

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	大気圧アルゴンプラズマにより生成された短寿命活性種の気液界面近傍における反応領域
Title(English)	
著者(和文)	立花孝介
Author(English)	Kosuke Tachibana
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10796号, 授与年月日:2018年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:安岡 康一,七原 俊也,千葉 明,藤田 英明,萩原 誠,朽久保 文嘉
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10796号, Conferred date:2018/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

論文要約

電気電子工学専攻 立花 孝介

本論文では「大気圧アルゴンプラズマにより生成された短寿命活性種の気液界面近傍における反応領域」と題し、プラズマ中で生成された短寿命活性種と液中物質が気液界面近傍のどこで反応するかについて述べた。

気液界面プラズマは難分解有機物の水処理、ナノ材料合成、医療・バイオなどの先端研究に利用されているが、プラズマ-液体相互作用については十分には理解されておらず、その原因として分子レベルの長さの視点からの研究が不足していると考えられる。このため本研究ではプラズマを気液界面に照射して反応を誘起し、その情報から短寿命活性種と液中物質の反応領域を明らかにすることを目指した。

反応領域を明らかにするには短寿命活性種の液相貫通深さと液中の気液界面濃度分布を知る必要があるが、両方とも不明のままでは反応領域を明らかにするのは困難である。そこで、短寿命活性種の液相貫通深さと液中の気液界面濃度分布について文献調査を行ったところ、短寿命活性種については液相貫通深さが 1 nm 以下と非常に短いこと、液中物質の気液界面濃度分布については、界面活性剤であるペルフルオロオクタンスルホン (PFOS) はその分子の一部が気相に突き出ていること、非界面活性剤である無機イオンはイオン種により液界面近傍の濃度分布が異なることが判明した。これら先行研究結果を利用し、気液界面濃度分布が既知の物質にプラズマを照射させて誘起される化学反応を観測することにより、短寿命活性種と液中物質との反応領域を明らかにできると考えた。

水中気泡内直流アルゴンプラズマを濃度 110 $\mu\text{mol/L}$ の PFOS 水溶液に 600 分照射して PFOS を 98% 分解したときの分解副生成物を測定し、液相ではフッ化物イオン、ペルフルオロカルボン酸類 (PFCAs) に加えて、 $\text{C}_i\text{HF}_{2i}\text{COOH}$ ($i=2-7$)、 $\text{C}_m\text{HF}_{2m}\text{SO}_3\text{H}$ ($m=2-8$) を同定し、気相ではフッ化炭素ガスを同定した。測定した分解副生成物から、気相に突き出ている $\text{C}_5\text{F}_{11}-\text{C}_2\text{F}_6\text{SO}_3\text{H}$ 、 $\text{C}_6\text{F}_{14}-\text{CF}_3\text{SO}_3\text{H}$ 部分の C-C 結合が主に開裂することにより PFOS が分解されたと考えられる。

大気圧直流水素プラズマ、大気圧パルス水素プラズマを濃度 1,000 $\mu\text{mol/L}$ の硝酸水溶液にそれぞれ 60 分、90 分照射したが、硝酸イオン濃度の減少、亜硝酸イオンの増加はいずれの場合も観測されなかった。このように水素プラズマ中で生成される水素原子では硝酸イオンが還元されなかったことから、水素原子等の短寿命活性種は、液中で硝酸イオンが存在する領域まで到達できないことがわかった。

大気圧直流アルゴンプラズマを濃度 2.1 mol/L の塩化ナトリウム水溶液、ヨウ化ナトリウム水溶液に照射したところ、塩素生成は照射時間 600 秒でも確認されなかったが、ヨウ素生成に由来する黄色呈色は照射時間 30 秒で確認された。プラズマ照射時の実験結果と文献にて報告されている塩化物イオン、ヨウ化物イオンの気液界面濃度分布を考慮することに

より、プラズマ中の短寿命活性種は液中物質と気液界面のみで反応することがわかった。

以上のように、本研究では短寿命活性種と液中物質との反応領域を解明すべく、界面活性剤である PFOS、非界面活性剤である硝酸イオンやハロゲン化物イオンに大気圧プラズマを照射した。プラズマ照射時に誘起される化学反応を理解することで、プラズマ中の短寿命活性種は液中物質と気相に突き出た部分、あるいは、液相中の気液界面でのみ反応することを明らかにした。同時に、短寿命活性種が液相中では気液界面のみでしか利用できないため、バルク中でプラズマ誘起反応を必要とする場合は短寿命活性種をオゾンや過酸化水素等の長寿命物質に変換して利用するのが重要であることを示した。