

水流で包まれたDBDプラズマジェットの特性

山本 明範^{*.1}, 森 瑞樹^{**}, 南 圭亮^{***}, 秋山 秀典^{****}

(2015年12月18日受付; 2016年2月29日受理)

Characteristics of DBD Plasma Jet with Water Curtain

Akinori YAMAMOTO^{*.1}, Mizuki MORI^{**}, Keisuke MINAMI^{***} and Hidenori AKIYAMA^{****}

(Received December 18, 2015; Accepted February 29, 2016)

Non-thermal plasmas in gases at atmospheric pressure have previously been generated using repetitively operated pulsed power generators as a method of producing controllable plasma jets at atmospheric pressure to facilitate a wide range of applications in material modification, medicine, and energy. This paper discusses results of plasma jets using dielectric barrier discharge (DBD) in atmospheric He gas injected into a water curtain formed by flowing water injected from a cylindrical hole. In comparison with spectra of plasma jets to air, those with a water curtain display clear OH spectrum lines of plasma emission.

1. はじめに

プラズマ応用技術は、材料プロセス、表面処理、殺菌、排気ガスの処理、医療機器の滅菌等、幅広い分野の基盤技術として重要性を増してきている¹⁻⁹⁾。大気圧下でパルスパワーによって生成されたプラズマの特徴は、低気圧放電プラズマの荷電粒子密度が 1 cm^3 あたり $10^8 - 10^{13}$ であるのに対し、大気圧バリア放電では $10^{12} - 10^{15}$ と高いこと¹⁾、高密度媒質中であっても非熱平衡状態であること等、従来の低気圧放電プラズマには無い特性を持っている。

プラズマを材料の合成・表面処理に利用する際、熱に敏感な物質を処理する場合があります、低温でも利用できる

非熱平衡プラズマの特性は重要である。さらに、バイオ・医療分野においても非熱平衡プラズマを用いた研究がなされている。処理領域を低気圧にすることなく、大気圧中で非熱平衡プラズマを生成できることは、真空装置やチャンバが不要であるため、装置作製コストの削減、処理時間短縮の面からも利点がある。薬品や殺菌剤を使用せずにプラズマのみで殺菌できるため、農産物を殺菌する研究も行われている¹⁰⁾。

しかし、大気圧中での非熱平衡プラズマは、大気圧中であるため衝突周波数が高いこと、低温であることから生成された活性種の拡散係数が小さく、プラズマ長が約 $3\text{ cm}^{10)}$ と短く利便性が悪い。筆者らはノズルの形状を工夫することにより、プラズマの長尺化を行い、作動ガス流量とプラズマ出口のノズル直径との関係、作動ガス濃度のプラズマ長への影響を明らかにした¹¹⁾。大気圧下では弱電離プラズマとなっており、電子とイオンは多くの中性気体粒子と混在した状態で存在し、衝突及び化学反応で生じた活性種は殺菌等のプロセスの反応過程に関与している¹²⁾。

水道水は現在では蛇口をあけるだけで得られ、手足や農産物に付着している泥や菌類を流し去ることが可能である。プラズマによる殺菌効果と水道水の持つ汚れを流し去る効果を併用すれば、新しい考え方の蛇口の提案となる。本論文では、蛇口に円筒状の水路を作り、円筒状の水を作ると共に、その中にプラズマジェットを入射した。水の前端は円筒のままその直径を小さくしながら最終的には閉じた水流となった。その閉じた水流の中にヘリウムガスを入れると、円筒状水流の長さが長くなった。円筒状水流内にパルスパワーで生成されたDBD (Dielectric Barrier Discharge) 方式ヘリウムプラズマを入射した。

キーワード：パルスパワー、誘電体バリア放電、大気圧プラズマ、発光分光、OH ラジカル

* 株式会社タカギ

(〒802-8540 福岡県北九州市小倉南区石田南 2-4-1) TAKAGI Co., Ltd., Ishida-minami 2-4-1, Kokuraminami-ku, Kitakyushu-City, Fukuoka 802-8540, Japan

