



## 解説

# 大気圧プラズマが誘起する気体・液体中の熱流動場及び放電進展機構に関する研究の進展

## Recent Progress in Research on Discharge Mechanisms and Plasma Flow in Gas and Liquid Phases of Plasma Induced by Atmospheric Pressure Plasma

佐藤 岳彦

SATO Takehiko

東北大学流体科学研究所

(原稿受付：2017年9月27日)

近年、気体と液体の界面に発生するプラズマを利用した環境浄化、材料プロセス、医療への応用が注目されている。また、気液界面における物理化学現象やプラズマが誘起する流れに関する研究も精力的に進められている。

本解説では、針電極-水面間の放電により気中に形成される熱流動場や、それに伴い水中に流れが誘起される現象について紹介する。また、水中放電における、正極性電圧印加時の1次ストリーマの開始・進展過程の可視化解析について紹介する。具体的には、1次ストリーマ形成前に電極先端に気泡群が形成され、電荷の蓄積と電界集中が起きる現象や、1次ストリーマが連続的ではなく、パルス状電流と同期して断続的に進展する現象を解説する。

### Keywords:

plasma-induced flow, flow field, primary streamer, inception, propagation

## 1. はじめに

### 1.1 背景

近年、気体と液体の界面に発生するプラズマを利用した環境浄化、材料プロセス、医療応用などの研究が広がりを見せている。これらの応用の多くは、気液界面における化学反応や液面・液中に輸送された反応性化学種や荷電粒子による化学反応を利用している。

プラズマは発生時に流れを誘起することが知られており、生成された反応性化学種等は、供給ガスの流れがなくてもプラズマが誘起する流れで輸送できる。プラズマが誘起する流れは、プラズマアクチュエータとして境界層の制御や騒音抑制への応用が進められているだけでなく、バイオ・医療の分野においても有効に利用できることが報告されている[1]。さらに、医療分野の利用においては液体に覆われている生体表面に照射することが多く、病原性微生物の殺滅においても水回りや水中で利用することが多いため、気液界面におけるプラズマ現象や水中への化学輸送について理解を深める必要がある。

### 1.2 気液プラズマの熱流動場

気液界面あるいは水中における放電方法としては、気中で放電したガスを水面に照射する方法、気中に設置した電極と水面との間で放電させる方法、水中で直接放電させる方法、水中に導入した気泡内で放電させる方法の4種類が代表的である[2-8]。例えば、針電極と水面との間に発生

する放電について、Bruggemanら[9-12]は、グロー放電からスパーク放電への遷移が液体の導電率に依存することや、印加電圧を変化させた場合の諸特性についても詳細な研究を行っている。Kawamotoら[13]は、印加電圧がコロナ開始電圧以下のときは、静電的な力によって水面が数 $\mu\text{m}$ 程度隆起するのに対して、コロナ開始電圧以上ではイオン風により水面が数百 $\mu\text{m}$ 窪むことを報告している。

このように、気液界面における放電現象は多岐に渡る研究が進められ、その重要性は今後ますます高まると予想される。そこで本解説では、針電極と水面との間に放電を発生させた場合の、気中および液中に誘起される熱流動場の実験ならびに数値解析による可視化について紹介する。

### 1.3 水中放電の放電機構

変圧器油や液体炭化水素などの誘電体液体中での絶縁破壊現象や、ストリーマと呼ばれる絶縁前駆現象は長年にわたり研究されてきた[14]。近年では、水中放電で発生する、紫外線、高エネルギー電子、衝撃波、マイクロバブル、オゾン、OHラジカルなどを利用した水処理や医療への応用が精力的に進められている[15]。放電方法は、水中に設置した電極にパルス状の電圧や高周波電圧を印加して放電させる方法、水中にガスを導入し形成した気泡内で放電させる方法などが知られている。水中放電の形成過程における絶縁破壊のメカニズムは、電子論的破壊理論と気泡的破壊理論が提案されている[16]。電子論的破壊理論では、高

電界が形成されることで液中の分子が解離し、一部イオン化することで導電性チャンネルが形成される。気泡の破壊理論では、既存の気泡内で放電が形成され、生成された電荷による影響で、絶縁破壊に至ると考えられている[17,18]。気泡理論は、絶縁破壊に至る時間が液中の圧力に依存するなど[19]、多くの実験結果に支持されている。最近では、電極先端近傍の高電界による電歪効果により、低密度領域が形成されるとした理論が提案されているものの[20]、未だ結論には至っていない。

水中に置かれた針-平板電極に正極性電圧を印加することにより生成される正極性ストリーマは、1次ストリーマと2次ストリーマに分類される。一般に観察されているのは、2次ストリーマで、数個の分岐を有するフィラメント状構造によって特徴づけられ、進展速度は約25~30 km/sと高速で発光を伴うことが知られている[21-24]。2次ストリーマは低導電率で断続的に進展するが、水の導電率が数百  $\mu\text{S}/\text{cm}$  以上の導電率で消失することが報告されている。進展速度は水の導電率とは無関係であるが[25-27]、導電率の上昇と共に大きくなる[25]。一方、1次ストリーマの報告はわずかであるが、進展速度が100 m/sから数km/sの範囲で、樹状または傘状の構造であることが報告されている[21,27,28]。しかしながら、1次ストリーマの開始や進展過程は未だ十分に解明されているとはいえない状況であった。そこで本解説では、著者らが取り組んだ正ストリーマの開始・進展過程の解明に向けた研究成果について紹介する。

