが存在する空間にNd:YAGレーザーパルスを入射してインパルス的にプラズマを生成し、Ca<sup>+</sup>、Ca、およびミストの密度の時空間変化をレーザー誘起蛍光法およびレーザーミー散乱法で測定することにより、プラズマに曝された液滴から金属原子が生成されるか否かを調べた。その結果、図2に示すように、ミストが蒸発する空間においてミストの蒸発と同時にCaが生成されることを観察した。インパルス状のレーザー生成プラズマを用いており、Caの生成を観察している時間帯ではプラズマは消失しているため、CaCl<sub>2</sub>水溶液からCaCl<sub>2</sub>が分子として一旦生成され、それが電子衝突によりCaに解離するという生成プロセスは否定される。これにより、プラズマと水溶液陰極との相互作用によって生成された液滴がNaやCaの源であるとの仮説が以前より確からしいものとなった。

プラズマ気相に水蒸気が輸送されること、および、プラズマが大気中で生成されていることから、直流大気圧ヘリウムグロー放電には大量の負イオンが存在することが予想される。しかし、大気圧プラズマ中の負イオンを検出しその密度を調べる研究は、プラズマから少し離れた空間にスキマーを設置し、四重極質量分析器に取り込んで負イオン種を調べた研究以外には存在しない。そこで、直流大気圧ヘリウムグロー放電に波長可変レーザーパルスを入射してプラズマ中の負イオンから電子を光脱離し、負電荷の質量変化に起因する放電電流の変化からプラズマ中の負イオン種を調べる実験を行った。この実験において、プラズマ雰囲気における水蒸気密度が高いとOH<sup>-</sup>負イオンの密度が高くなることがわかったが、他の負イオン密度の変化との相関から、OH<sup>-</sup>は水蒸気への電子付着によって生じるのではなく、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>への電子付着によって生じることを見いだした。H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>への電子付着によりOH<sup>-</sup>と同時にOHラジカルが同時に生成されることから、水蒸気を起源とす

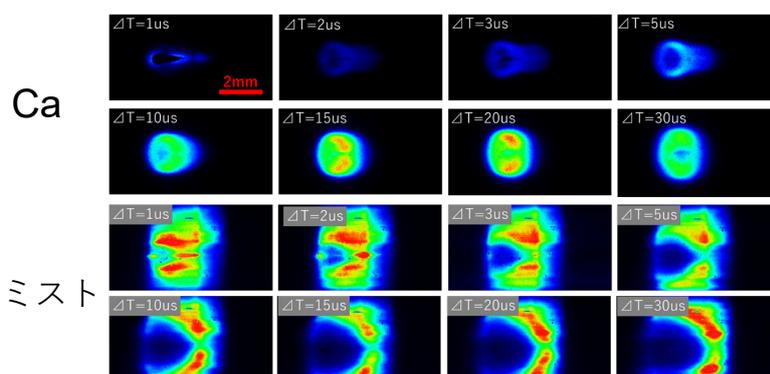


図2 CaCl<sub>2</sub>のミストが存在する空間においてインパルス状のレーザー生成プラズマを発生させ、Ca密度分布とミスト密度分布の時間変化を可視化した結果。