** 熊本大学大学院自然科学研究科

(〒860-8555 熊本県熊本市中央区黒髪 2-39-1)

Graduate School of Science and Technology, Kumamoto University, Kurokami 2-39-1, Chuo-ku, Kumamoto-City, Kumamoto, 860-8555, Japan

*** 熊本大学工学部情報電気電子工学科

(〒860-8555 熊本県熊本市中央区黒髪 2-39-1)

Department of Computer Science and Electrical Engineering, Kumamoto University, Kurokami 2-39-1, Chuo-ku, Kumamoto-City, Kumamoto, 860-8555, Japan

**** 熊本大学パルスパワー科学研究所

(〒860-8555 熊本県熊本市中央区黒髪 2-39-1)

Institute of Pulsed Power Science, Kumamoto University, Kurokami 2-39-1, Chuo-ku, Kumamoto-City, Kumamoto, 860-8555, Japan

¹ yamamoto1529@takagi.co.jp

OH ラジカルは酸化力が高く、オゾンでは分解できない難分解物質も分解するが、寿命が短い¹³⁾。本方式により、プラズマの分光計測から、OH ラジカルを処理対象付近で生成できた。

2. 実験装置の構成

図1に実験装置と構成を示す。大気圧誘電体バリア放電装置は、高電圧極である直径0.2 mmのタングステンワイヤと、外径14 mm内径10 mmの亚克力管、亚克力管外周を包むアース極としての幅15 mmの銅板で構成している。亚克力管出口には、ヘリウムプラズマ出口ノズルと、流水を供給するノズルを設置している。パルス電源には最大0.1 J出力が可能な、磁気パルス圧縮方式パルス電源 (MPC: Magnetic Pulsed Compression, 末松電子製作所 MPC1300S) を用いた。ヘリウムプラズマは亚克力管内部のタングステンワイヤと、外部の銅板間で生成され、プラズマ出口ノズルから大気中或いは水流のカーテン内に放出される。ヘリウムプラズマの出口は直径4.5 mmの円形、流水の出口流路は外径42 mm及び内径40 mmの円筒形である。ヘリウムガス及び水の流量は、いずれも5 L/minとした。

3. 実験方法

プラズマ発光の概観を、デジタル一眼レフカメラ NIKON-D40 を使用し、F値5.6、露光時間30 s、ISO1600として撮影を行った。

分光測定には浜松ホトニクス株式会社のマルチチャンネル分光器 (PMA-12) を用いた。放電電圧の設定は、パルス電源のVproを8、繰り返し数を1000 pps (pulses per second) で固定し放電を行った。Vproを8に設定した場合、出力電圧は約11 kVとなる。分光装置の光ファイバー先端部分は、ノズルの中心から水平方向に

3 cm 離し、ノズルの出口から垂直方向に1 cm, 2 cm, 3 cm, 4 cm, 5 cm, 6 cmの6点に設置し、測定を行った。水流カーテンがある場合は、その外側に置かれる。分光装置の測定条件は、露光時間19 ms、アベレーシング回数10回とした。

4. 実験結果と考察

4.1 水膜形状について

ヘリウムガスの有無による水流の形状を図2に示す。図2(a)に示すように、水のみ場合は水流が閉じるまでの距離は約8 cmとなった。図2(b)-(e)はヘリウムガスを併用した場合を示す。図2(b)(c)ではヘリウムにより水膜が伸びているが、(d)で水膜が千切れ、(e)ではその後再び水膜が形成され伸展していることを示している。水膜は図2(b)-(e)のサイクルを繰り返しながら、水膜下部よりヘリウムガスを外部に放出していると考えられる。

