

ミニ流路プレートを用いた気液界面プラズマ反応装置

吉木 宏之^{*.1}, 遠田 明広^{**}, 中嶋 智樹^{***}, 佐藤 岳彦^{***}

(2025年6月12日受付; 2025年7月20日受理)

Gas-Liquid Interfacial Plasma Reactor Using Minichannel Plate

Hiroyuki YOSHIKI^{*.1}, Akihiro ENTA^{**}, Tomoki NAKAJIMA^{***} and Takehiko SATO^{***}

(Received June 12, 2025; Accepted July 20, 2025)

Two-phase laminar flows of He gas and pure water were formed in a rectangular minichannel with a channel cross section of $1 \times 1 \text{ mm}^2$ and a length of 20 mm using a T-junction type gas-liquid mixer. Subsequently, pulsed He discharge was generated between Pt wire electrodes of $\phi 0.25 \text{ mm}$ inserted into the minichannel. The treated water contained H_2O_2 of 43 ppm, implying OH radicals production. Decolorization of an indigo carmine solution was demonstrated using the prototyped gas-liquid interfacial plasma reactor.

1. はじめに

近年, 気液界面プラズマ生成による有機物の分解¹⁾, ナノ物質の合成²⁾, 医療応用³⁾の研究が行われている。プラズマで生成する活性種や水和電子は短寿命でありプラズマ化学反応は気液界面で進行する。そのため気液界面と容積の比 (S/V 比) を大きくすることが反応効率向上に有効である。この観点から水膜や水滴に大気圧プラズマを曝露する方法が提案されている^{4,5)}。他方, 物質抽出や熱交換の分野ではマイクロ/ミニ流路気液二相流を用いた研究が報告されている⁶⁾。マイクロ流路内の気液二相は流路形状および流速によりスラグ流, 環状流, 層状流, 波状流等の様相を呈することが知られているが, 水力直径 1 mm 程度のミニ流路では重力の影響で気液層状流の形成が期待される。本研究では水力直径 1 mm のミニ流路に He ガスと液体の気液層状流を形成した後, 流路内に挿入した Pt 線にパルス高電圧を印加してプラズマ生成する気液界面プラズマ反応装置を試作した。本装置をインジゴカルミン水溶液の脱色処理に応用したので報告する。

2. 実験装置および実験方法

試作した T 型合流矩形ミニ流路プレートと実験装置の構成を図 1 に示す。ミニ流路プレートは透明アクリル板 (70 mm × 50 mm × 5 mm) にマシニングセンター (DMG MORI, DuraVertical 5060) で矩形溝を加工した後, 平坦なアクリル板を貼り合わせて作製した。気液導入路と二相合流部の断面は 1 mm × 1 mm で, 液体はシリンジポンプで水平方向から導入し, He ガス (99.997%) はマスフローコントローラーで流量制御して垂直上方から T 型合流部へ導入する。二相合流部の長さは 20 mm, He ガス導入口と排出口に $\phi 0.25 \text{ mm}$ の Pt 線を挿入して電極とする。二相合流部を通過後の液体はリザーバー (20 mm × 20 mm × 2 mm) を経由して下方から回収する。Pt 線を誘導コイル (NaRiKa NIC-01) に接続しパルス放電プラズマを生成する⁷⁾。ピーク電圧は 15 kV, パルス繰り返し周波数は 50 Hz, パルス半値幅は 40 μs , また積算電力計 (SHW3A) で測定した放電時の消費電力は約 2 W である。本研究では, 被処理液をイオン交換精製水およびインジゴカルミン水溶液 (濃度: 10 mg/L, 20 mL) とした。

ミニ流路内の気液二相流の時間変化および放電プラズマ

キーワード: ミニ流路プレート, 二相流, 気液界面プラズマ

* 仙台高等専門学校

(〒981-1239 宮城県名取市愛島塩手字野田山 48 番地)
National Institute of Technology, Sendai College, 48 Nodayama, Medeshima-Shiote, Natori, Miyagi 981-1239, Japan

