

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	過酸化水素生成におけるダイヤフラム放電プラズマの特性解明
Title(English)	
著者(和文)	渡辺 泰一
Author(English)	Taichi Watanabe
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12702号, 授与年月日:2024年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:竹内 希,赤塚 洋,沖野 晃俊,萩原 誠,河邊 賢一,佐藤 岳彦
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12702号, Conferred date:2024/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	電気電子 電気電子	系 コース	申請学位 (専攻分野)： 博士 (工学) Academic Degree Requested Doctor of	
学生氏名： Student's Name	渡辺泰一		審査員主査： Chief Examiner	竹内希

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文は、「過酸化水素生成におけるダイヤフラム放電プラズマの特性解明」と題し、ダイヤフラム放電プラズマによる過酸化水素の生成過程および、その生成特性を決定づける要件について述べている。

第 1 章「緒論」では、プラズマによって生成することのできる過酸化水素とオゾンを用いることで、難分解性有機物を分解することができるが、特に過酸化水素の生成において速度と効率の向上が課題であると述べている。このため本論文では、効率向上を念頭に置きつつ、効率を比較的高く保ちながら生成速度を得られるダイヤフラム放電プラズマを対象として、プラズマおよび過酸化水素の生成機構を明らかにすると述べている。

第 2 章「大気圧プラズマによる過酸化水素生成と発光分光に関する研究動向」では、全体的な傾向として、多くのプラズマ生成機構では過酸化水素の生成速度と生成効率との間にトレードオフが生じている一方で、本研究で扱ったダイヤフラム放電プラズマや一部の液膜放電プラズマにおいて、生成効率を低下させずに生成速度の増加を実現できている例があると述べている。とりわけ高い生成速度を実現できているダイヤフラム放電について、プラズマ自体の特性と過酸化水素生成機構を明らかにすることで、速度と効率の両面で過酸化水素の生成特性を高める要件が明らかになると述べている。

第 3 章「実験装置および実験手法」では、本研究で使用したダイヤフラム放電プラズマリアクタを示した。また、プラズマ生成に用いた各種電源回路や、測定および観測に用いた装置について述べている。

第 4 章「ダイヤフラム放電プラズマによる過酸化水素生成」では、10 並列ダイヤフラム放電プラズマによる過酸化水素生成において、電源上のパラメータと液温を変えた条件下での基礎的な特性変化を調査し、電圧または周波数を高くして投入電力を大きくしたとき、過酸化水素の生成速度は投入電力と正の相関を示した一方で、生成効率はある程度の値で飽和する傾向が得られたと述べている。また、液温を室温程度から沸点程度まで変化させた結果、過酸化水素の生成効率が 60-70℃付近で最高になったと述べている。これらを総合して、印加する電圧に対して微細孔で形成された気泡の形状と気泡の安定形成が、過酸化水素生成の最適条件とその条件における生成効率を決定づけると述べている。

第 5 章「ダイヤフラム放電プラズマによる過酸化水素生成に対するプラズマパラメータ」では、発光分光によって励起温度 (電子温度)・ガス温度・電子密度といったプラズマパラメータを算出・比較した結果、最高で 10^{22} m^{-3} オーダーかつ $2.5\text{--}3.0 \times 10^3 \text{ K}$ の温度をもつプラズマが生成されていることが分かったと述べている。また、プラズマパラメータの値およびその経時変化と過酸化水素生成特性を対比した結果、放電が継続している時間に対して、電子密度が局所熱平衡 (LTE) を満たすほどの高い値を長く維持できていることが、高い過酸化水素の生成効率を実現する一因だと推察されたと述べている。また、プラズマパラメータ、特に電子密度とガス温度が得られたことにより、過酸化水素生成の第 1 段階であると考えられる、水分子の解離に伴う OH ラジカル生成の素反応の反応速度を検討することができ、電子衝突による解離反応よりも熱分解による解離反応が、より支配的な反応過程であることが示されたと述べている。

第 6 章「パルス高電圧印加実験」では、5 章までとは異なる電源を用意し $10^{23}\text{--}10^{24} \text{ m}^{-3}$ オーダーの非常に高い電子密度をもつプラズマを生成したところ、過剰な電子密度を伴うプラズマ状態が、水分子からの OH の生成過程よりも、H および O 原子の生成過程を支配的にし、過酸化水素の生成が大幅に低減させることが分かったと述べている。また、本章における片極性の高電圧など、条件によっては過酸化水素の生成効率を数%悪化させる程度に、電解による余分な電力消費が生じることが分かったと述べている。

第 7 章「結論」では、本論文で得られた結果を総括するとともに、それを踏まえた展望を述べている。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

(博士課程)
Doctoral Program

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	電気電子 電気電子	系 コース	申請学位 (専攻分野)： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(工学)
学生氏名： Student's Name	渡辺泰一		審査員主査： Chief Examiner	竹内希	

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx. 300 English Words)

This thesis, titled "Investigation into physical characteristics of diaphragm discharge plasma in hydrogen peroxide generation," explores the generation process of hydrogen peroxide by diaphragm discharge plasma and discusses the requirements that determine its generation characteristics.

The findings obtained in this study are detailed in Chapters 4 to 6, and Chapter 7, 'Conclusion,' provides a summary of the obtained insights and outlining future prospects based on them.

In Chapter 4, titled 'Hydrogen peroxide generation by 10-parallel diaphragm discharge plasma,' we investigated the fundamental characteristics under varied conditions of voltage and frequency. By increasing the input power significantly through higher voltage or frequency, the generation rate of hydrogen peroxide exhibited a positive correlation with the input power. Meanwhile, the generation efficiency tended to saturate at a certain value. Additionally, varying the solution temperature from room temperature to the boiling point revealed that the maximum efficiency in hydrogen peroxide generation was achieved around 60–70°C. Summarizing these findings, we assert that the shape of microbubbles formed in response to the applied voltage and the stable formation of bubbles play a crucial role in determining the optimal conditions for hydrogen peroxide generation and its efficiency under those conditions.

In Chapter 5, titled "Plasma parameters of diaphragm discharge plasma," the results of calculating and comparing PPP through luminescence spectroscopy revealed the generation of P with a density on the order of 10^{22} m^{-3} and a temperature of $2.5\text{--}3.0 \times 10^3 \text{ K}$. By contrasting the values and temporal changes of plasma parameters with the characteristics of hydrogen peroxide generation, it is inferred that the ability to maintain high densities, meeting Local thermodynamics equilibrium (LTE), compared to the discharge duration, contributes to achieving a high efficiency in hydrogen peroxide production. Additionally, the obtained plasma parameters, especially the electron density and the gas temperature, allowed the discussion of the reaction rate of an elementary reaction in hydrogen peroxide generation, the dissociation of water molecules, which should be the first stage of hydrogen peroxide formation. The results indicate dissociation reactions via thermal decomposition are more dominant in this reaction process than dissociation by electron collisions.

In Chapter 6, titled "Application of pulsed-high voltage," we introduced another power source, resulting in the generation of plasma with an extremely high electron density on the order of $10^{23}\text{--}10^{24} \text{ m}^{-3}$. The plasma with excessive electron density facilitated the generation processes of H and O atoms rather than the generation process of OH from the molecular species. Additionally, conditions such as unipolar high voltage, applied in this chapter, can significantly reduce the efficiency of hydrogen peroxide production by several percentage points due to surplus power consumption via electrolysis.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note: Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).