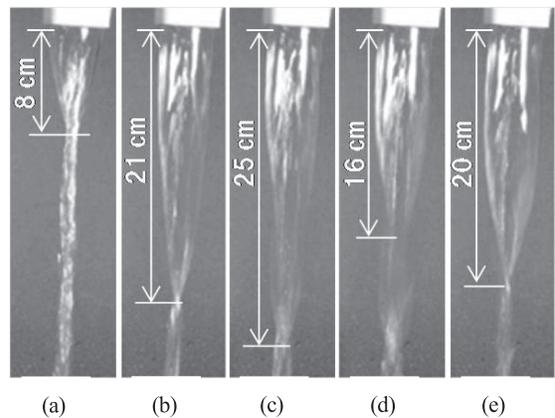


図2 水流形状：(a) 水流のみ (b)-(e) 水流とヘリウム併用時の水膜の周期的な変化
Fig.2 Shape of water curtain: (a) Water only, (b)-(e) Water with He gas: Periodic changes of water curtain.

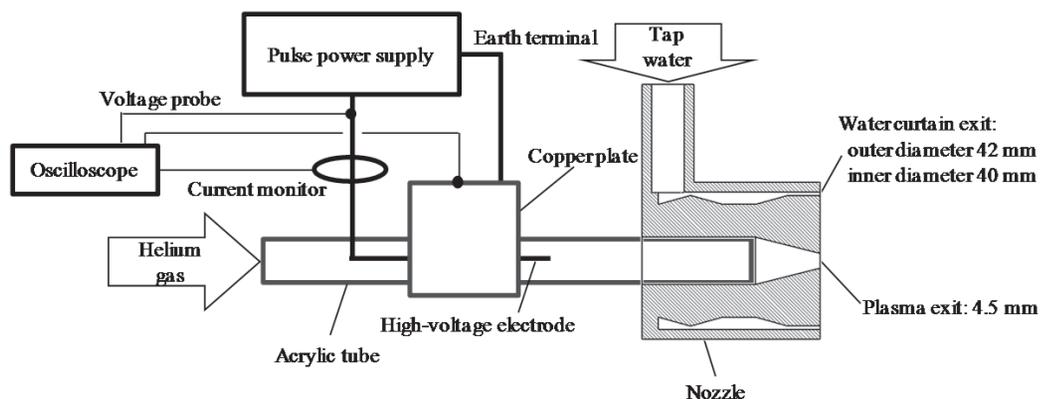


図1 実験装置構成
Fig.1 Experimental apparatus.

4.2 プラズマ発光の様子

プラズマ発光の様子を図3に示す。(a)はヘリウムプラズマのみ、(b)はヘリウムプラズマと水流を併用した場合の写真である。(a)のヘリウムプラズマでは、明るい赤紫色であるのに対し、(b)の水流とプラズマでは暗い朱色に変化している。水膜の厚みはおよそ1 mmであり、水の吸収波長が赤外(1000 nm以上)であることを考慮すると、水膜にプラズマ発光が吸収されたとは考えにくい。水流によるプラズマ光の散乱も考えられるが、主にヘリウムプラズマと周囲水分との反応により、色が変わったと考えられる。また、(b)では中心部から右に、水膜に向かって伸びた発光が確認できる。これは、プラズマ出口が水流で包まれることで水膜内部のヘリウム濃度が上昇し、水膜に向かって放電したと考えられる¹¹⁾。

プラズマを生成した際の電流電圧波形を図4に示す。電流は高電圧側で測定を行った。放電電圧及び最大電流

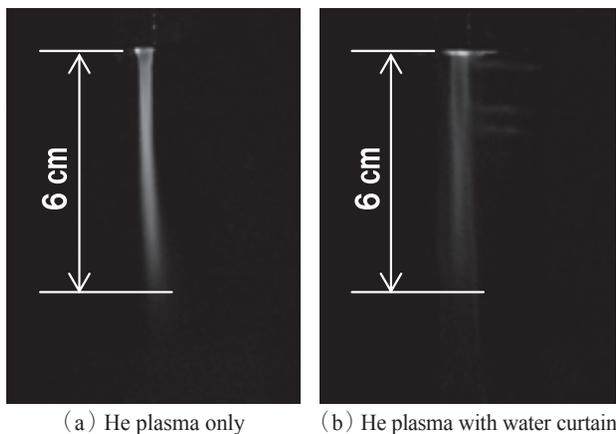


図3 プラズマ発光の様子 (露光 30秒)

Fig.3 Photograph of plasma emission (exposure time:30 s)

(a) He plasma only, (b) He plasma with water curtain.