## 2. 実験方法

### 2.1 針-水面電極の放電実験装置と計測方法

図1に実験装置の概略を示す。直径0.3 mmの白金線電極先端を、幅20 mm、高さ8 mm、光路長10 mmのガラスセルに満たした純水の水面から1 mmの位置に設置し、 $V = +7.5 \text{ kV}_{\text{op}}$ 、 $f = 5 \text{ kHz}$ 、デューティ比50%の正および負の方形波を印加し放電を発生させた。ガラスセルは、アルミ接地電極上に設置した。シュリーレン法による気中の電極先端部の熱流動場の可視化は、光源、コリメータ、ナイフエッジによる光学系と、高速度ビデオカメラ(SHIMADZU, HyperVision HPV-2A)で行い、撮影時のフレームレートは125 kfpsとした。放電により発生する電極周辺の気流の可

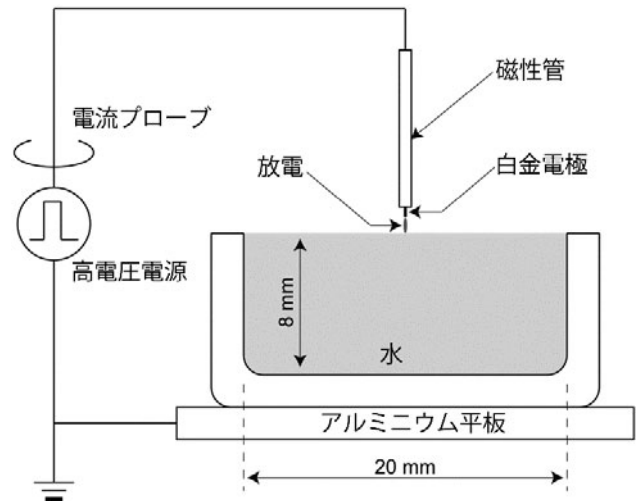


図1 針-水面電極の放電発生装置[31].

視化は、スモークマシン(STAGE EVOLUTION, SM400)で発生させた煙をトレーサとして、レーザーシート光源(カトウ光研, G50)の散乱光を撮影した。撮影時のフレームレートは60 fps、露光時間は4 msとした。水中の可視化はPIV法を用い、水中にトレーサとしてテクポリマー(積水化成成品工業, SSX-105)を分散し、レーザーシート光源によりトレーサの散乱光を、高速度カメラ(KEYENCE, VW-5000)により撮影した。フレームレートを60 fps、露光時間を100 msとした。トレーサの材質は架橋ポリメタクリル酸メチルであり、平均粒子系は5  $\mu\text{m}$ 、比重は1.20の単分散粒子である。得られた画像の解析には2次元流体解析ソフト(ディテクト, Dipp-flow)を使用した。放電電流は、電流プローブ(PEASON, Model 6585)を用いた。放電電力は、Q-Vリサーチ法により算出した。本実験では、容量1  $\mu\text{F}$ のコンデンサを使用し、 $V_c$ は電圧プローブ(LeCroy, PP007-WS)を用いて計測した[29-31]。

### 2.2 水中ストリーマの発生および可視化計測方法

図2に示すように、針-ワイヤ電極を石英ガラスセル内に設置した。直径0.5 mmの白金製針状電極の先端半径は40  $\mu\text{m}$ 、ワイヤ電極は針電極先端より6 mm下方に設定した。セルには1  $\mu\text{S}/\text{cm}$ 未満の超純水を満たした。針電極には、図2に示す電気回路を用いて、10  $\mu\text{s}$ 幅の単発パルス正電圧を最大25.0 kVまで印加した。遅延ジェネレータ

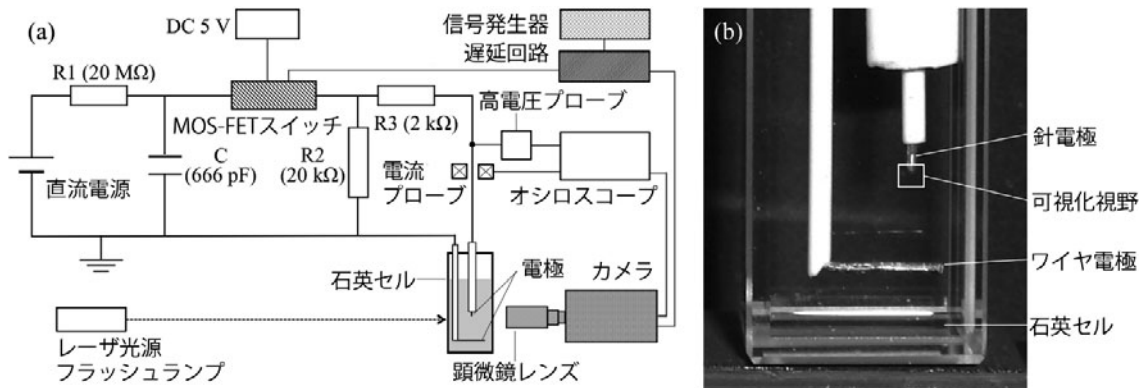


図2 水中ストリーマ発生および可視化計測装置(a)と電極周辺部の写真(b)[32].