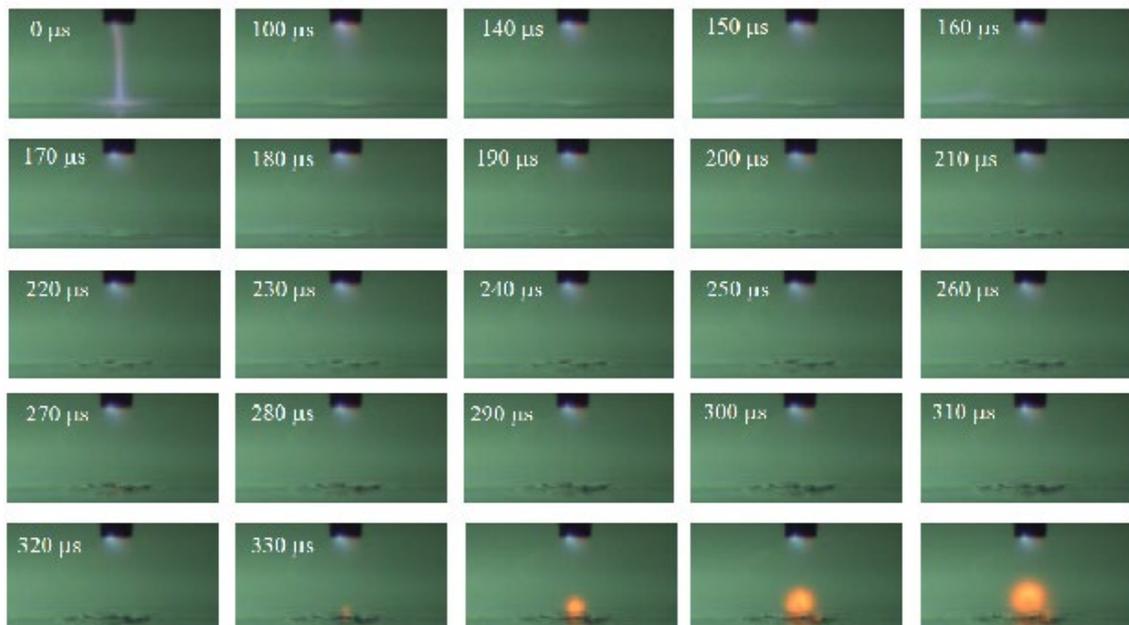


図3 水面が陰極として働く直流大気圧ヘリウムグロー放電において、放電のための高電圧を印加した直後における液面の形状変化と液滴発生の様子。

る OH の生成過程に新しいルートが見いだされた。また、前の段落で述べたように、NaCl 水溶液や CaCl<sub>2</sub> 水溶液が陰極として働く直流大気圧ヘリウムグロー放電には Na や Ca が存在するが、Cl は検出されたことが無く、それが何故かは未解明であった。負イオン種を調べる実験により、陰極が NaCl 水溶液である場合にはプラズマ中に Cl<sup>-</sup> が存在することが確認され、生成した Cl<sup>-</sup> の少なくとも一部は Cl<sup>-</sup> に転換されていることがわかった。

### (3) 液相からの液滴放出メカニズム

水面が陰極として働く直流大気圧ヘリウムグロー放電では、放電のための高電圧を印加した後、図3に示すように、液面が変形し、突起状となることが見いだされた。この水面の変形により、突起の先端の電場は強まり、先端が引きちぎられるようにして液滴化する現象が観察された。これは、エレクトロスプレーの分野で実用化されているテーラーコーンと呼ばれる現象と類似した現象であると考えられた。このような過程により放電開始後の初期にみられる液滴放出の頻度は、その後の時間帯に観察される液滴放出の頻度より小さいことがわかった。

NaCl 水溶液が陰極として働く直流大気圧ヘリウムグロー放電において、上で述べた放電初期の液滴放出過程が生じた後の時間帯を観察すると、初期よりも頻度が高く、より爆発的な液滴放出が観察された。また、このとき、Na の D 線が明るく発光することが観察された。NaCl の濃度を極端に高くすると、D 線の発光はプラズマ柱から離れた空間でも観察された。リトマス試験紙を用い、発生した液滴の pH をプラズマ柱からの半径方向の距離の関数として調べると、プラズマ柱の付近の液滴はアルカリ性であることがわかった。以上を総合的に考え、液滴から生成された Na 原子が気相で凝集し、Na の微粒子を形成した後、それが水面に落下することで水とのあいだで爆発的な反応  $2\text{Na} + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2 + 2\text{NaOH}$  が生じ、結果として発生する液滴の一部がアルカリ性になるとの仮説を提唱するに至った。

低ガス圧プラズマと液体金属を相互作用させる実験では、プラズマとして誘導結合プラズマを用い、液体金属としてガリウムまたはスズを用いる実験を行った。この実験では、プラズマを生成する高周波電力により液体金属に照射されるイオンのフラックスを制御し、液体金属に印加する負電位によりイオンのエネルギーを制御することができる。さらに、液体金属の温度を制御することにより、これら三つのパラメータが液滴の放出に対してどのように影響するかを詳細に調べた。結果として、液体金属から液滴が放出されるためにはイオンフラックスおよびイオンエネルギーの両方に関する閾値が存在し、イオンフラックスが大きいほど小さいイオンエネルギーにおいて液滴が放出されることがわかった。また、イオンフラックスおよびイオンエネルギーに関する閾値は、液体金属の温度が高いほど低下することがわかった。液滴が放出されるとき液面形状の変化を観察すると、長時間(典型的に数十秒)を掛けて液面が膨らみ、膨らみがはじける時に液滴が放出される様子が観察された。これにより、液面に照射されたイオンが中性化後に溶存を経て液体金属中でガス化し、ガスの量が臨界値を超えると液面の膨張が破れて液滴が発生するというモデルを提唱した。

