



解説

大気圧 DC グロー放電により誘起されるプラズマ-液体間の界面反応

Plasma-Liquid Interaction Induced by Atmospheric-Pressure DC Glow Discharge

白井直機

SHIRAI Naoki

北海道大学大学院工学研究院

(原稿受付：2021年3月30日)

大気圧プラズマによって誘起される気液界面の反応について、特に液体を電極とした直流駆動のグロー放電生成時に見られる液に含まれる金属イオンの原子発光，ならびに発光の自己組織化現象についての実験的事実について解説する．液体を陰極とした放電の液滴の放出には，水面近傍に発生する電界と発生するアルカリ金属と水との反応に誘発される爆発現象に起因している可能性がある．液体を陽極とした放電時に見られる発光の自己組織化現象に関しては酸素ガス等の電気的負性ガスの存在が重要である．

Keywords:

atmospheric pressure plasma, liquid electrode, plasma-liquid interaction, droplet ejection, self-organization

1. はじめに

大気圧下で生成するプラズマの研究はこの10年程で飛躍的に増え，生成方式の簡便さから研究者人口の増加にも貢献している[1-3]．大気圧下でプラズマを生成できることから水等の液体との相互作用が注目され，医療や農業分野へのプラズマ応用が実用に近い段階となっている[4,5]．さらにこのプラズマ液体相互作用において昨今では，プラズマを直接照射するのではなく，プラズマを処理した液体を利用した殺菌等の報告もなされている．その処理水の成分を調べていく過程で薬品だけで同等の物質が作成可能で，プラズマが必ずしも必要ないといった報告もなされ[6-8]，プラズマ液体相互作用の輝かしい未来を信じてきた研究者の立場からすれば，パンドラの箱をあけてしまった結果ともいえる．しかし一方でプラズマと液体が接した界面近傍での反応は，プラズマ独自の特性をもつ反応場であり，例えば水和電子や短寿命ラジカル，活性化学種等々の界面近傍での反応プロセスは未だに十分理解されたとは言えない状況にある．

本報では，特にこのプラズマ液体相互作用において，著者がこれまでに行ってきた液体を直流放電プラズマの電極として利用した場合に特徴的に観測された現象について紹介する．この方式は直流駆動であるため，極性により水面に正イオンのみ，或いは電子のみ照射が可能で特性を調べやすく，また液中に電流が流れることも特徴である．最初に液体を陰極とした際，液に含まれる金属イオンが気相部に輸送されて金属原子発光として観測される現象があるが，その要因である水面からの液滴放出について述べる．次に液体を陽極として利用した際に水面上で発光の自己組織化現象がみられる実験結果について現時点で明らかと

なっている事象について紹介する．なお実験結果について完全に物理が解明されたわけではなく，今現在も関連する研究報告がなされており，今後結果の解釈については新しい考察がなされる可能性があることを断っておく．

2. 液体を電極とした大気圧プラズマ生成装置

放電プラズマ生成装置は非常にシンプルな構造である．大気圧空气中で電極間に直流電圧を印可して放電プラズマを生成するが，一方の電極が金属，もう一方の電極が液体となっている．著者はこれまで液体を電極として利用することから液体電極放電と呼んできたが，海外での報告では後述する液体陰極放電の場合，ELCAD (Electrolyte Cathode Atmospheric Glow Discharge)[9-11]，SCGD (Solution Cathode Glow Discharge)[12,13]と呼ばれたりしている．また同様の構造で主に液相の反応に着目した研究は古くからなされており，最も古い論文では1800年代に報告された論文や1950年代にも報告されている[14-16]．日本国内でも液体電極プラズマという名称で上記の研究よりもプラズマのサイズは微小で電流も1-2桁低い動作範囲で超小型の分析装置という形で商品化にまで成功している研究も報告されている[17,18]．

大気圧下で安定にプラズマを生成する方法は，誘電体バリア放電や高速パルス電源を利用することがもっとも一般的であるが，直流駆動でも制限抵抗で電流の急激な増加を抑制しながらプラズマのサイズを1mm以下と小さくしたり[19,20]，ヘリウム等の希ガス流を電極間に導入したりすることで[21]，安定な放電を生成することが可能である．制限抵抗を利用することは効率の観点からはよくないが安定動作においては非常に重要であり，また液体電極を利用