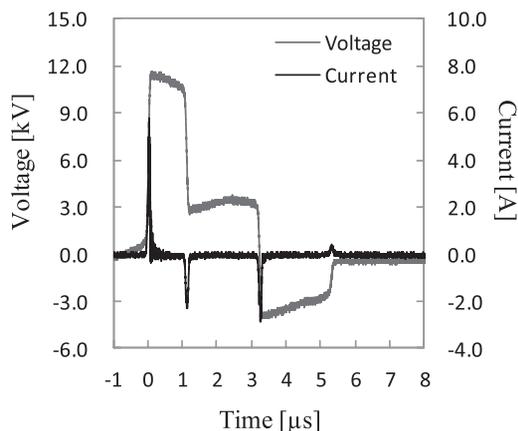


図4 電流電圧波形 (ヘリウムガスのみ使用時)

Fig.4 Typical voltage waveform applied to plasma (He gas only).

は、水なしで 11.7 kV, 5.80 A, 水併用で 12.0 kV, 5.64 A であり殆ど変わらなかった。これは、本実験装置の構成では放電部と水流ノズルが独立しているため、水の導体あるいは誘電体としての影響が小さいことによると考えられる。

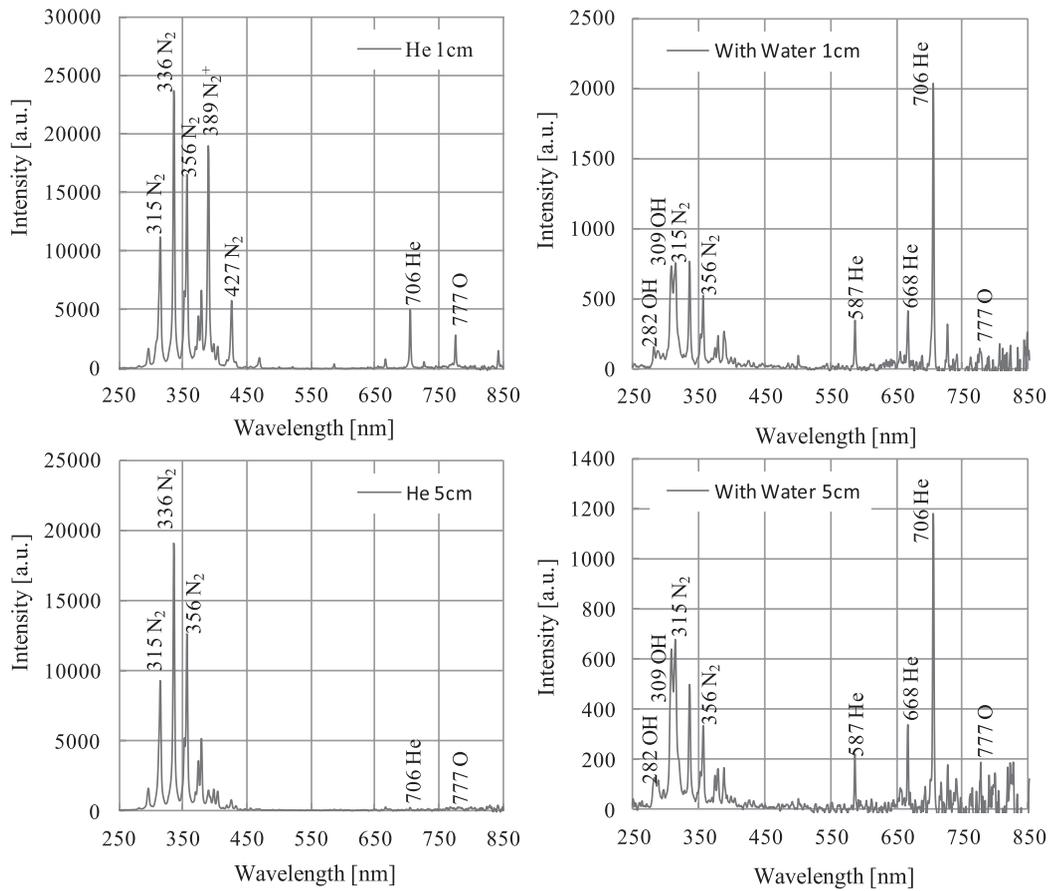
4.3 発光スペクトル測定

図5(a)にヘリウムプラズマからの発光スペクトルを、図5(b)に水流と併用した時のヘリウムプラズマからの発光スペクトルを示す。それぞれ1 cm, 5 cmでの結果を記載した。図5に示すようにプラズマ周辺の水分の有無により、全体的な発光強度は、およそ10分の1に低下している事が確認できる。これは周囲水分とヘリウムプラズマの反応によるものだと考えられる¹⁴⁾。

図5(a)に示すように、大気中でのヘリウムプラズマの発光スペクトルは、315 nm, 336 nm, 356 nm, 380 nmに強く表れている窒素のスペクトル(窒素第二正帯)、706 nmのヘリウムのスペクトル、777 nmの酸素のスペクトルが観測された。ヘリウムプラズマが大気中の空気と反応する事で、窒素、酸素が励起され、それぞれのスペクトルを示したものと考えられる。283 nm, 290 nm, 309 nmにピークを持つOHラジカルの波長は、窒素スペクトルに対して非常に少ないか、窒素スペクトルに埋もれたと考えられ、ピーク形状は観察されなかった。