#### (4) プラズマ電気分解反応による Cu<sub>2</sub>O 微粒子の合成

通常の電気分解反応装置の陰極側を直流大気圧ヘリウムグロー放電に置き換え、陽極側を銅電極とした装置で電気分解反応を行うと、陽極側に近い領域において Cu<sub>2</sub>O の微粒子が合成されることを見いだした。陰極側を金属電極に交換して普通の電気分解反応を行うと Cu<sub>2</sub>O 微粒子は合成されないことから、一価の銅が酸化物を形成するのはプラズマ(陰極側)から液相に輸送される電子が水和し、還元剤として働くためであると考えたが、Cu<sub>2</sub>O 微粒子が陽極に近い領域で生成される結果とのあいだで矛盾があった。その後、液相の温度、pH、および溶存酸素の量を変えて様々な実験を行ったところ、通常の電気分解反応の場合であっても条件を整えれば Cu<sub>2</sub>O 微粒子が合成されることを見だし、一価の銅が酸化物を形成するのはプラズマによる還元効果によるものではないことがわかった。しかしながら、生成される微粒子の結晶性を評価すると、明らかに、プラズマ電気分解反応によって合成される Cu<sub>2</sub>O 微粒子は高い結晶性を有することが見いだされた。そのメカニズムについては現在研究を行っている。

#### (5) 液相短寿命ラジカルの検出法および反応性

ルミノールは Fe<sup>3+</sup> と H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> の存在下で青色の発光を示すことは広く知られており、犯罪捜査(血液の検出)において利用されている。これは、Fe<sup>3+</sup> と H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> の反応で生じた HO<sub>2</sub> がアルカリ雰囲気中で O<sub>2</sub><sup>-</sup> に転換され、O<sub>2</sub><sup>-</sup> がルミノールと反応することによって生じる化学ルミネッセンスである。本研究では、図 4 に示すように、プラズマが照射された液体では Fe<sup>3+</sup> が存在しなくても化学ルミネッセンスが生じることを見だし、その反応過程を次のように解釈した。プラズマが照射された液体中には H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> が存在することは広く知られている。OH ラジカルがプラズマから液相に輸送されると、OH+H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>→O<sub>2</sub><sup>-</sup>+H<sub>3</sub>O<sup>+</sup>の反応が生じて O<sub>2</sub><sup>-</sup> が生成され、それがルミノールと反応することで化学ルミネッセンスが生じると考えられた。すなわち、ルミノールの化学ルミネッセンスは、プラズマから液相に輸送された OH を検出していると考えられる。実際、ルミノールの化学ルミネッセンスの半径方向のサイズとプラズマ・液相界面直上の気相における OH ラジカル密度の半径方向サイズはよく一致していた。また、パルス放電が停止した後のアフターグローの時間帯において、気相における OH ラジカル密度の時間的減衰と化学ルミネッセンス強度の時間変化もよく一致していた。従来、液相における OH ラジカルの検出にはテレフタル酸を OH と反応させ、生じたヒドロキシテレフタル酸を光励起して蛍光を検出する方法がとられてきたが、安定物質であるヒドロキシテレフタル酸は液相に蓄積するため、OH が存在する場所や OH 密度の時間変化を調べることはできなかった。ルミノールの化学ルミネッセンスは液相の OH 密度を測定するための新しい化学プローブ法となることが示された。