(Stanford Research, DG645) から, MOS-FET スイッチ (BEHLKE, HTS 651-03-LC), 高速度カメラ, バックライトに同期信号を送り, タイミングを制御した. 電圧・電流は, 高電圧プローブ (LeCroy, PPE 20kV), 電流プローブ (Bergoz, FCT-016-1.25WB), 発光はフォトダイオード (浜松ホトニクス, C5658) を用いてオシロスコープ (LeCroy, WaveSurfer 104MXs) で計測した. 本計測システムでは, 50Ω 同軸ケーブルの長さ, カメラの遅延時間, 電流プローブの立上り時間を考慮し, 1 ns 以内で同期計測ができるように設定した[32, 33]. 撮影は, 最小露出時間 3 ns のイメージインテンシファイアユニット (II) (浜松ホトニクス, C9546-04), デジタルカメラ (Nikon, D4), 最大 200 Mfps の高速度カメラ (NAC Image Technology, ULTRA Neo), ストリークカメラ (浜松ホトニクス, C10910) を用いた. 顕微鏡レンズは長ワーキングディスタンスレンズ (キーエンス, VHZ-50L) を利用した. また, 背景光は 532 nm のレーザーを利用した. これらの機器を図 3 に示すような組み合わせにより撮影した[32, 33].

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 針電極-水面間の放電による熱流動場の可視化解析結果と考察

図 4 は, 電圧印加時の針電極と水面間のシュリーレン写真である. 白金電極の先端から水面へ移動する三日月形の濃淡領域が存在することが確認できる. この濃淡は, 約 100 μs 毎に発生しており, 放電の発生を示す電流パルスが現れる間隔に等しい. また, 電流パルスの半値幅が 20 ns 程度でありストリーマの生成時間は十分に短いと考えられる. このことから, この濃淡は, 放電により加熱された中性ガスの流れだと考えられる. 生成されたイオンが電極と水面間の電界により駆動され中性粒子と衝突し, イオン-中性粒子の間で運動量交換が行われたために, この流れが誘起されたと考えられる. このとき, 発生した電荷が水面上に蓄積すると, 水面の電位が上昇し, 針電極との間の電界が弱まるため放電は止まる. その後, 印加電圧がゼロになると水面の電位が大きくなるため, 逆方向の電界形成に

より放電が再び発生するが, 電荷の極性も逆になるため, 誘起される流れの方向は変化しない. しかしながら, 極性が変わると流れの方向が逆になるケースも報告されており, 電極の構造に依存する可能性がある. なお, 発生する

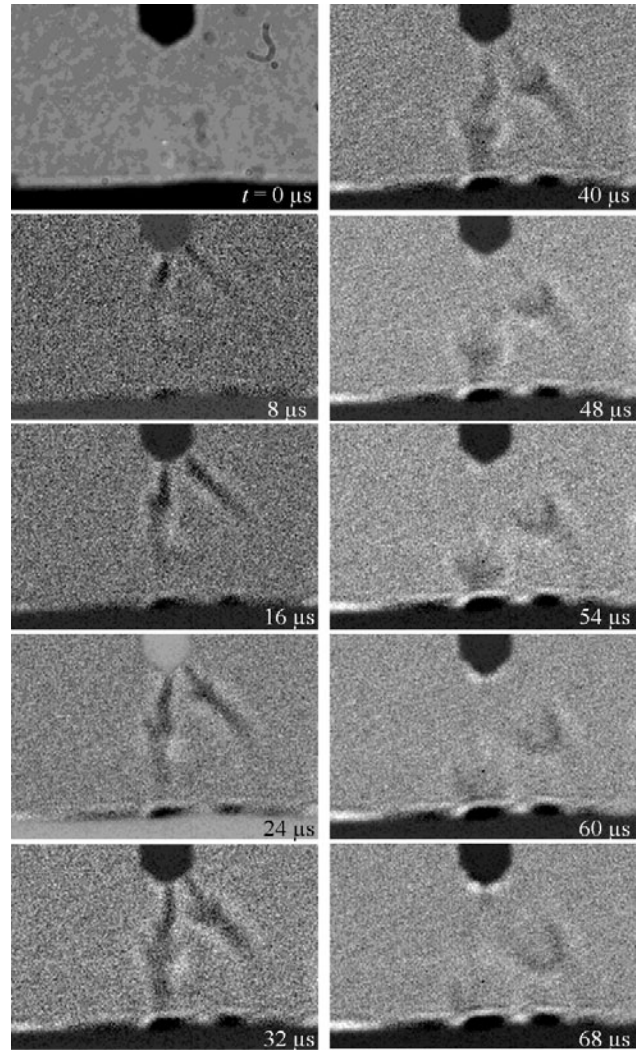


図 4 シュリーレン法で可視化した針電極と, 水面間に誘起される流れの連続画像[29].