一方、図5(b)に示すように、水流で周囲を包んだプラズマの発光スペクトルは、ヘリウムの706 nmのスペクトルを最大値として観測し、315 nm, 336 nm, 356 nmの窒素のスペクトル及び777 nmの酸素のスペクトルは相対的に低くなった。OHラジカルの波長である309 nmの発光も観察された。相対強度は(336 nm / 706 nm)で20から0.5へ減少し、(777 nm / 706 nm)で0.1から0.01へ減少した。空気はヘリウムガスに押し出され、空気が水流内でなくなることも考えられるが、周期的な水膜の破れの際に外部空気の流入もあり、水流内では空気の濃度が小さくなっていると考えられる。窒素の混入が1 ppmでもある場合、窒素のラジカルが高く検出される¹⁵⁾点を考慮すれば、窒素のスペクトルが水流中でも観測されるのは妥当な結果と考えられる。

OHラジカルについて詳細に観測するために、図5の270 nmから350 nmの範囲を拡大したスペクトラムを図6に示す。通常、OHラジカルは励起状態から基底状態に戻る過程で282 nm, 289 nm, 309 nm付近の波長を放出することが知られている¹⁶⁾。図6(a)では296 nmおよび315 nmの窒素スペクトルのピークが観察されるが、OHラジカルのスペクトルは観察されなかった。図6(b)では282 nm, 289 nm及び309 nmのスペクトルは明瞭な



(a) He plasma (b) He plasma with water curtain
 図5 発光スペクトルの比較：(a) ヘリウムプラズマの発光スペクトル，(b) 水流併用時の発光スペクトル
 Fig.5. Comparison of the emission spectrum：(a) He plasma, (b) He plasma with water curtain.