溶媒和電子は、OH ラジカルとともに、プラズマ・液体相互作用における代表的な短寿命活性種であるが、これまでにほとんど検出されたことが無く、その反応性を調べる手段は存在しなかった。本研究では、放射線化学などの物理化学分野で使用されている CTTS (Charge Transfer to Solvent) 遷移と呼ばれる方法を用いて溶媒和電子の反応性を調べる実験を行った。これは、液相に KI を添加し、波長 225 nm のパルスレーザー光を照射することによって I<sup>-</sup> から電子を脱離させ、溶媒和させる方法である。生じた溶媒和電子の密度の時間変化は赤外の過渡吸収分光計測によって測定可能であり、密度減衰の時定数から溶媒和電子の反応周波数を求めることができる。低ガス圧誘導結合プラズマ(アルゴン、窒素、酸素プラズマ)と相互作用するイオン液体 TMPA-TFSI における溶媒和電子の反応周波数、および、大気圧プラズマジェットと相互作用する水中における水和電子の反応周波数を調べた。その結果、プラズマ・液相界面の近いほど溶媒和電子の反応周波数が大きく、プラズマ照射に起因して界面付近に生成される物質が溶媒和電子と反応していることがわかった。イオン液体 TMPA-TFSI の場合には、溶媒和電子と反応する化学種の可視・紫外吸光スペクトルを測定したものの、物質の同定には至らなかった。水の場合には、文献調査により、溶媒和電子と反応するのは H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> であり、プラズマ・液相界面付近には H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> が高い薄い層が存在することが示唆された。

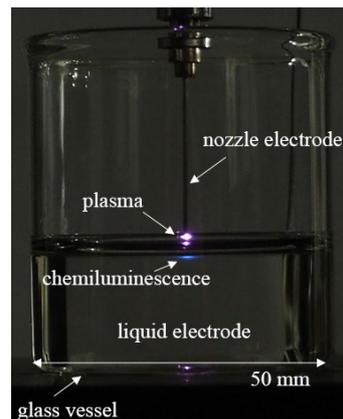


図 4 プラズマと接する水中で観察されたルミノールの化学ルミネッセンス。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Y. Inagaki and K. Sasaki	4. 巻 59
2. 論文標題 Reactivity of solvated electrons in ionic liquid interacting with low-pressure plasmas	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 066001-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.35848/1347-4065/ab8d4e">https://doi.org/10.35848/1347-4065/ab8d4e</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 N. Shirai, G. Suga, and K. Sasaki	4. 巻 29
2. 論文標題 Mechanism of droplet generation and optical emission of metal atoms in atmospheric-pressure dc glow discharge employing liquid cathode	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Plasma Sources Sci. Technol.	6. 最初と最後の頁 025007-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1088/1361-6595/ab6abc">https://doi.org/10.1088/1361-6595/ab6abc</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 N. Shirai, G. Suga, and K. Sasaki	4. 巻 52
2. 論文標題 Correlation between gas-phase OH density and intensity of luminol chemiluminescence in liquid interacting with atmospheric-pressure plasma	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Phys. D: Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 39LT02-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1088/1361-6463/ab2ff2">https://doi.org/10.1088/1361-6463/ab2ff2</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yamazaki Yuya, Shirai Naoki, Nakagawa Yusuke, Uchida Satoshi, Tochikubo Fumiyoshi	4. 巻 57
2. 論文標題 Chemical reaction process for magnetite nanoparticle synthesis by atmospheric-pressure DC glow-discharge electrolysis	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 096203 ~ 096203
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.7567/JJAP.57.096203">https://doi.org/10.7567/JJAP.57.096203</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 F. Tochikubo, T. Aoki, N. Shirai, and S. Uchida	4. 巻 56
2. 論文標題 Characteristics of liquid flow induced by atmospheric-pressure DC glow discharge in contact with liquid	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 046201-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.7567/JJAP.56.046201">https://doi.org/10.7567/JJAP.56.046201</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 N. Shirai, T. Yoshida, S. Uchida, and F. Tochikubo	4. 巻 56
2. 論文標題 Synthesis of magnetic nanoparticles by atmospheric-pressure glow discharge plasma-assisted electrolysis	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 076201-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.7567/JJAP.56.076201">https://doi.org/10.7567/JJAP.56.076201</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Sasaki and S. Harada	4. 巻 56
2. 論文標題 Excitation of cavitation bubbles in low-temperature liquid nitrogen	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 068002-1-3
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.7567/JJAP.56.068002">https://doi.org/10.7567/JJAP.56.068002</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Sasaki and Y. Takahashi	4. 巻 50
2. 論文標題 Discharge phenomena in a cavitation bubble induced by liquid-phase laser ablation	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J. Phys. D: Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 325202-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1088/1361-6463/aa754a">https://doi.org/10.1088/1361-6463/aa754a</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 N. Shirai, Y. Matsuda, and K. Sasaki	4. 巻 11
2. 論文標題 Visualization of short-lived reactive species in liquid in contact with atmospheric-pressure plasma by chemiluminescence of luminol	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Appl. Phys. Express	6. 最初と最後の頁 026201-1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.7567/APEX.11.026201">https://doi.org/10.7567/APEX.11.026201</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Sasaki and H. Koyama	4. 巻 11
2. 論文標題 Magnetron sputtering of liquid tin: Comparison with solid tin	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Appl. Phys. Express	6. 最初と最後の頁 036201-1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.7567/APEX.11.036201">https://doi.org/10.7567/APEX.11.036201</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 N. Takada, Y. Hayashi, M. Goto, and K. Sasaki	4. 巻 11
2. 論文標題 An attempt to produce electrical discharges in acoustic cavitation bubbles	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Plasma Fusion Res.	6. 最初と最後の頁 0406113-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1585/pfr.11.1406113	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 K. Urabe, N. Shirai, K. Tomita, T. Akiyama, and T. Murakami	4. 巻 25
2. 論文標題 Diagnostics of atmospheric-pressure pulsed-dc discharge with metal and liquid anodes by multiple laser-aided methods	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Plasma Sources Sci. Technol	6. 最初と最後の頁 045004-1-13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/0963-0252/25/4/045004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計52件（うち招待講演 7件 / うち国際学会 15件）

