

## 論文の内容の要旨

論文題目 大気圧ストリーマ放電の反応シミュレーション

モデルの構築と活性種生成機構の解明 (Numerical modeling for atmospheric-pressure streamer discharge towards elucidation of radical production)

氏 名 小室 淳史

大気圧プラズマとは大気圧下で発生させる反応性プラズマのことであり、低圧プラズマと比べて真空装置が不要、物質の連続処理、大量処理が可能といった特徴から、現在多くの産業分野で用いられている。例としては環境応用（環境汚染ガス処理、水処理）、バイオ（殺菌、遺伝子操作）、医療（がん治療、外科治療、止血、歯科治療）、材料（合成、加工、改質、表面処理）、エネルギー（燃料着火、プラズマ補助燃焼）、光源（ランプ、プラズマディスプレイ）などがある。これらの応用研究は国内外で活発に進められているが、プラズマの反応過程に対する知識は未だ不十分であり、技術開発は理論ではなく経験に頼らざるを得ないのが現状である。問題点を以下に挙げる。

- 各種プラズマ技術において重要な化学活性種(ラジカル)の生成・反応機構が明らかになっていない
- ラジカルの計測には大規模な装置が必要なため、実験計測が十分に行えていない
- 信頼できる大気圧プラズマシミュレーションが開発されていない

大気圧プラズマを社会で広く応用していくためには、技術開発効率の向上と、技術の安全性を担保するといった意味において、その物理機構の完全な解明が必要である。

現在まで行われてきた大気圧プラズマに関する研究では、シミュレーションによるプラ

プラズマ反応過程の研究はいくつかあるものの、実際にシミュレーション結果と実測値を比較し、モデルの妥当性を証明した例はない。このような背景のもと、我々の研究室は現在まで、大気圧プラズマ中の様々なラジカルのレーザー計測を行ってきた。これに対し、本研究では、大気圧プラズマのシミュレーションモデルの開発を目的とする。適切な数値計算手法を用いてモデリングを行えば、プラズマ内で起こる諸現象を再現することが出来る。再現された各種物理量を実験結果と比較することにより、実験結果に裏打ちされた世界初の大気圧プラズマシミュレーションを開発する。このシミュレーションが完成すると、技術開発の大幅な効率化が期待でき、また技術の安全性の担保も可能となる。例えば医療応用としては、本シミュレーションを用いて各種医療に適したプラズマを容易に設計することができ、止血や癌治療等の医療技術の性能を、著しく向上させることが出来る。

2次元の円柱座標を用いて、大気圧プラズマの基礎であるストリーマ放電のシミュレーションモデルの構築を行った。使用したモデルは、放電によって発生する荷電粒子群を流体と近似し、電界計算と連続の式を連成して解く「近似流体モデル」である。実験と同条件で放電発光をシミュレートし、実験結果との比較を行いながら、モデルの改良を行った。その結果、ストリーマ放電の発光が進展する様子を、定量的に再現することに成功した。実際の放電進展を、シミュレーションで定量的に再現できたのは世界で初めてである。

プラズマ応用技術にとって重要な役割を果たしている酸素ラジカル(O ラジカル)と、窒素ラジカル(N ラジカル)の生成機構を、実験とシミュレーションの両面から解析を行った。その結果、両ラジカルは、主に2次ストリーマで生成されていることを、シミュレーションによって初めて理論的に示すことに成功した。

空気中の湿度がストリーマ放電に及ぼす影響について、シミュレーションを用いて詳細に調査した。空気を加湿することにより、プラズマ中で起きる化学反応数が数100種類以上増加し、シミュレーションモデルはより複雑になる。往來のシミュレーションでは、考え得る化学反応をすべて考慮することでモデルの信頼性を主張することが多いが、実際の実験結果を正確に再現することは出来ずにいた。それに対し本研究では、放電発光やラジカルの生成量等の実際の実験結果と、シミュレーション結果を詳細に比較・検証することにより、プラズマ反応モデルの改善を行った。その結果、実用上極めて重要なヒドロキシルラジカル(OH ラジカル)の生成量の実測値を、非常によく再現できるモデルが完成した。往來のモデルでは、500種類以上の化学反応を考慮しているのに対し、本研究で開発したモデルでは、150種類程度の反応で実験結果を再現することに成功している。これは計算負荷の大幅な削減につながり、大気圧プラズマのシミュレーションが、社会一般に普及するための大きな成果である。

上記基礎研究に加え、応用技術の確立を目指したストリーマ放電の最適化にも取り組んだ。上記シミュレーションを用い、プラズマとパルス電圧波形の関係を解析した。その結果、パルス電圧波形により、プラズマの特性（ストリーマ進展速度、ラジカル生成量等）

は大きく変化することを示した。現在まで、印加電圧波形によるプラズマの諸特性の変化は、実験的には確かめられていたものの、理論的に示したのは初めてである。これにより、ストリーマ放電の諸特性を、パルス電圧波形という新たなパラメータを用いて制御できる可能性を示した。

本研究により、これまで不可能であった理論的アプローチによる大気圧プラズマ技術の開発が期待できる。