** 鶴岡工業高等専門学校

(〒997-8511 山形県鶴岡市井岡字沢田 104)
National Institute of Technology, Tsuruoka College, 104 Sawada, Inooka, Tsuruoka, Yamagata 997-8511, Japan

*** 東北大学

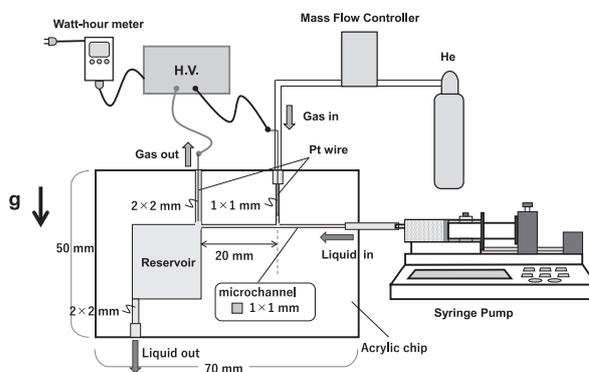
(〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1)
Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577, Japan¹ hyoshiki@sendai-nct.ac.jpDOI: <https://doi.org/10.34342/iesj.2025.49.5.186>

図 1 T 型合流矩形ミニ流路プレートと実験装置概略
Fig.1 Schematic diagram of a rectangular minichannel plate with a T-junction type mixer and experimental setup.

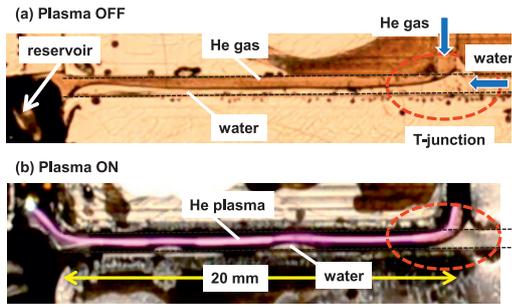


図2 ミニ流路内の (a) 気液二相流と (b) パルス放電 He プラズマ生成

Fig.2 (a) Gas-liquid 2-phase flow and (b) pulsed discharge He plasma generated in a minichannel.

発生時の様子をシュリーレン用レンズ (シグマ光機 凸レンズ $\phi 50$, $f500$) を用いて動画撮影 (露光時間: 16.7 ms) した。また、処理後の精製水中の過酸化水素および亜硝酸/硝酸の濃度をデジタルパックテスト (共立理化学 DPM-MT) で測定し、インジゴカルミン水溶液の吸光度を紫外可視分光光度計 (Shimadzu UVmini-1240) で測定した。放電流路通過後の水温を熱電対 (IK-700) で測定した。

3. 実験結果および考察

川原他のマイクロ流路気液二相流の報告によると、液体の慣性力と表面張力の比を表すウエーバ数 ($We = \rho V^2 D_h / \sigma$) が $8 \times 10^{-3} \sim 1 \times 10^1$ の範囲にあるとき、液体の粘性力と表面張力の比を表すキャピラリー数 ($Ca = \eta V / \sigma$) が大きい ($Ca > 10^2$) とスラグ流、小さい ($Ca < 10^2$) と環状流や層状流が形成される⁸⁾。ここで、 ρ : 流体の密度、 V : 流速、 D_h : 水力直径、 σ : 表面張力、 η : 液体の粘度である。そこで、精製水の流量を $950 \mu\text{L}/\text{min}$ ($We = 4 \times 10^{-3}$, $Ca = 2 \times 10^4$)、He 流量を $50 \sim 200 \text{ mL}/\text{min}$ とした場合、安定した気液層状流が形成された。しかし、精製水流量を $1900 \mu\text{L}/\text{min}$ とすると気液界面が上下に脈動した。これは高速流のせん断力により気液界面が波立つためである。精製水流量 $950 \mu\text{L}/\text{min}$ 、He 流量 $200 \text{ mL}/\text{min}$ の場合の放電 OFF および ON 時の二相流の様子を図 2 (a), (b) にそれぞれ示す。放電 OFF 時は流路下部に薄い液膜 (約 0.4 mm)、上部に気相が形成されているが、放電 ON 時には気相の膨張と液膜厚の減少が確認できる。これはプラズマ生成時のガス温度および分圧の上昇のため、液膜は流路壁面に薄い環状で形成されると思われる。放電 ON 時も液体がリザーバーへ流れ込むことを目視で確認した。プラズマ処理水の溶存過酸化水素は 43 ppm 、溶存亜硝酸および硝酸はそれぞれ 0.56 ppm 、 3.0 ppm であった。過酸化水素の存在は He プラズマによる水分子の解離によるヒドロキシルラジカル・OH の生成、亜硝酸/硝酸は配管からの空気の混入を示唆している。