ピークを持ち、OH ラジカルが生成されていると考えられる。このピークは6 cm先の観測でも確認された。プラズマにより生成された電子は、水分子との反応を経てOH ラジカルを生成することが知られており¹⁷⁾、プラズマを包む水流がOH ラジカルのクリアな観測に寄与したものと考えられる。

図7に発光分析位置毎の窒素(336 nm)、ヘリウム(706 nm)、OH ラジカル(309 nm)の発光強度を示す。なお、図7(a)のヘリウムプラズマでは、315 nmの窒素スペクトル線の裾野が309 nmのOH ラジカルに影響しているため、309 nmのデータは使用していない。図7(a)では3 cm先で窒素スペクトルがピークを持ち、図7(b)では2 cm先でヘリウムのスペクトルがピークを持っている。本プラズマ装置では出口から2-3 cm離れた位置で最大の発光強度を持つことが分かった。また、図7(b)の水併用プラズマではヘリウムの強度が窒素を上回り、OH ラジカルも窒素と同程度の発光強度を有している事が分かる。空間変化としてはヘリウムガスのみでも、水を併用しても、徐々に下がっていく傾向が見られた。

5. まとめ

プラズマによる殺菌効果と水道水の持つ汚れを流し去る効果を併用した蛇口を製作することを最終目標として、水流カーテンを作製し、その中にヘリウムプラズマを入射した。

最初に、水流カーテン内にヘリウムガスを入射し、水流の形状を確認した。水流中にヘリウムガスを入射することにより、水膜が伸びていき、その後水膜が千切れ、その後再び水膜が形成され伸展することを繰り返していた。その後、水流内ヘリウムプラズマの発光を確認した。水流がなく大気圧空気中へのプラズマジェットはまっすぐであるが、水流に包まれたプラズマジェットは放電が水流に向かって枝分かれしていることが分かった。これは、水流内部のヘリウム濃度が高濃度に維持された結果だと考えられる。水流のないプラズマと水流内のプラズマの発光分光分析を行った結果、水流のないプラズマ中では見られなかったOH ラジカルのはっきりとしたピークを、水流内プラズマでは確認することができた。OH ラジカルがプラズマ出口から6 cm先でも確認されたこ