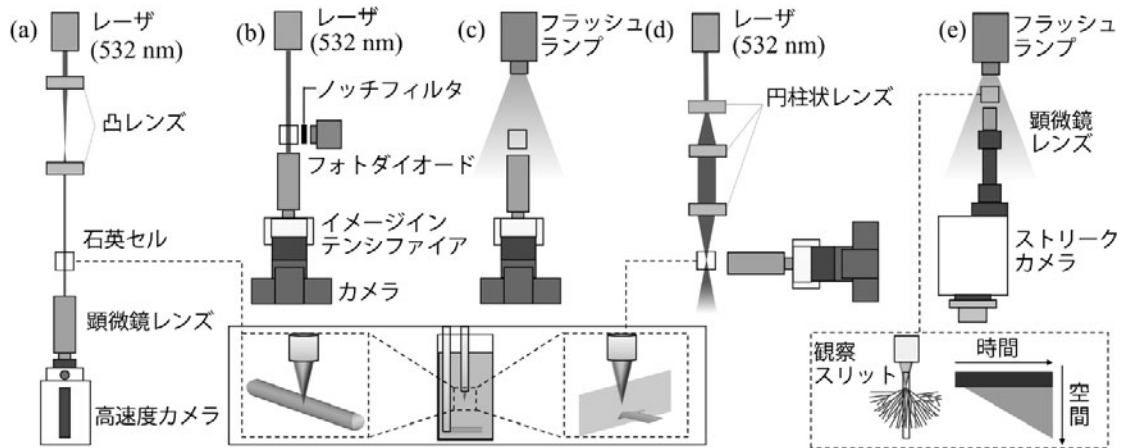


図 3 ストリーマ開始・進展過程可視化のための光学系. 超高速度カメラによるシャドウグラフ画像撮影(a), イメージインテンシファイアによるシャドウグラフ画像撮影(b), フラッシュランプを用いた画像撮影(c), レーザーシートを利用した画像撮影(d), ストリークカメラによるシャドウグラフ画像撮影(e) [33].

ため気流の流速は約 15 m/s であり、一般のプラズマアクチュエータで報告されている誘起速度と概ね同じオーダーである[29-31]。

図 5 は、放電時に発生する水面上の気流の可視化画像である。電極近傍の渦状の流れは、図 4 で示したプラズマで誘起された断続的な流れが、水面上で放電点から外側に拡がることで形成される[29-31]。

図 6 は、水中に誘起された流れの速度ベクトル分布である。放電が発生すると、水と放電との接触点を起点として、水面上で中心から外側に流れが誘起される。流動する領域は、放電開始直後は接触点近傍のみであるが、放電時間の経過とともに次第に壁面方向へと拡がっていき、放電開始から約 5 秒後にはガラスセル内の全域にわたって渦状の流れが形成される。流速については、壁面近傍では数 mm/s であるのに対し、水面近傍では上向きに最大で 3 cm/s 程度である[29-31]。

ここで、水中の流動場が気中の流れだけで誘起されるかどうかについて、数値解析により検証した。計算モデルの仮定は次の通りである。(1) 気体は理想気体とする。(2) 熱流動場は 2 次元軸対称とする。(3) 流れは非定常、層流とする。(4) 電界の影響は考慮しない。(5) 気液界面は自由界面とする。基礎方程式は、質量保存則、運動量保存則、エネルギー保存則、状態方程式からなる[34]。断続的に誘起される高温の流れを模擬するために、100  $\mu$ s 毎に流速 15 m/s、温度 2000 K の流れが、半値幅 5  $\mu$ s のパルス状に電極下端面から水面へと向かって発生するよう、ガス流の入口条件を設定した。温度については窒素分子の第二正帯の