図 3 に処理前後のインジゴカルミン水溶液の吸収スペクト

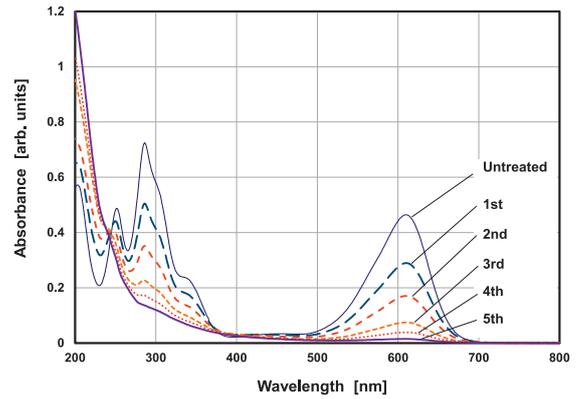


図3 インジゴカルミン水溶液の紫外可視スペクトル
Fig.3 UV-vis spectra of indigo carmine solution.

ルを示す。処理後の溶液を回収して 5 回まで繰り返し処理を行った。1 回の処理後の水量減少率は平均値で 2.3% であった。また、放電流路通過後の水温上昇は約 1.6% であった。処理回数とともに 610 nm 、 286 nm 、 252 nm のピークが減少してインジゴカルミンが分解されたことが分かる。溶存過酸化水素の存在から・OH による分解が示唆された。

4. まとめ

水力直径 1 mm のミニ流路に気液層状流を形成して気体をプラズマ化する気液界面プラズマ反応装置をアクリルプレート上に試作した。試作プレートを用いたインジゴカルミン水溶液の He プラズマ処理の評価を行ったところ、・OH によるインジゴカルミン分解を示唆する結果を得た。本研究は JSPS 科研費 (22K03591) および東北大学流体科学研究所の公募共同研究 (J24I056) の助成を受けて実施された。

参考文献

- 1) A. Yamatake, H. Katayama, K. Yasuoka and S. Ishii: Water purification by atmospheric dc/pulsed plasma inside bubbles in water. *Int. J. Plasma Environ. Sci. Technol.*, **1** (2007) 91
- 2) M. A. Bratescu, S.-P. Cho, O. Takai and N. Saito: Size-controlled gold nanoparticles synthesized in solution plasma. *J. Phys. Chem.*, **C115** (2011) 24569
- 3) H. Tanaka *et al.*: Science and applications of plasma-activated solutions. *Plasma Medicine*, **14** (2024) 67
- 4) 金澤誠司, 大川友和, 林 浩之, 赤峰修一, 市来龍大: 円筒状リアクタによる気液界面放電プラズマの OH ラジカル生成特性. 平成 25 年度電気学会・材料・共通部門大会, 13-B-p-5 (2013) 74
- 5) 南谷靖史, 東山禎夫: 水滴を利用したパルスパワー放電による水処理. *静電気学会誌*, **27** (2003) 123
- 6) 日本機械学会編: 気液二相流技術ハンドブック, p.523, コロナ社 (2006)
- 7) H. Yoshiki, T. Sasaki and T. Mitsui: Inner-wall modification of commercial polymeric microfluidic chip using pulsed He/O₂ and Ar/O₂ plasma. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **57** (2018) 126202
- 8) A. Kawahara *et al.*: Characteristics of two-phase flows in rectangular micro channel with a T-junction type gas-liquid mixer. *Heat Transfer Engineering*, **32** (2011) 585