

# ルミノール化学発光とプラズマによって誘起される OH ラジカルの相関

Relationship between luminol chemiluminescence and hydroxyl radical induced by plasma

北大工 ○白井 直機、大和田 裕樹、菅 剛珠、佐々木 浩一

Hokkaido Univ. N. Shirai, Yuki Owada, Goju Suga, K. Sasaki

E-mail: nshirai@qe.eng.hokudai.ac.jp

## はじめに

様々な応用が期待される気液界面プラズマにおいて界面に誘起される液相部の活性種の計測は困難であった。著者らはこれまでにルミノールを用いた化学発光に着目し、プラズマによって誘起される短寿命活性種の可視化を試みた[1]。ルミノールは一般に化学発光を利用して  $O_2$  の検出に用いられており[2,3]、またソノケミストリーの分野では OH ラジカルの可視化に適用可能とされている。気液界面プラズマが生成された場合、OH と  $O_2$  を分離して評価するのは困難である。本稿では気相部に生成される OH ラジカルを評価して、液相部のルミノール化学発光を評価することでその相関を調査した。

## 実験装置

金属ノズル電極と液体電極間に放電を形成する基本的な液体電極放電の構造は従来の装置と同様であり、電極間に直流電圧を印加することで大気圧グロー放電を形成する[4]。実験は全て大気圧空気中で行い内径  $500 \mu\text{m}$  のノズル電極からヘリウムを流量  $200 \text{ sccm}$  で液面に向かって噴出させる。必要に応じて酸素シールドガスで放電空間を制御した[1]。電極間距離は  $1\text{--}4\text{mm}$  とし、液体は白金を介して直流電源と接続されている。液体電極としてアルカリ性 (pH:13) のルミノール溶液を用いた。ルミノール化学発光は溶液下部から拡大レンズを介して計測した。気相部の OH はレーザー誘起蛍光法を用いて測定し、波長  $283\text{nm}$  のレーザー光を放電部に照射し、 $315\text{nm}$  の蛍光を信号として計測した[5,6]。また別のプラズマ源として2本のノズル電極からヘリウムガスを噴出して交差させる大気圧グロー放電を形成し[7]、液体電極放電以外のプラズマ源でもルミノール化学発光との関係性を評価した。

## 実験結果

レーザー誘起蛍光法により得られる OH の信号は放電プラズマ発光に比べてその周辺まで広がっていることがわかる。またルミノール発光を気相部のプラズマ発光と比べた際にもその大きさはやや大きい。図1にレーザー誘起蛍光法により得られた放電消弧時の OH の信号の時間変化を示す。計測したところ、プラズマがオフしてから  $300\text{--}500 \mu\text{s}$  後まで信号は見られた。この時間は、ルミノール発光がプラズマオフしてから持続する時間とほぼ同等であった[8]。発光の形状、時間進展の結果プラズマ誘起によるルミノール化学発光は気相部で発生する OH と相関があることが示唆される。

さらに新たなラジカル源として交差ガス流を用いた直流グロー放電について検討した。交差ガス流プラズマはプラズマ発光が見られない交差部下流にも OH が存在していることが LIF により確認された。この交差

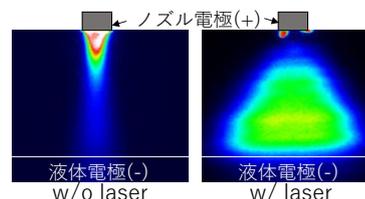


図1 放電発光(w/o laser)と LIF 像(w/ laser)

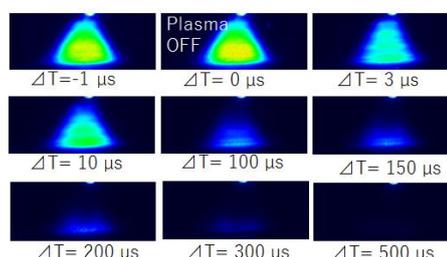


図2 プラズマ OFF 時のレーザー誘起蛍光法による OH ラジカル信号の時間進展



図3 交差ガス流を用いた大気圧グロー放電によって誘起されるルミノール化学発光  
(放電部は接触していないが青色発光が観測される)

部分をルミノール溶液に近づけたところプラズマ部は液体に触れていないがルミノール化学発光が見られた。これらのことからプラズマによって誘起される液中のルミノール発光の一部は、少なくとも気相部の OH によって誘起された可能性が高い。ただし現時点では  $O_2$  と OH を分離して評価することは困難であるため、化学発光を利用した定量のためには、他の実験との比較を行いながらプラズマ誘起によるルミノール化学発光の意味するところを明らかにする必要がある。

## 文献

- [1] N. Shirai et al., Appl. Phys. Express **11** to be published. (2018)
- [2] K. Faulkner et al., Free Radic. Biol. Med. **15** 447 (1993)
- [3] C. Lu et al., Trends Anal. Chem. **25** 985 (2006)
- [4] N. Shirai et al., Plasma Sources Sci. Technol. **20** 034013 (2011)
- [5] H. Ishigame et al., Jpn. J. Appl. Phys. **54** 01AF02 (2015)
- [6] K. Sasaki et al., Eur. Phys. J.: Appl. Phys. **71** 20807 (2015)
- [7] N. Shirai et al., IEEE Trans. Plasma Sci. **36** 960 (2008)
- [8] 2018 第 79 回秋季応物講演会[21p-136-7]