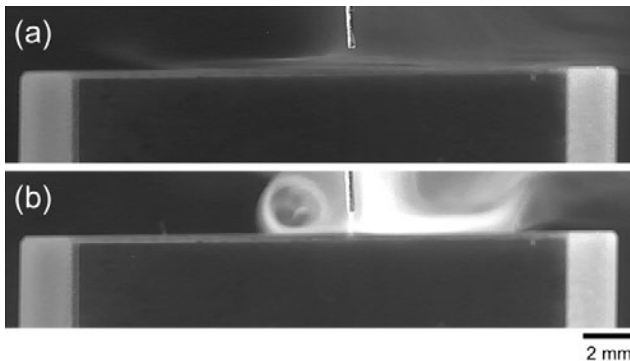


図 5 針電極周辺に誘起される渦状の流れ。放電を行わない場合 (a) と、放電を行う場合 (b) [31]。

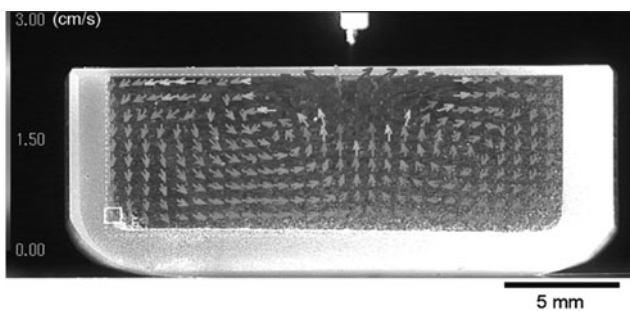


図 6 PIV 法を利用して可視化した水中に誘起される流れの速度ベクトル分布[31]。

回転温度の実験値から解析した結果を利用した。計算は、ESI-Group の熱流体解析ソフトウェア CFD-ACE+ を用いて行った[34]。数値解析で得られた気液中に形成される流動場の速度ベクトル分布を図 7 に示す。気中の流れについて、電極先端部から水面に向けて流れが吹き出る条件を与えているため、水面に到達した後に、半径方向に広がる。さらに、電極近傍に渦状の流れが生じていることも確認できた。また、水中の流れについても、ガス流が水面に衝突する位置を起点に、概ね渦状の流動場が形成された。また、流速は、気流と水面との接触点近傍で最大となり、約 2 cm/s であった。それに対し、それ以外の場所では数 mm/s となった。これらは、実験解析により得られた速度ベクトルの分布と、定性的に一致している[26-28]。

### 3.2 水中正ストリーマの開始・進展過程の可視化計測結果

#### 3.2.1 ストリーマ開始までの過程

図 8 (a) に、1 次ストリーマが発生するまでに電極先端に気泡群が成長している様子を示す。図 8 (b) は、典型的な印加電圧と放電電流波形であり、撮影のタイミングを図中に示した。図 8 (c) は、1 次ストリーマ開始進展時の放電電流波形 (図 8 (b) の 1900-2100 ns の拡大波形) であり、パルス状の放電電流が観察される時間領域で撮影した写真 (図 8 (a) (2000 ns)) にはストリーマの発生が示されている。印加電圧の開始からの時間  $T=300$  ns の時に電極表面に数  $\mu$ m の微細気泡が発生し、400 ns から複数箇所に微細な気泡が形成され成長する。これらの気泡は、水中を流れる電流が電極先端部に集中することによるジュール加熱により生成されると考えられる。複数の気泡は気泡群を形成し、下方に成長するが、1400 ns 以降には表面形状が部分的に突起を形成するようになる。最終的に、突起状に変形した気泡群の先端からストリーマが発生する。部分的に気泡が伸張するのは、気泡群内部で微弱な放電が起き、放電の先端が伸張するためと考えられる。微弱な放電は、気泡群成長期に微弱な発光が観察されることより推察できる。ここで、電極先端に形成される気泡群の形状は、凹凸が多い