1. 発表者名 N. Shirai, G. Suga, and K. Sasaki
2. 発表標題 Droplet emission form liquid surface of atmospheric pressure plasma in contact with liquid
3. 学会等名 XXXIV International Conference on Phenomena in Ionized Gases and the 10th International Conference on Reactive Plasmas (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Inagaki and K. Sasaki
2. 発表標題 Reaction frequencies of CTTS transition-induced solvated electrons in bulk region of ionic liquids irradiated with low-pressure Ar, O <sub>2</sub> , and N <sub>2</sub> plasmas
3. 学会等名 XXXIV International Conference on Phenomena in Ionized Gases and the 10th International Conference on Reactive Plasmas (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 J. Liu, N. Shirai, and K. Sasaki
2. 発表標題 Effect of current on the synthesis of copper oxide nanoparticles by atmospheric-pressure plasma electrolysis
3. 学会等名 XXXIV International Conference on Phenomena in Ionized Gases and the 10th International Conference on Reactive Plasmas (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 N. Shirai, G. Suga, and K. Sasaki
2. 発表標題 Visualization of OH radical in liquid induced by atmospheric pressure plasma by luminol chemiluminescence
3. 学会等名 XXXIV International Conference on Phenomena in Ionized Gases and the 10th International Conference on Reactive Plasmas (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Hamana, N. Shirai, and K. Sasaki
2. 発表標題 Droplet ejection from liquid gallium and tin interacting with inductively coupled argon and helium plasmas
3. 学会等名 XXXIV International Conference on Phenomena in Ionized Gases and the 10th International Conference on Reactive Plasmas (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Hamana, N. Shirai, and K. Sasaki
2. 発表標題 Influence of liquid metal temperature on droplet ejection from liquid gallium and tin interacting with inductively coupled plasmas
3. 学会等名 11th Asia-Pacific International Symposium on the Basics and Applications of Plasma Technology (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 J. Liu, N. Shirai, and K. Sasaki
2. 発表標題 Influence of the pH value on the mechanism of cuprous oxide synthesis by atmospheric-pressure plasma electrolysis
3. 学会等名 11th Asia-Pacific International Symposium on the Basics and Applications of Plasma Technology (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 稲垣 慶修, 佐々木 浩一
2. 発表標題 大気圧ヘリウムプラズマジェットが照射された水中における水和電子の反応周波数
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 濱名 優輝, 白井 直機, 佐々木 浩一
2. 発表標題 誘導結合プラズマとの相互作用による液体金属からの液滴放出時における液面の形状変化
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jiandi Liu, Naoki Shirai, and Koichi Sasaki
2. 発表標題 Effect of pH on the synthesis of copper oxide nanoparticles by atmospheric-pressure plasma electrolysis
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 濱名 優輝, 白井 直機, 佐々木 浩一
2. 発表標題 誘導結合プラズマと相互作用する液体金属からの液滴放出現象
3. 学会等名 第36回 プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 劉 建蒂, 白井 直機, 佐々木 浩一
2. 発表標題 Comparison between plasma electrolysis and conventional electrolysis on the synthesis of copper oxide nanoparticles
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 稲垣 慶修, 佐々木 浩一
2. 発表標題 溶媒和電子をプローブに使ったプラズマ誘起液相化学種の高空間分解密度分布計測への挑戦