することで液体の抵抗成分が効いて結果的に放電を安定化させる効果もある。著者が利用した液体を電極とした放電装置を図1に示す。ガス供給用のステンレス製の微細ノズル電極に、電流制限抵抗20–100 k Ω を介して最大出力電圧が5 kVの直流電源（松定プレジジョン製：HAR-5P120）を接続している。液体を陰極とした放電時は、内径0.5 mmのステンレス鋼ノズル電極（注射針電極）を用いる。液体を陽極とした場合には、電流増加時に金属ノズル電極が過熱による損耗を防ぐため太さ6 mmの真鍮製電極を用い、その中心部に直径0.5 mmの穴が開いている。金属電極の穴からヘリウム等の希ガスを流出させる。希ガスなしでも動作は可能であるが、ガス流に沿ってプラズマを生成でき、広い動作範囲で安定に生成可能となる。また放電周囲の雰囲気をも簡易的に変化させるため、希ガス流の周囲にさらにシールドガスとして窒素や酸素を流せるようにした。液体電極には必要に応じて様々な液体が利用可能であるが、今回は主としてNaCl電解質水溶液を用い、その濃度を0.1–1%で変化させた。詳細な実験条件については文献を参考にされたい[22–27]。

3. 液体陰極放電時の界面からの液滴放出

液体を陰極とした際の放電について述べる。液体を陰極とした際の大気圧グロー放電の報告として1990年代にハンガリーの研究者がELCADという手法でICP発光分析法よりも安価に液中に含まれる金属イオンの分析に利用する方法を最初に報告している[9–11]。この際、液体陰極は液体

を下部から上部の水面に流し、水面の面積はできるだけ細くすることで負グロー領域が広がりやすく電流密度をあげることによって異常グロー放電の特性をもたせやすい構造としているが、本質的な構造は水面を電極とした実験と変わらない。また液体を酸性にすることと電流の増加が金属原子の発光を得ることに重要とされている。2000年代に大気圧プラズマ、マイクロプラズマの研究報告が数多くなされ、この液体陰極放電の発光メカニズムについても様々な報告がなされているが[28–35]、完全なメカニズム解明には至っていない。

図2に著者が得たNaCl水溶液1%を陰極とした際の直流グロー放電の写真を示す。この時電極間距離は1.5 mmである。放電電流が20 mAを超えると液体陰極付近の放電下部に黄色いNaの原子発光が見られる。NaCl濃度が下がるとNaの発光は弱くなり、極性を反転させた液体を陽極とした際にはこのような金属原子の発光は見られない。液体を陰極としたときのみこのような金属原子の発光が見られるが、液中でCation（正イオン）として存在する金属イオンがプラズマ気液界面の正の電位障壁を越えてプラズマに輸送されるためには、液滴として輸送されると考えるのが妥当である。図3は放電時の液滴発生の様子をレーザー散乱によって可視化したもので、赤い部分が液滴の存在する領域である。水道水陰極の場合と液体陽極放電の場合、ほとんど液滴は発生しない（図3(a), (e)）。放電電流の増加とともに液滴の発生も増加傾向にあり、金属原子発光と液滴の発生には強い相関がある。また液滴の量はNaClの

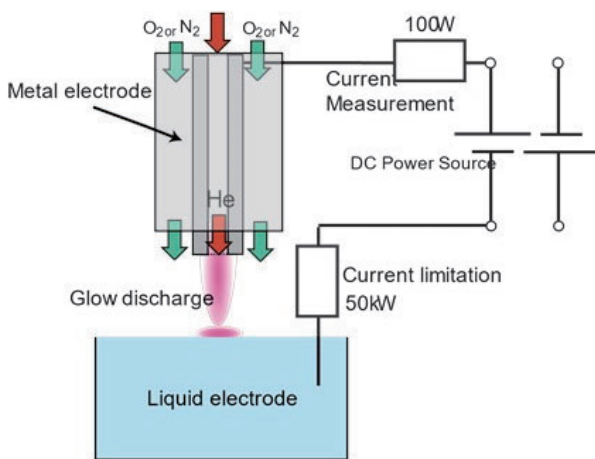


図1 液体電極を用いた直流駆動大気圧グロー放電生成。

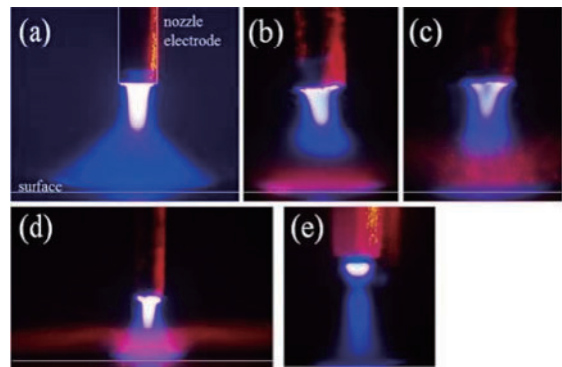


図3 液体陰極放電生成時の液滴発生（赤い部分がレーザー散乱で可視化されている）(a)水道水、(b)1%NaCl水溶液、(c)5%NaCl水溶液、(d)条件(c)の縮小図(a)～(d)では液体は陰極・電流90 mA、(e)1%NaCl水溶液陽極・電流30 mA（文献[24]より引用）。