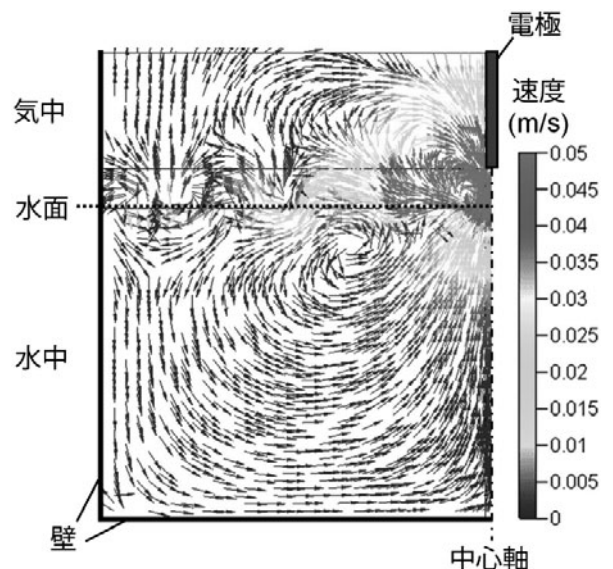


図 7 気液中に形成される流動場の速度ベクトル分布。

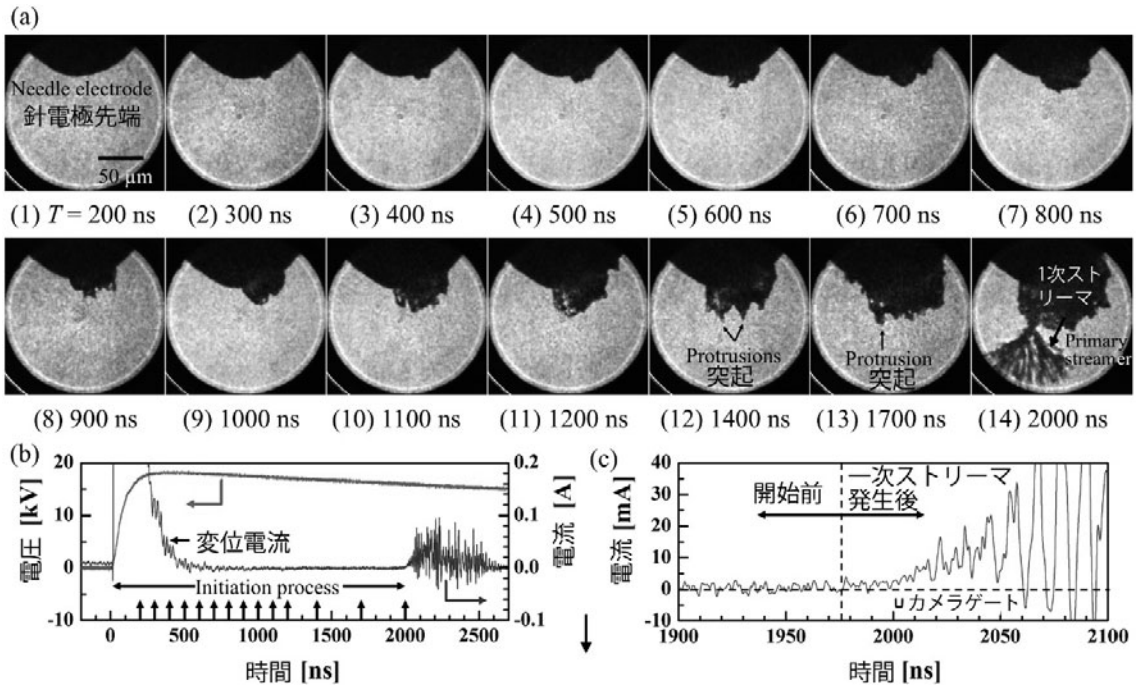


図8 正ストリーマ発生前に電極先端に形成される気泡群と突起状気泡形成の様子(a), 代表的な印加電圧と放電電流の波形と写真撮影時間(b), 1次ストリーマ開始進展時の放電電流波形 ((b)の拡大)(c) [33].

ことから、単一気泡ではなく独立した微細気泡の集合であることが示唆されている。また、図9に示すように、レーザーシートを入射し撮影された電極先端部の気泡は、表面に多数の凹凸を有し、微小気泡の集合体からなる気泡群であることを示している[32, 33, 35].

### 3.2.2 ストリーマの進展過程

図10(a)に、シャドウグラフ法による1次ストリーマが進展する様子の連続写真を示す。図10(b)に印加電圧と放電電流波形、図10(c)に撮影した時間帯を拡大した電流波形と、撮影した写真の撮影タイミングを写真の番号に合わせて示した。図10(a)の時間は、電圧印加開始時間から740 ns経過した時刻を  $t=0$  nsとして記載している。 $t=10$  nsに突起状気泡が形成され、直後の  $t=20$  nsにストリーマが進展を始める。ストリーマは半球状の樹枝形状を形成しながら進展する。進展を始めると、100 mA未満の小さな繰り返しパルス電流が観察された。このときの進展速度は、2.5 km/sであった[32]。連続写真からは、1次ストリーマの進展は連続的に見える。一方、ストリークカメラを用いてさらに時間分解能を高めて観察した1次ストリーマの進展の様子を図11に示す。図11(a)のシャドウグラフ画像には、ストリーマが一定の速度で進展している様子が示されている。図11(b)の自発光の画像では、発光が断続的に発生し、発光毎にストリーマが進展している様子が示されている。より時間解像度を高めた図11(c)の自発光画像からは、放電電流の増加と発光のタイミングが同期していることが明らかになった。これらの結果は、1次ストリーマが従来考えられてきたような連続的な進展ではなく、パルス電流が発生する毎に断続的に進展していることを示唆している[33].

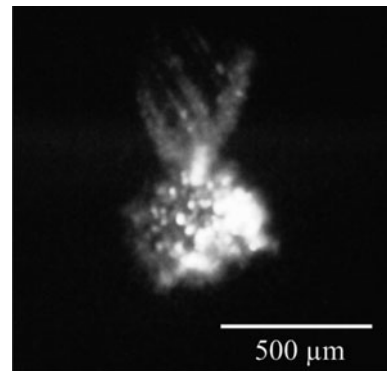


図9 レーザーシートを利用して撮影した電極先端に形成される気泡群の画像[33].

## 4. まとめ

### 4.1 針電極-水面間の放電による熱流動場

水面上に形成するプラズマ流の流動場の実験および数値解析を行った。針電極-水面間に直接放電させることで、電極先端から水面に向かう断続的な気流が誘起され、気中に渦状の流れ場を形成する。この流れが水面上に拡がることで、水面との運動量交換により、水中に流れが形成されることを明らかにした[29-31].

### 4.2 水中1次ストリーマの開始・進展過程

一連の研究により、水中1次ストリーマの開始・進展過程を明らかにした。図12に、水中1次ストリーマの開始・進展過程の模式図を示す。水中に設置した針電極先端に、正極性電圧を100 ns程度の電圧上昇時間で印加すると、電極近傍において電流が集中することで加熱が起こり温度場の揺らぎが起こり始める。その後、電極先端に微細気泡が時間と共に複数箇所生成され、成長し、気泡群を形成する。気泡群の内部では微細な放電が発生し、さらに気泡群が成