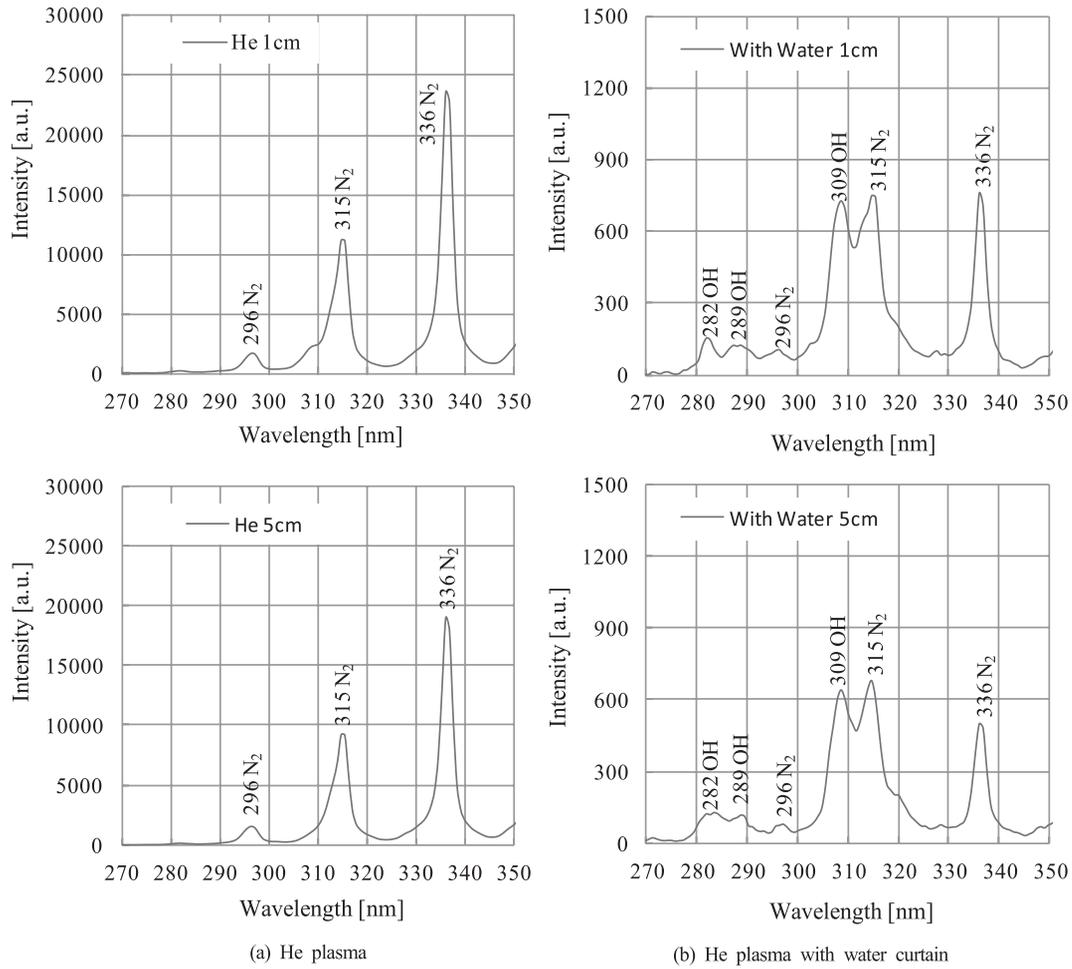


図6 270-350 nm の発光スペクトルの比較：(a) ヘリウムプラズマの発光スペクトル，(b) 水流併用時の発光スペクトル
 Fig.6 Comparison of emission spectrum at 270-350 nm : (a) He plasma, (b) He plasma with water curtain.

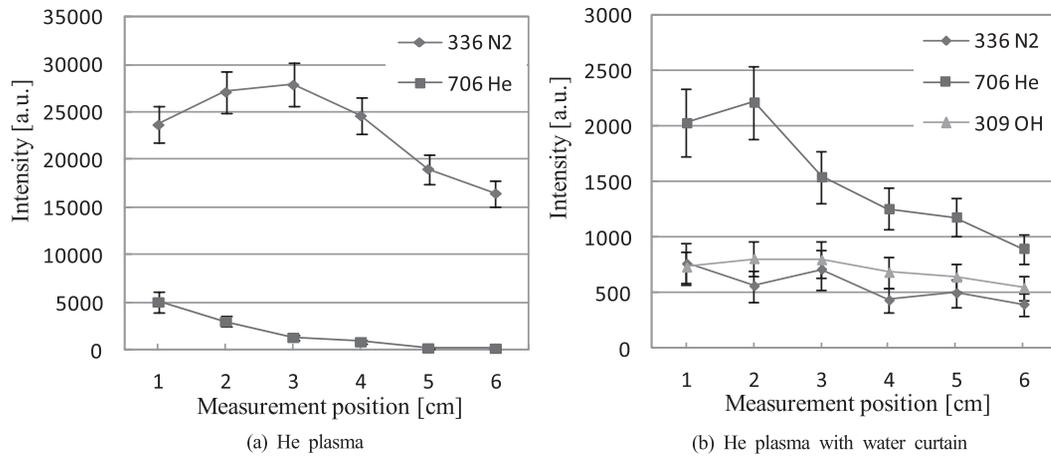


図7 測定位置ごとの発光強度の変化：(a) ヘリウムプラズマの空間変化，(b) 水流併用時の空間変化
 Fig.7 Changes in the emission intensity of each measurement position : (a) He plasma, (b) He plasma with water curtain.