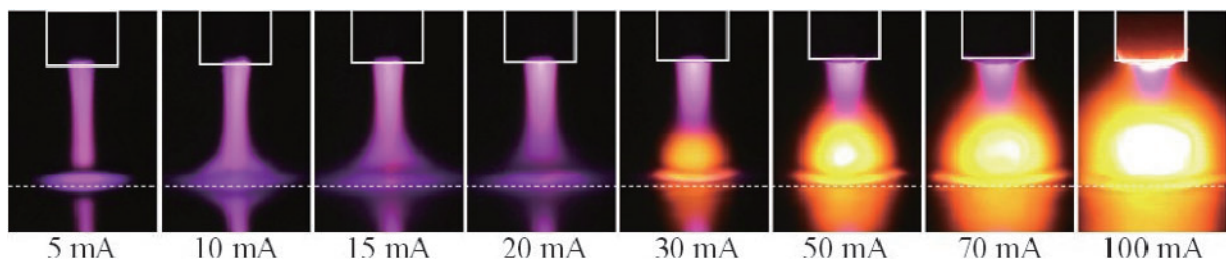


図2 液体陰極を用いた直流駆動大気圧グロー放電の発光写真（文献[23]より引用）。

濃度が高いほど多くなる (図 3 (b), (c), (d))。このような傾向はアルカリ金属・アルカリ土類金属を含む電解質溶液の場合に顕著にみられ、電解質の濃度を高くすることで液中の他の金属イオンの原子発光も増加させることが可能となる。例えばCuSO₄水溶液を利用した場合、Cuの原子発光はあまり観測されないが、CuSO₄水溶液にNaClを混合した水溶液で放電を生成して発光スペクトルを比較したところCuの原子発光強度が顕著に高くなることを確認しており[24]、液滴を多数発生させることで液中成分の検出が可能になる。

次に液体陰極生成時になぜ液滴が発生するかについて検討した。図 4 は液体陰極放電を生成した直後の水面の様子を高速度ビデオカメラで撮影した連続写真の抜粋である。撮影速度は100,000コマ/秒である。図に示すように電圧印可直後、時刻 10 μs で電極間全体に放電チャンネルが発生するが、徐々に水面付近の発光は弱くなり、時刻 200 μs で水面に複数の山が形成されることがわかる。これは水面にグロー放電が形成されることで水面上に陰極シースが形成され高い電界が発生し、その電界により水面が変形するテイラーコーンが形成されたものと推定される。さらに時間が経過すると 340 μs で Na 発光がそのテイラーコーン先端から局所的に発生している様子が見られる。さらにその後、複数の箇所から次々とNaの原子発光が見られ、それらは上方向に爆発しているようにも見え、発光部周辺では多数の液滴が発生する。

放電生成後の陰極シース電界によるテイラーコーンの発生については、現時点での推測の段階であるが、ここではその後、Naの原子発光が見られた後、多数の液滴が爆発的に発生したことについて考察する。ここで著者は、アルカリ金属単体と水の反応に着目した。高校の化学実験や youtube 等でも見られるデモ実験だが、アルカリ金属単体は水と反応すると $2\text{Na} + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow 2\text{NaOH} + \text{H}_2$ によって水素が

発生して、反応熱によって急激に体積膨張を起こすことで、強い発光と爆発を引き起こす。著者はこのアルカリ金属発生の事実を確認するために放電生成時に周囲に飛散する液体の pH を調べたところアルカリ性を示した。これは上記の反応式で示したNaOHが発生したことを示唆している。

またNaCl濃度を10%と高くした液体に対して放電を形成し、電極間距離を1 cm程度まで広げて放電を形成した際のスナップショットを図 5 に示す。放電は不安定となりナトリウムの黄色いチャンネルが電極間から大きく外れたところでも激しく動き回る現象が確認された。これは金属ナトリウムを水の中に投げ入れたときに見られる現象と酷似しており、アルカリ金属と水の反応が生じている可能性は高い。このときのNaCl濃度は極端に高いものであるが、著者

