

## パルス放電照射による液中生成種のレート方程式解析(3)

その他（別言語等） のタイトル	Rate-equation analysis of reactive species in pulsed-discharge plasma treated water (3)
著者	?橋 一弘, 川口 悟, 佐藤 孝紀, 川口 秀樹, TIMOSHKIN Igor, GIVEN Martin, MACGREGOR Scott
雑誌名	第66回応用物理学会春季学術講演会 講演予稿集
巻	11a
号	7
ページ	9-9
発行年	2019-03
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10258/00010034">http://hdl.handle.net/10258/00010034</a>

# パルス放電照射による液中生成種のレート方程式解析 (3)

## Rate-equation analysis of reactive species in pulsed-discharge plasma treated water (3)

室蘭工大<sup>1</sup>, 学振特別研究員<sup>2</sup>, ストラスクライド大<sup>3</sup> ○高橋 一弘<sup>1</sup>, 川口 悟<sup>1,2</sup>,

佐藤 孝紀<sup>1</sup>, 川口 秀樹<sup>1</sup>, Igor Timoshkin<sup>3</sup>, Martin Given<sup>3</sup>, Scott MacGregor<sup>3</sup>

Muroran I. T.<sup>1</sup>, JSPS Research Fellow<sup>2</sup>, Univ. of Strathclyde<sup>3</sup>, ○K. Takahashi<sup>1</sup>, S. Kawaguchi<sup>1,2</sup>,

K. Satoh<sup>1</sup>, H. Kawaguchi<sup>1</sup>, I. Timoshkin<sup>3</sup>, M. Given<sup>3</sup>, and S. MacGregor<sup>3</sup>

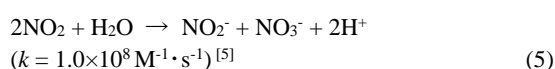
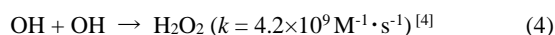
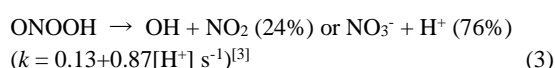
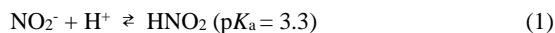
E-mail: ktakahashi@mmm.muroran-it.ac.jp

### 1. はじめに

放電プラズマを水に照射することで水中に HO<sub>2</sub> や ONOOH などの Reactive Oxygen Species (ROS)/Reactive Nitrogen Species (RNS)が生成され, これらは殺菌や植物の成長促進に寄与することが報告されている<sup>[1]</sup>. しかし, それらに寄与する ROS/RNS の種類や濃度は用途により異なるため, ROS/RNS の生成を適切に制御することが望まれる. 本研究では, 水に放電プラズマを照射した際に生成される水中の ROS/RNS 生成過程の解明を目的としている. これまで著者らは, N<sub>2</sub> ガス雰囲気下で水上パルス放電を発生させたときに生成される水中の H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>, HNO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>および ONOOH の濃度を酸解離平衡および化学反応に基づくレート方程式を用いて計算し, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>および NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の計算値が実測値とおおむね一致することを報告した<sup>[2]</sup>. しかし, 実験における放電領域の時間変化の影響をシミュレーション条件として実験結果を基に与えており, 異なるモデルへの適用を考慮すると好ましくない. ここでは, 実験結果からシミュレーションへのフィードバックを行わずに同様のモデルを用いて計算した結果について報告する.

### 2. 計算方法および条件

放電照射に伴い H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>および NO<sub>3</sub><sup>-</sup>が生成されるものとし, 単位時間当たりの生成量は一定であるものとする. 水中では(1)-(5)式に示す反応を考慮する. NO<sub>2</sub><sup>-</sup>と HNO<sub>2</sub>は酸解離平衡下にあり, HNO<sub>2</sub>は H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>と反応し, ONOOHを生成する. ONOOHは, OH/NO<sub>2</sub>あるいは NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/H<sup>+</sup>に分解され, OHおよび NO<sub>2</sub><sup>-</sup>は, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>および NO<sub>2</sub><sup>-</sup>/NO<sub>3</sub><sup>-</sup>に転化される. なお, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>と HNO<sub>2</sub>の存在比の算出には, 水中のイオン濃度から算出した pHを用いる. また, サンプルングから分析までにおける影響を考慮し, pHや生成物の濃度は水中で一様であるものとする.



ここで,  $k$ は反応速度定数,  $[\text{H}^+]$ は水素イオンのモル濃度(M)を示す. 以上の反応に基づくレート方程式を4次の Runge-Kutta法を用いて解析し, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>および NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の生成レートと(2)式の反応速度定数を推定した.

### 3. 計算結果

Fig. 1 は, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>および NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度の計算結果を実測値と併せて示す. 計算結果は, 3000 s 以下では実測値とおおむね一致することがわかる. このときの(2)式の反応速度定数は  $7.8 \times 10^3 \text{ M}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  であり, これまでに報告された値<sup>[6,7]</sup>とよく一致している. 3000 s 以上においては, 計算値は実測値よりも高い値となり, 反応速度定数の温度依存性や生成物の生成レートの時間変化などを考慮する必要があることがわかる.

本研究の一部は JSPS 科研費 JP17J11124 の助成を受けて実施されたものである.

### 参考文献

- [1]例えば S. Ikawa *et al.*: J. Phys. D: Appl. Phys. **49**, 425401 (2016).
- [2]高橋 他: 第 65 回応用物理学会春季学術講演会 講演予稿集, 07-048 (2018).
- [3]C. E. Anderson *et al.*: Plasma Chem. Plasma Process. **36**, 1393 (2016).
- [4]A. J. Elliot *et al.*: J. Chem Soc., Faraday Trans. **86**, 1539 (1990).
- [5]Y.-N. Lee and S. E. Schwartz: J. Phys. Chem. **85**, 840 (1981).
- [6]E. halfpenny and P. L. Robinson: J. Chem Soc. 928 (1952).
- [7]Y.-N. Lee and J. A. Lind: J. Geophys. Res. Atmos. **91**, 2793 (1986).

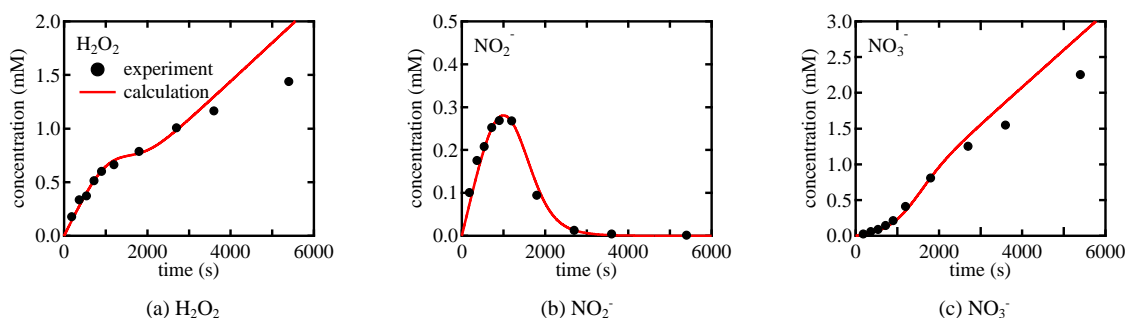


Fig. 1. H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub><sup>-</sup> and NO<sub>3</sub><sup>-</sup> concentration variations as functions of time.