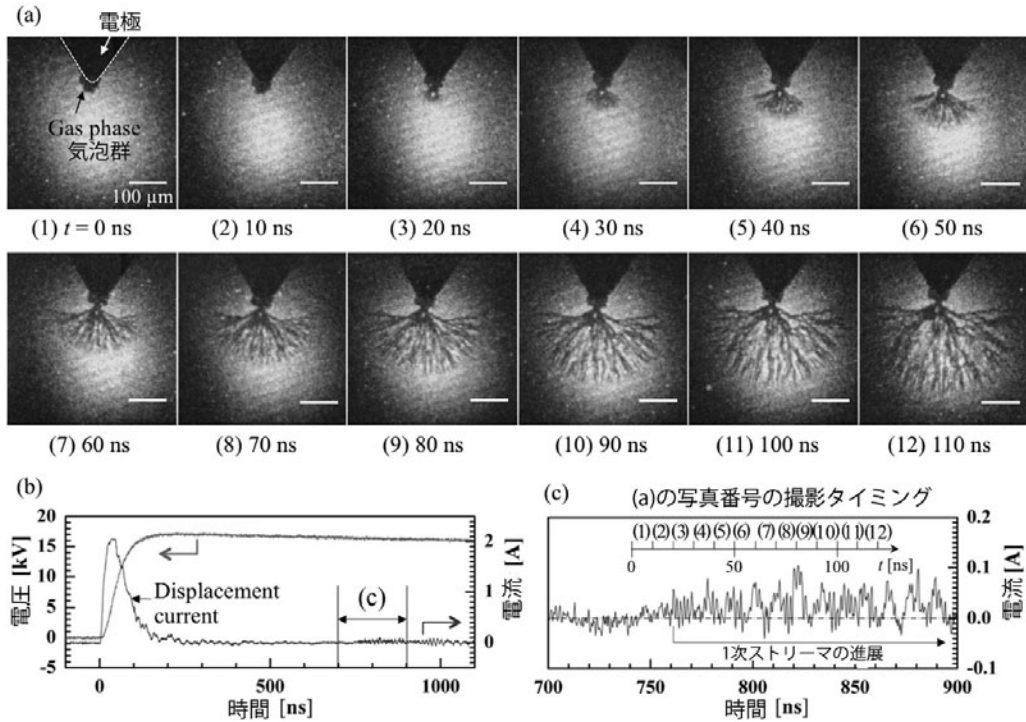


図10 1次ストリーマの進展過程の連続画像(a), 印加電圧と放電電流波形(b), 1次ストリーマ進展時の放電電流波形と(a)の各画像の撮影時間(c) [32].

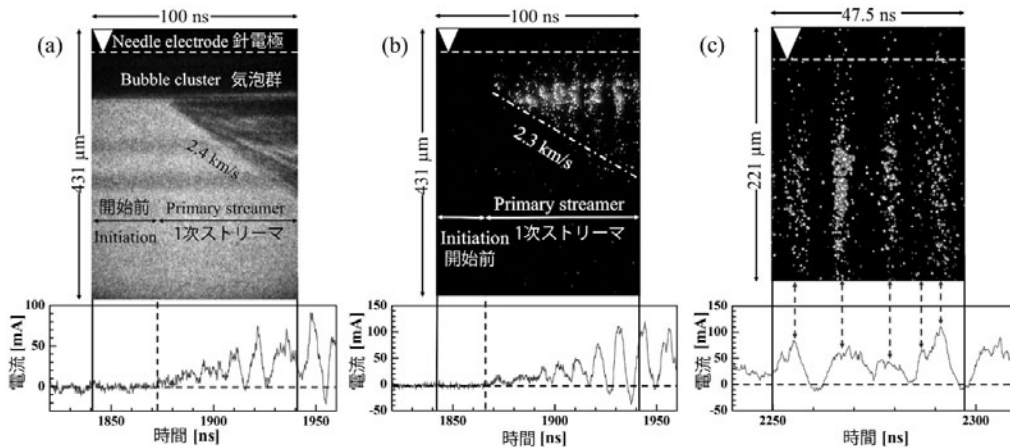


図11 ストリークカメラ画像・シャドウグラフ画像と放電波形(a), 自発光の画像と放電波形(b), 高時間分解能で撮影した自発光と放電波形(c) [33].

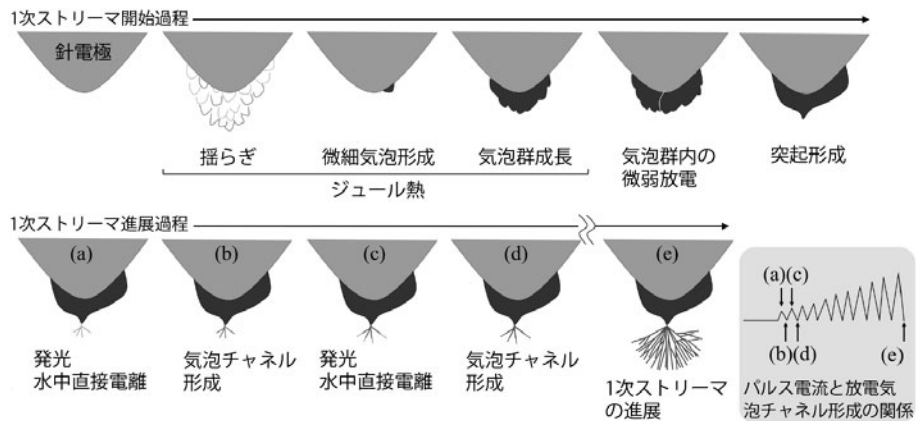


図12 水中正極性1次ストリーマの開始・進展過程のモデル図[33].