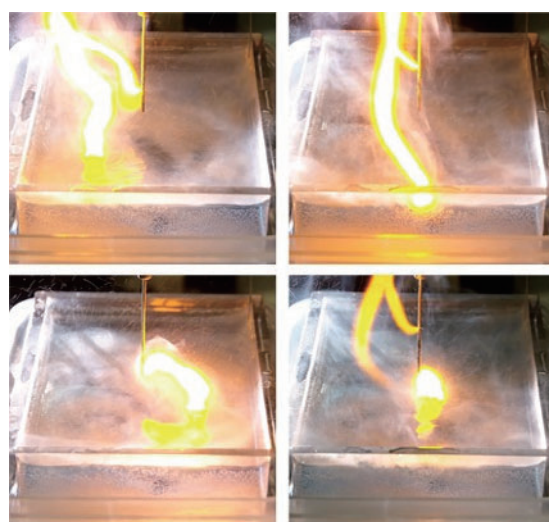


図 5 水面から気相部を動き回る Na 金属発光のスナップショット (発光位置・形状はランダムに変化する)。

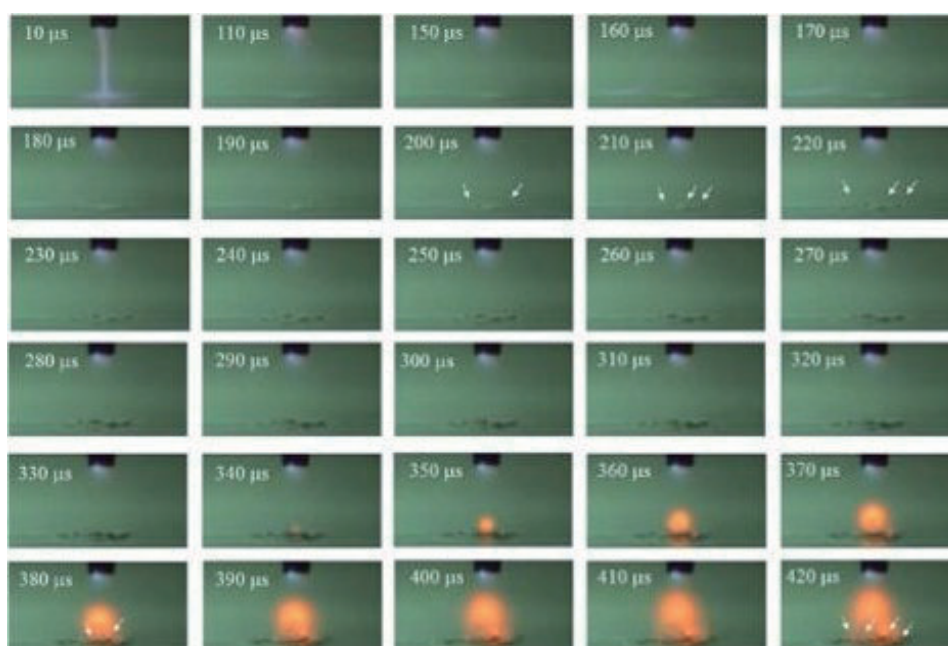


図 4 液体陰極放電生成の時間進展の様子 (文献[24]より引用)。

がこれまで調べてきた NaCl が 0.1–1% 程度の液体陰極の放電動作時も水面近傍で局所的に同様のアルカリ金属爆発現象が生じ、それにより液滴が発生しさらに発光→液滴発生を繰り返すことで金属原子の発光が観測されたものと推測される。

ただし、課題もあげられ、放電生成初期の段階で電場の影響でテイラーコーンが形成される実験的事実はあるか、コーン先端から放出された液滴からどのような過程でアルカリ金属単体の Na が発生するのかといった疑問は解決していない。また ELCAD の研究においては、液体を酸性にすると金属原子の発光が強くなるとの報告があるが、この場合も液滴発生量が増えたとの報告がある [13]。これについても水素ガスが発生して水面近傍でナトリウムの場合と同様の爆発が発生した可能性も考えられる。しかし現段階では推測の段階であり、これらに関するメカニズムを今後解明する必要がある。

また最近の研究でアルカリ金属と水の反応によって生じる反応はクーロン爆発が起源という報告がある [36]。詳細は文献 [36] を参考にされたいが、アルカリ金属と水が反応する際、水素が発生するよりも前に金属が電子を失い、イオン化した金属クラスターが反発・解離するクーロン爆発を引き起こすというものである。その結果金属はスパイク状になり表面積が増えて水と効率よく反応する。液体陰極の放電時には、この反応にさらにプラズマからの電荷等の影響も加わると考えられるが、今後 Na 発生を考察する際にもこういった事象も考慮していく必要がある。

