

# 論文審査の結果の要旨

氏名 寺本 慶之

本論文は「レーザー計測による大気圧ストリーマ中窒素系活性種  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ , N,  $N_2(v)$  の生成・反応機構解明」と題し、5章から成っている。

第1章は序論であり、研究の背景と目的を述べている。大気圧ストリーマ放電は環境汚染ガス処理、水処理、表面処理、燃焼支援、医療など様々なところで利用されており、これら応用技術で重要な化学活性種の生成および反応機構の解明が喫緊の課題である。これまで、筆者の所属する研究室では大気圧空気中ストリーマ放電において OH, O,  $O_3$ ,  $O_2(v)$  など「酸素系活性種」をレーザー計測し、その生成・反応機構を解明してきた。一方、空気中放電でもうひとつ重要な「窒素系活性種」の計測は世界でもほとんど行われておらず、その挙動はよく知られていない。筆者はこの窒素系活性種の中で特に重要と言われている  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ , N,  $N_2(v)$  の3つの活性種をレーザー計測し、その生成・反応機構解明を行っている。いずれも、大気圧ストリーマ放電では世界初となる計測である。

第2章は、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  の計測である。計測にはレーザー誘起蛍光法 (Laser-induced fluorescence: LIF) を用い、LIF 測定原理と実験装置を示した後に実験結果を述べている。12mm 間隔の針-平板電極間で 20-30kV、数 100ns パルスのストリーマ放電を大気圧  $N_2$  および  $O_2/N_2$  中で発生させ、放電後の  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  密度や空間分布の時間変化を計測している。その結果、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  の空間分布から、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  は二次ストリーマではなく一次ストリーマで生成されることを明らかにしている。 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  密度は他文献のシミュレーション結果よりも数桁低い  $1 \times 10^{13} \sim 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  と得られ、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  は従来考えられているほどストリーマ放電で重要ではない可能性を指摘している。放電電圧を増加させると、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  密度は一定のままストリーマが太くなり、 $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  の生成量が放電エネルギーにほぼ比例して増加することが示されている。さらに  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  と  $O_2$ ,  $NO_2$ ,  $NO$ ,  $H_2O$ ,  $CO$  との反応速度を測定し、ストリーマ放電下でも文献値と 2~3 倍の誤差範囲内で反応速度が一致することを示している。

第3章は、N の計測である。計測には二光子励起 LIF (Two-photon absorption LIF: TALIF) を用い、TALIF 測定原理と実験装置を示した後に実験結果を述べている。第2章の  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  と同様に、放電後の N 密度や空間分布の時間変化を計測している。その結果、N 原子の空間分布から、N 原子は  $O_2(2\%)/N_2$  放電では主に二次ストリーマで生成される一方、 $N_2$  放電では主に一次ストリーマで生成されることを示している。放電電圧を増加させると、N 密度は一定のままストリーマが太くなり、N の生成量が増えることを示している。N の生成量は、 $N_2$  放電では放電エネルギーに対して線形に増加する一方、 $O_2(2\%)/N_2$  放電では放電エネルギーの二乗に対して線形に増加することを示し、後者では  $N_2$  の二段階解離反応で N が生成される可能性を指摘している。 $NO/N_2$  放電で N による

NO 分解過程を調べるために NO の LIF 計測もあわせて行い、N はストリーマ内の NO を数 $\mu$ s で高速に分解したのちに、拡散により周囲の NO を分解していくモデルを提案している。

第 4 章は、 $N_2(v)$  の計測である。計測にはコヒーレント・アンチストークス・ラマン分光法 (Coherent anti-Stokes Raman scattering: CARS) を用い、CARS 測定原理と実験装置を示した後に実験結果を述べている。 $N_2(v=1, 2)$  の密度を計測し、 $N_2(v)$  の振動分布は放電直後は非平衡だが、放電後に振動緩和して平衡に達することを観測している。背景ガスを加湿すると、 $N_2$  と  $H_2O$  の振動-振動緩和、および  $H_2O$  間での振動-並進緩和により、 $N_2(v)$  の振動エネルギーが高速に並進エネルギーに遷移する様子を観測している。また  $N_2(v=1)$  は、主に二次ストリーマで生成されることも示している。

第 5 章は総括で、本研究で得られた成果をまとめている。

以上要するに、本論文は 3 つの窒素系活性種  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ , N,  $N_2(v)$  を大気圧ストリーマ放電下でレーザー計測し、放電パルス後の各活性種密度の時間変化や空間分布を計測するとともに、放電による各活性種の生成過程や放電後の反応過程を明らかにした点で、先端エネルギー工学、特にプラズマ反応工学に貢献するところが大きい。

したがって、博士 (科学) の学位を授与できると認める。

以上 1,970 字