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 濱名 優輝, 白井 直機, 佐々木 浩一
2. 発表標題 誘導結合プラズマと相互作用する液体ガリウムからの液滴放出現象に対する温度の影響
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Sasaki and H. Koyama
2. 発表標題 Production of droplets by magnetron sputtering of a liquid tin target
3. 学会等名 24th Europhysics Conference on the Atomic and Molecular Physics of Ionized Gases (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Sasaki
2. 発表標題 Diagnostics of plasma-liquid interactions
3. 学会等名 71st Annual Gaseous Electronics Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 G. Suga, N. Shirai, and K. Sasaki
2. 発表標題 Generation processes of Ca atoms via interaction between Ca <sup>2+</sup> containing droplets and laser-produced plasma in atomsphere
3. 学会等名 2nd Asia-Pacific Conference on Plasma Physics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Sasaki and Y. Inagaki
2. 発表標題 Reaction frequencies of CTTS-driven solvated electrons in ionic liquids interacting with argon, oxygen, and nitrogen plasmas
3. 学会等名 5th Taiwan-Japan Workshop on Plasma Life Science and Technology (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Inagaki and K. Sasaki
2. 発表標題 Reaction frequencies of CTTS transition-induced solvated electrons in ionic liquids interacting with low-pressure argon plasmas
3. 学会等名 11th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials / 12th International Conference on Plasma-Nano Technology & Science (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 劉建蒂, 白井直機, 佐々木浩一
2. 発表標題 大気圧プラズマ電気分解による酸化銅ナノ粒子合成の塩素イオンの影響
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 稲垣慶修, 佐々木浩一
2. 発表標題 プラズマが照射されたイオン液体におけるCTTS遷移由来溶媒和電子の反応周波数
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松田浩, 白井直機, 佐々木浩一
2. 発表標題 大気圧プラズマにより誘起された液中短寿命化学種の時間進展
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 菅剛珠, 白井直機, 佐々木浩一
2. 発表標題 液体電極を用いた大気圧直流グロー放電におけるNaの発光と 液滴発生の時間進展の比較
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 濱名優輝, 白井直機, 佐々木浩一
2. 発表標題 誘導結合アルゴンプラズマと相互作用する液体ガリウムからの液滴放出
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐々木浩一, 濱名優輝, 白井直機
2. 発表標題 誘導結合アルゴンプラズマと相互作用する液体ガリウムからの液滴放出特性
3. 学会等名 第35回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 稲垣慶修, 佐々木浩一
2. 発表標題 アルゴン, 酸素, および窒素プラズマが照射されたイオン液体におけるCTTS 遷移 由来溶媒和電子の反応周波数
3. 学会等名 第36回プラズマプロセッシング研究会 / 第31 回プラズマ材料科学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 劉建蒂, 白井直機, 佐々木浩一
2. 発表標題 大気圧プラズマ電気分解による酸化銅合成における溶存酸素の影響
3. 学会等名 第36回プラズマプロセッシング研究会 / 第31 回プラズマ材料科学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 濱名優輝, 白井直機, 佐々木浩一
2. 発表標題 誘導結合アルゴンプラズマと相互作用する液体ガリウムからの液滴放出特性
3. 学会等名 第36回プラズマプロセッシング研究会 / 第31 回プラズマ材料科学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐々木浩一
2. 発表標題 プラズマ・液体相互作用の観察
3. 学会等名 仙台プラズマフォーラム（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 劉建蒂，白井直機，佐々木浩一
2. 発表標題 大気圧プラズマ電気分解による酸化銅ナノ粒子合成における電解液量の影響
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 稲垣慶修，佐々木浩一
2. 発表標題 アルゴンおよび窒素プラズマが照射されたイオン液体における 溶媒和電子の反応周波数および可視・紫外吸収スペクトルの変化
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 濱名優輝，白井直機，佐々木浩一
2. 発表標題 誘導結合アルゴンプラズマと相互作用する液体金属からの液滴放出：ガリウムとスズの比較
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 白井直機, 大和田裕樹, 菅剛珠, 佐々木浩一
2. 発表標題 ルミノール化学発光とプラズマによって誘起されるOHラジカルの相関