4. 液体陽極放電時の発光の自己組織化現象

ここからは液体を陽極とした際の大気圧グロー放電の結果について述べる。図 6 は著者が報告したプラズマの自己組織化の例であるが、2017 年度のプラズマ・核融合学会年会のフォト・イラストコンテストで表彰いただいたものである。この現象は直流電源を用いて金属液体間に電圧を印可しただけで、様々なパターン形状を観測することができる。著者らは 2009 年頃、液体を陽極とした際に水面に形成される発光が自己組織化されることを報告している [25]。ちょうど同時期に P.Bruggeman らのグループも同様の現象を報告している [37, 38]。プラズマ発光の自己組織化現象はこの方法以外にも様々な報告があり、交流電圧駆動の誘電体バリア放電 [39, 40] や 2003 年頃、Old Dominion Univ のグループが発表した "Cathode Boundary Discharge" があげられるが [41, 42]、いずれも放電雰囲気中のガスの種類や圧力を制御する必要がある。一方、液体を用いた自己組織化現象の場合、大気圧空气中で直流電圧駆動により容易に自己組織化現象が得られるため、近年では多くの研究報告がなされている [43–49]。また直流放電のパターン形成に関する計算シミュレーションも報告されている [50, 51]。一方で実験に関しては大気圧プラズマのサイズが小さい点等から計測手法が限られているため、パターンの生成メカニズムの解明は十分なされていない。

著者自身は前節で述べた液体陰極放電の研究を行う中で、極性を変えた場合にどのようなことが起きるかを試し

たことがきっかけでこの現象を偶然発見した。ただし金属電極を陰極とした場合、電極が過熱され注射針のような細い電極を利用すると燃えて電流を増加することができない。そこで太さ 6 mm 程度の真鍮の電極に穴をあけてそこからヘリウムを流すことで放電を生成した。

図 7 は放電プラズマの電流電圧特性とその際に自己組織化された領域を示したものである。図からわかるように放電電流が高く、電極間距離が長い時ほどパターンは形成されやすい。なおパターン形成時の電流電圧特性において、電流を変化させながら電圧を計測すると電流の増加に対して放電電圧が上がったり下がったりする N-Shape と表現される曲線が描かれることもあるが [39, 40]、これは自己組織化が形成されることで放電部のインピーダンスが変化して放電電圧が変化したことを示したものであり自己組織化現象が生成されたときの典型的な特性である。

一方、数学の分野では微分方程式の解として自己組織化パターンを得られることが知られている。一般的な自己組織化の解析として、反応拡散系というものがある。反応拡散系には数ある数式があるが、例えば u, v を物質の濃度としてある種の化学反応を示した Glay-Scott モデルというも

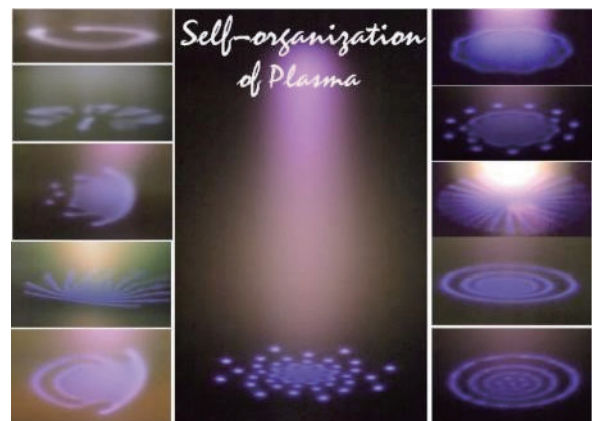


図 6 液体陽極を用いた大気圧直流グロー放電生成時に見られる自己組織化現象 (2017 年度のプラズマ・核融合学会年会のフォト・イラストコンテストより)。

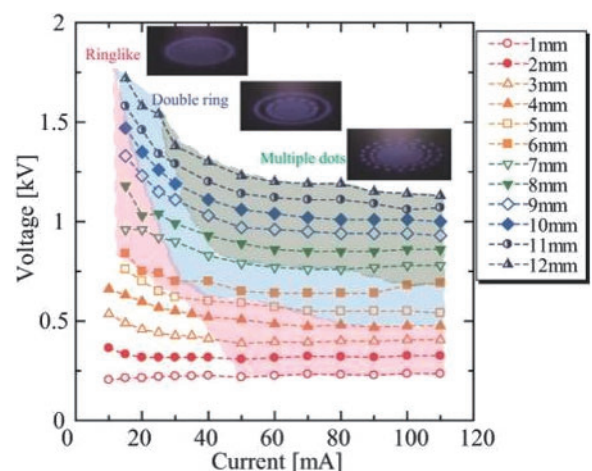


図 7 液体陽極放電の電流電圧特性とその際のパターン形状 (文献 [27] より引用)。

のがある。

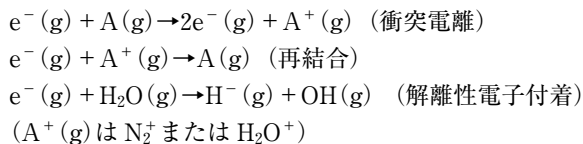
$$u_t = D_1 \Delta u - uv^2 + a(1-u)$$

$$v_t = D_2 \Delta v + uv^2 - (a+k)v$$

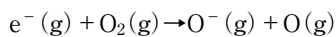
この式を解析的に解くと最初1つだけあったスポット状の解が次々に分裂して多数となることが知られており、実際解析的に解くと係数を変化させることで様々な模様を得ることができる。しかし空間次元が2以上の解挙動に関しては理論的にはほとんどわかっていない[52]。この式を定性的に解釈すると u と v という二つの物理量を互いに増やしたり、減らしたりしているとみることができる。例えばプラズマにおいて電荷のバランスを保ちながら増減する物理量を考えたとき、電子の付着脱離により増減する負イオンが考えられる。著者はこの考えをもとに電気的負性ガスである酸素に着目した。