とは、汎用的な殺菌・滅菌などへの応用分野に使用できる可能性があることを示すものと考えられる。

今後は、OH ラジカル生成量の定量的な評価や、プラズマと水流を併用した時の殺菌効果を調べる予定である。

参考文献

- 1) A. Schutze, J. Y. Jeong, S. E. Babayan, J. Park, G. S. Swlwyn and R. F. Hicks: The Atmospheric-Pressure Plasma Jet: A Review and Comparison to Other Plasma Sources. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **26** [6] (1998) 1685-1694
- 2) C. Tendero, C. Tixier, P. Tristant, J. Desmaison and P. Leprince: Atmospheric pressure plasmas: A review. *Spectrochimica Acta Part B*, **61** [1] (2006) 2-30
- 3) E. Stoffels, A. J. Flikweert, W. W. Stoffels and G. M. W. Kroesen: Plasma needle: a non-destructive atmospheric plasma source for fine surface treatment of (bio) materials. *Plasma Sources Sci. Technol.*, **11** [4] (2002) 383-388
- 4) J. H. Choi, I. Han, H. K. Baik, M. H. Lee, D. Han, J. Park, I. Lee, K. M. Song and Y. S. Lim: Analysis of sterilization effect by pulsed dielectric barrier discharge. *Journal of Electrostatics*, **64** (2006) 17-22
- 5) E. Stoffels, I. E. Kieft, R. E. J. Sladek, L. J. M. van den Bedem, E. P. van der Laan and M. Steinbuch: Plasma needle for in vivo medical treatment: recent developments and perspectives. *Plasma Sources Sci. Technol.*, **15** [4] (2006) 169
- 6) F. Iza, G. J. Kim, S. M. Lee, J. K. Lee, J. L. Walsh, Y. T. Zhang and M. G. Kong: Microplasmas: sources, particle kinetics, and biomedical applications. *Plasma Process. Polym.*, **5** [4] (2008) 322-344
- 7) G. Fridman, G. Friedman, A. Gutsol, A. B. Shekhter, V. N. Vasilets and A. Fridman: Applied plasma medicine. *Plasma Process. Polym.*, **5** [6] (2008) 503-533
- 8) M. Laroussi: Low-temperature plasmas for medicine?. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **37** [6] (2009) 714-725
- 9) L. B'ardos and H. Bar'ankov'a: Cold atmospheric plasma: sources, processes, and applications. *Thin Solid Films*, **518** [23] (2010) 6705-6713
- 10) 井関紗千子, 太田貴之, 伊藤昌文, 加納浩之, 東島康裕, 堀 勝: 非平衡大気圧プラズマを用いた柑橘ミドリカビ胞子殺菌手法 殺菌要因の検討. 電子情報通信学会技術研究報告. 有機エレクトロニクス, **109** [365] (2010) 21-26
- 11) A. Yamamoto, Y. Kawano, M. Nakai, T. Nakagawa, T. Sakugawa, H. Hosseini and H. Akiyama: Investigation of gas flow dependence of plasma jet produced by pulsed power. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **43** [10] 3451-3455
- 12) 浜口智志: プラズマ医療におけるプラズマ生体相互作用. プラズマ・核融合学会誌, **87** [10] (2011) 696-703
- 13) 北野勝久, 井川 聡, 谷 篤史, 大島朋子: プラズマジェットを用いた殺菌メカニズムと消毒応用 - 低 pH 法を用いた効果的殺菌技術の物理・化学・分子生物学 -. 静電気学会誌, **37** [3] (2013) 112-116
- 14) 高村紀充, 王 斗艶, 浪平隆男, 秋山秀典: 大気圧ミストプラズマジェットの生成とその諸特性. 静電気学会, **38** [1] (2014) 22-27
- 15) T. Martens, A. Bogaerts, W.J.M. Brok and J.V. Dijk: The dominant role of impurities in the composition of high pressure noble gas plasmas. *Appl. Phys. Lett.*, **92** (2008) 041504
- 16) 佐藤岳彦, 古居 武: 大気圧水蒸気プラズマ流の OH ラジカル生成輸送機構と滅菌特性. 環境工学総合シンポジウム講演論文集, **19** (2009) 281-282
- 17) 村上 泉, 長壁正樹, 池田勝則, 西浦正樹, 小田明紀, 菅原広剛, 浜口智志: 1. はじめに - 原子分子データベースの概要とプラズマ研究への応用 -. プラズマ・核融合学会誌, **88** [1] (2012) 35-47