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Sasaki and Y. Takahashi
2. 発表標題 Bubble formation in the discharge between planar and needle electrodes via laser ablation-induced cavitation bubble
3. 学会等名 XXXIII International Conference on Phenomena in Ionized Gases (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 K. Sasaki, N. Takada, Y. Hayashi, and M. Goto
2. 発表標題 Production of electrical discharges in acoustic cavitation bubbles
3. 学会等名 70th Gaseous Electronics Conference (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小山寛, 佐々木浩一
2. 発表標題 固体スズ及び液体スズを用いたマグネトロンスパッタリングプラズマの比較
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 菅剛珠, 白井直機, 佐々木浩一
2. 発表標題 液体電極を用いた大気圧直流グロー放電における液面形状と液滴発生との関連性
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐々木浩一
2. 発表標題 気液界面プラズマ計測の現状と課題
3. 学会等名 Plasma Conference 2017 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 細田峻平, 白井直機, 佐々木 浩一
2. 発表標題 CaCl <sub>2</sub> 溶液を陰極とする大気圧気液界面プラズマにおけるCa原子の密度分布
3. 学会等名 Plasma Conference 2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松田浩, 白井直機, 佐々木浩一
2. 発表標題 大気圧気液界面プラズマによって液相に誘起される短寿命ラジカル検出法の検討
3. 学会等名 Plasma Conference 2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 菅剛珠, 白井直機, 佐々木浩一
2. 発表標題 カルシウムイオンを含む液滴と大気中レーザー生成プラズマとの反応により発生するカルシウム原子密度の時間進展
3. 学会等名 Plasma Conference 2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐々木浩一
2. 発表標題 レーザー誘起キャピテーションバブルとそのナノ材料創成における役割
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第38回年次大会(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松田浩, 白井直機, 佐々木浩一
2. 発表標題 大気圧気液界面プラズマにより液相に誘起される短寿命ラジカルのルミノールの化学発光を用いた検出法
3. 学会等名 プラズマ・核融合学会北海道地区研究連絡会第21回研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 菅剛珠, 白井直機, 佐々木浩一
2. 発表標題 Ca <sup>2+</sup> イオンを含む液滴と大気中レーザー生成プラズマとの相互作用によるCa原子の発生プロセス
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 白井直機, 松田浩, 佐々木浩一
2. 発表標題 ルミノール化学発光を利用した液相におけるプラズマ誘起短寿命ラジカルの可視化
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Sasaki and Y. Takahashi
2. 発表標題 Electrical discharge in a laser ablation-induced cavitation bubble
3. 学会等名 4th Conference on Advanced Nanoparticle Generation and Excitation by Lasers in Liquids (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 K. Sasaki and Y. Takahashi
2. 発表標題 Discharge processes in a laser ablation-induced cavitation bubble
3. 学会等名 69th Annual Gaseous Electronics Conference
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 佐々木 浩一
2. 発表標題 プラズマプロセス診断法の現状と課題
3. 学会等名 第77回応用物理学会秋季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 佐々木 浩一, 高橋 裕太
2. 発表標題 液相レーザーアブレーション誘起キャビテーション気泡 - 針電極間放電 における針電極からの気泡の形成
3. 学会等名 第77回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 佐々木 浩一
2. 発表標題 趣旨説明：液相が関与するプラズマ現象の新しさと面白さ
3. 学会等名 第33回プラズマ・核融合学会 年会（招待講演）
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 白井直機
2. 発表標題 液体電極を用いた大気圧グロー放電の界面の評価と今後の課題
3. 学会等名 仙台プラズマフォーラム（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 白井 直機, 鈴木 崇久, 菅 剛珠, 西山 修輔, 佐々木 浩一
2. 発表標題 液体電極を用いた直流駆動大気圧グロー放電の発光と界面挙動の相関
3. 学会等名 第64回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔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	西山 修輔  (Nishiyama Shusuke)  (30333628)	北海道大学・工学研究院・助教   (10101)	
研究 分担者	白井 直機  (Shirai Naoki)  (80552281)	北海道大学・工学研究院・准教授   (10101)	