図8は自己組織化生成される前の放電に対して酸素または窒素ガスを液体陽極に向かって斜め上から照射した例である。放電はガス流によってガス下流に流されるがその際、図からわかるように酸素ガスを照射した場合にのみ一部が自己組織化模様を形成している。また図9は放電の周囲にシールドガスとして酸素または窒素ガスを流したものであるが、この場合も窒素ガスを流したものはパターンがなくなり一様な放電となる。一方、酸素ガスを導入したものは複雑ながらも法則をもった自己組織化模様が形成される。これらの事実から自己組織化模様を得るためには酸素ガスが重要であり、放電空間の負イオンの影響が示唆される。

実際、最近の研究報告で、Rumbachらは水面上のアノードシースでの電子と正イオンの反応拡散を以下のような式で考えて計算を行い、一部の条件では実験結果と同様の形状のパターンが得られることを説明している[49]。



上記の式は重要なことは全体の電荷のバランスは保ちながら、電子が増減していることである。この電子の増加と減少が生じることが先の反応拡散方程式における物質の増加・減少を表していると考え、定性的ではあるが液体陽極放電生成時にパターン形成が生じていると考えることができる。実際には大気圧空气中で放電を生成すると H^- 以外の数多くの負イオンが存在しており、著者らの実験結果では酸素ガスの影響が強く出ているため



等の電子付着反応も顕著に生じると考えられる。さらには、気液界面の反応においては H_2O_2 が必ず生じることが知られているが、この H_2O_2 が低い電子エネルギーで容易に解離する報告もなされており、

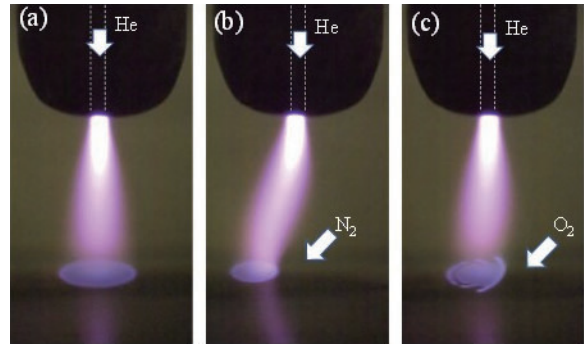
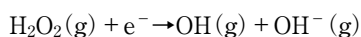


図8 自己組織化の酸素ガスの影響 (a) He ガス流のみ、(b) 横から N₂ ガス (c) 横から O₂ ガス (文献[27]より引用)。

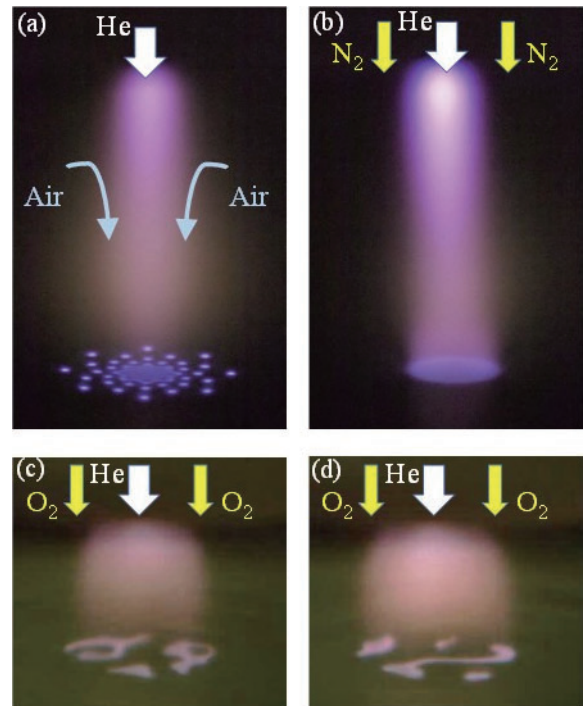


図9 自己組織化の周辺ガスの影響 (a) He ガス流のみ、(b) N₂ シールドガス (c-d) O₂ シールドガス (c-dの形状はランダムに変化する) (文献[27]より引用)。