長する。気泡群がある程度の大きさになり、十分に電荷を気泡内に蓄積すると、気泡群先端に突起状気泡が形成される。さらなる電界集中が起こることで、放電開始電界の閾値を超え、ストリーマが発生する。ストリーマは、パルス状放電電流が発生する毎に進展し、半球状の樹枝状気泡チャンネルを形成する。水中ストリーマの開始・進展機構の詳細は文献[32, 33, 35-37]を参照されたい。

## 謝 辞

本解説で紹介した研究は、Gregor E Morfill, 清水鉄司(マックスプランク地球圏外物理研究所(ドイツ)), 岩淵豊, 岸本直也, 藤田英理(東北大・院生), 金澤誠司(大分大), 大谷清伸, 小宮敦樹, 金子俊郎, 中嶋智樹(東北大)(敬称略)との共同研究の成果であり, 共同研究者に謝意を表します。所属は研究当時の所属を記載しています。

## 参 考 文 献

- [1] T. Sato *et al.*, *Plasma Process. Polym.* **5**, 606 (2008).
- [2] M. Sato, T. Ohgiyama and J.S. Clements, *IEEE Trans. Ind. Appl.* **32**, 106 (1996).
- [3] H. Yuchen *et al.*, *Plasma Sci. Technol.* **18**, 924 (2016).
- [4] A. Yamatake *et al.*, *Int. J. Plasma Environmental Science Technology* **1**, 91 (2007).
- [5] K.Y. Shin and B. R. Locke, *Plasma Chem. Plasma Process.* **30**, 1 (2010).
- [6] T. Shirafuji *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **53**, 03DG04 (2014).
- [7] M. Laroussi *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **12**, 53 (2003).
- [8] F. Tochikubo *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **53**, 126201 (2014).
- [9] P. Bruggeman *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **17**, 025012 (2008).
- [10] P. Bruggeman *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **18**, 045023 (2009).
- [11] P. Bruggeman *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40**, 4779 (2007).
- [12] P. Bruggeman *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41**, 215201 (2008).
- [13] H. Kawamoto and S. Umezu, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38**, 887 (2005).
- [14] H. Akiyama, *IEEE Trans. Electr. Insul.* **7**, 646 (2000).
- [15] P. Bruggeman and C. Leys, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42**, 053001 (2009).
- [16] 安岡康一 他: *J. Plasma Fusion Res.* **84**, 666 (2008). (in Japanese)
- [17] H. Akiyama, *IEEE Trans. Electr. Insul.* **7**, 646 (2000).
- [18] P. Bruggeman and C. Leys, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42**, 053001 (2009).
- [19] R. P. Joshi *et al.*, *J. Appl. Phys.* **96**, 5129 (2004).
- [20] Y. Seepersad *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48**, 424012 (2015).
- [21] T. Zhu *et al.*, *J. Appl. Phys.* **104**, 113302 (2008).
- [22] A. L. Kupershtokh and D. A. Medvedev, *Tech. Phys. Lett.* **32**, 634 (2006).
- [23] A. Starikovskiy *et al.*, *Plasma Sources Sci., Technol.* **20**, 024003 (2011).
- [24] W. An *et al.*, *J. Appl. Phys.* **101**, 053302 (2007).
- [25] S. Kanazawa *et al.*, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **36**, 922 (2008).
- [26] J. Nieto-Salazar *et al.*, in *Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena*, p.542 (2003).
- [27] Y. Nakao *et al.*, *Trans. Inst. Electr. Eng. Jpn., Part A* **97**, 521 (1977) (in Japanese).
- [28] J. Qian *et al.*, *J. Appl. Phys.* **97**, 113304 (2005).
- [29] 佐藤岳彦: 豊田理研研究報告 **65**, 61 (2012).
- [30] T. Shimizu *et al.*, *New J. Phys.* **13**, 053025 (2011).
- [31] T. Shimizu *et al.*, *J. Photopolym. Sci. Tec.* **24**, 421 (2011).
- [32] H. Fujita *et al.*, *J. Appl. Phys.* **113**, 113304 (2013).
- [33] H. Fujita *et al.*, *J. Appl. Phys.* **116**, 213301 (2014).
- [34] ESI GROUP, *CFD-ACE+ V2009.4 Modules Manual Part 2*, (2009).
- [35] 藤田英理 他: 静電気学会誌 **39**, 21 (2015).
- [36] H. Fujita *et al.*, *EPL* **105**, 15003 (2014).
- [37] H. Fujita *et al.*, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **42**, 2398 (2014).



さとう たけひこ  
佐藤 岳彦

東北大学流体科学研究所教授。1995年東北大学大学院工学研究科機械工学第二専攻修了・博士(工学)。1995~1998年松下電工(株), 1998年より東北大学助手, 助教授, 准教授を経て2011年より現職。2005~2006年マックスプランク地球圏外物理研究所(ドイツ)客員研究員, 2009年スイス連邦工科大学ローザンヌ校客員教授。大気圧プラズマの反応流動場, 大気圧プラズマ流と生体の相互作用, 水中放電の進展機構に関する研究に従事。山を散策するのが楽しみ。