のような反応も考えられる[53]。また最近、Sasakiらが液体電極放電中の負イオンをレーザー光脱離法により計測し、空气中で放電した際、最も多く観測された負イオンは OH^- であると報告している[54]。

最後に、最近著者らが調べた実験結果を紹介する。図10は液体陽極放電生成時に自己組織化が観測された場合とされない場合について、レーザー誘起蛍光法により OH ラジカル密度の分布を計測し比較したものである。レーザー誘起蛍光法の詳細な実験条件については文献[55]を参考にされたい。実験条件は放電電流 40 mA、電極間距離 9 mm であり、中心にヘリウムガスを流し、(a)は N_2 のシールドガス、(b)は合成空気 ($N_2:O_2 = 4:1$) のシールドガスで放電を生成している。シールドガスの種類以外は同一条件であるが、(b)の条件のときのみ水面に自己組織化模様が形成されている。このときの OH 密度分布を比較すると水面のやや上の領域において(b)のときの方が高くなっている。つまり、自己組織化が形成されているときの方が OH

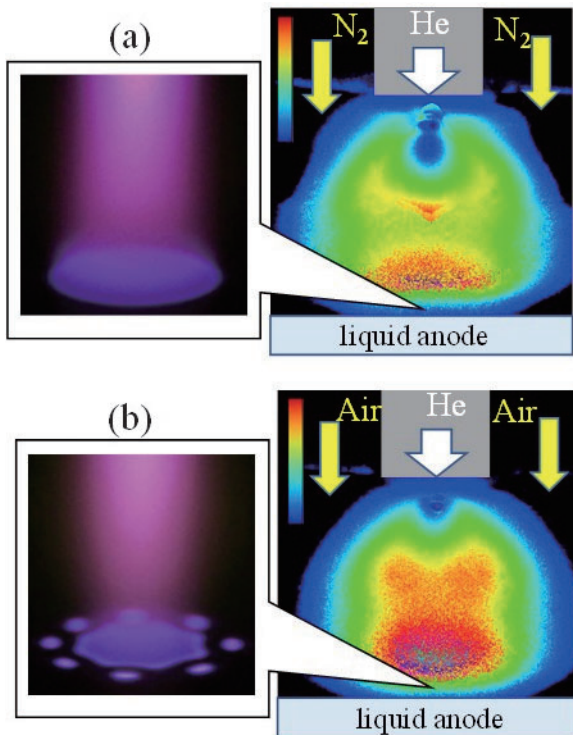


図10 レーザー誘起蛍光法による OH ラジカルの密度分布とその際のパターン形状(a)窒素シールドガス(b)空気シールドガス。

の密度が高くなるという傾向が得られており、電子付着による負イオン発生時に OH が発生し、その結果、自己組織化形成したと解釈することができる。つまり、現時点では間接的にはあるが放電部での負イオンの発生により自己組織化を形成する反応拡散系が生じている可能性が示唆された。

大気圧空気中の放電では、多種多様な反応が存在するため反応拡散系で電子の増減を説明することも一筋縄ではいれないが、負イオンの存在が自己組織化の発生に重要な役割をもつことは間違いないと考えられる。ただし、自己組織化形成がなぜ陽極表面に生じるか、陽極の径方向の電界分布がどのように変化しているか等については現時点ではわかっておらず、今後これらを明らかにする実験と理論両方のアプローチが必要となる。

5. まとめ

本稿では液体を電極とした直流電圧駆動の大気圧グロー放電においてプラズマ液体界面で観測される現象について紹介した。液体を陰極とした場合、陽極とした場合それぞれについて紹介した。液体を陰極とした場合には、表面からの液滴放出が観測され、その原因は現時点では液体表面での電界、さらに液滴の増加はアルカリ金属固体の発生に伴う水との反応による爆発反応が影響していると現時点では推測している。液体を陽極とした場合には、液体表面に発光の自己組織化模様が観測される。この原因については十分理解されていないのが現状であるが、負イオンの生成等による電子の増減により数学モデルにおける反応拡散系の解の発生と同様の現象が生じてパターンを形成していると推定される。プラズマ液体相互作用の研究は、多種多様な応用

が既に報告されているが、界面の物理現象の本質的な理解が更なる応用展開においても重要である。

参考文献

- [1] P. Bruggeman and C. Leys, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42**, 053001 (2009).
- [2] P. Bruggeman *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **25**, 053002 (2016).
- [3] I. Adamovich *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50**, 323001 (2017).
- [4] K. Takaki *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52**, 473001 (2019).
- [5] M.G. Kong *et al.*, *New J. Phys.* **11**, 115012 (2009).
- [6] S. Ikawa *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **49**, 425401 (2016).
- [7] T. Yokoyama *et al.*, *Chem. Res. Toxicol.* **33**, 1633 (2020).
- [8] N. Kurake, *et al.*, *Archives Biochem. Biophys.* **662**, 83 (2019).
- [9] T. Cserfalvi *et al.*, *J. Phys. D* **26**, 2184 (1993).
- [10] T. Cserfalvi *et al.*, *J. Anal. At. Spectrom.* **9**, 345 (1994).
- [11] M. Webb *et al.*, *J. Anal. At. Spectrom.* **22**, 766 (2007).
- [12] Z. Zhu *et al.*, *Anal. Chem.* **80**, 7043 (2008).
- [13] A. Schwartz *et al.*, *Talanta* **102**, 26 (2012).
- [14] J. Gubkin, *Ann. Phys. Lpz.* 32114 (1887) (in German).
- [15] R. A. Davies and A. Hickling, *J. Chem. Soc.* 3595 (1952).
- [16] A. Hickling and J. K. Linacre, *J. Chem. Soc.* 711 (1954).
- [17] A. Kitano *et al.*, *Anal. Chem.* **83**, 9424 (2011).
- [18] M. Banno *et al.*, *Analytica Chimica Acta* **634**, 153 (2009).
- [19] D. Staack *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **14**, 700 (2005).
- [20] D. Staack *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **17**, 025013 (2008).
- [21] T. Yokoyama *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38**, 1684 (2005).
- [22] N. Shirai *et al.*, *Jpn J. Appl. Phys.* **48**, 036002 (2009).
- [23] N. Shirai *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **20**, 034013 (2011).
- [24] N. Shirai *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **29**, 025007 (2020).
- [25] N. Shirai *et al.*, *Appl. Phys. Express* **2**, 036001 (2009).
- [26] N. Shirai *et al.*, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **39**, 2652 (2011).
- [27] N. Shirai *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **23**, 054010 (2014).
- [28] P. Bruggeman *et al.*, *J. Phys. D* **41**, 215201 (2008).
- [29] P. Bruggeman *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **17**, 025012 (2008).
- [30] N. Sirotkin *et al.*, *Plasma Chem. Plasma Process.* **37**, 1475 (2017).
- [31] K. Greda *et al.*, *Anal. At. Spectrom.* **30**, 154 (2015).
- [32] P. Jamroz *TrAC Trends Anal. Chem.* **41**, 105 (2012).
- [33] K. Greda *et al.*, *J. Anal. At. Spectrom.* **28**, 1233 (2013).
- [34] P. Jamroz *et al.*, *Spectrochim. Acta B* **73**, 26 (2012).
- [35] K. Greda *et al.*, *Anal. Chem.* **88**, 8812 (2016).
- [36] P. Mason *et al.*, *Nat. Chem.* **7**, 250 (2015).
- [37] P. Bruggeman *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **17**, 025012 (2008).
- [38] T. Verreycken *et al.*, *J. Appl. Phys.* **105**, 083312 (2009).
- [39] U. Kogelschatz, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **30**, 1400 (2002).
- [40] T. Shirafuji *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 2309 (2003).
- [41] K. Schoenbach *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **13**, 177 (2004).

- [42] N. Takano and K. Schoenbach., *Plasma Sources Sci. Technol.* **15**, S109 (2006).
- [43] J. Foster *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **29**, 034004 (2020).
- [44] Y. Kovach *et al.*, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **47**, 32148 (2019).
- [45] Z. Chen *et al.*, *Sci. Rep.* **7**, 12163 (2017).
- [46] S. Zhang *et al.*, *Phys. Plasmas* **25**, 073502 (2018).
- [47] X. Li *et al.*, *Plasma Process Polym.* **17**:e1900223 (2020).
- [48] J. Diamond *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53**, 425209 (2020).
- [49] P. Rumbach *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **28**, 105014 (2019).
- [50] P. Almeida *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **19**, 025019 (2010).
- [51] J. Trelles, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **49**, 393002 (2016).
- [52] 柴 伸一郎：パターン形成の数理（講談社，2008）。
- [53] D. Nandi *et al.*, *Chemical Phys. Lett.* **373**, 454 (2003).
- [54] K. Sasaki *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **29**, 085012 (2020).
- [55] H. Ishigame, S. Nishiyama and K. Sasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 01AF02 (2015).



しらい なおき
白井直機

北海道大学大学院工学研究院 准教授，
2008年東京工業大学大学院 博士（工学）首都大学東京助教を経て，2016年より現職。
大気圧プラズマの生成・制御，プラズマ液体相互作用などを中心に研究を行っています。現在，3歳と1歳の男児二人の子育て中で若干疲弊気味です。育児も研究もなかなか思い通りにいかないことを痛感する日々です。