



Title	プラズマを用いたガス転換プロセスにおける振動励起状態分子の効果に関する研究 [論文内容及び審査の要旨]
Author(s)	山崎, 方弘
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第14878号
Issue Date	2022-03-24
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/85320
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Masahiro_Yamazaki_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士 (工学) 氏名 山崎 方弘

審査担当者 主 査 教 授 佐々木 浩一
副 査 教 授 富岡 智
副 査 准教授 高草木 達

学位論文題名

プラズマを用いたガス転換プロセスにおける振動励起状態分子の効果に関する研究
(Studies on effect of vibrationally excited molecules in plasma-assisted gas reforming processes)

地球環境問題についての関心が高まり、再生可能エネルギーの導入が急激に進んでいる現代社会にあって、二酸化炭素の資源化の重要性が高まっている。また、エネルギーキャリアおよび二酸化炭素を排出しない燃料としてのアンモニアに注目が集まり、アンモニアを合成する技術の重要性がこれまで以上に高まっている。

これらのガス転換プロセスは、従来、熱平衡下での化学反応によって実現されてきた。これに対し、近年、非平衡プラズマを用いたガス転換プロセスが研究されるようになった。一般に、非平衡プラズマを用いると、熱平衡の場合には高い温度を必要とする化学反応を低温化できることが知られている。従来、非平衡プラズマを用いた化学反応の活性化には、非平衡プラズマ中の電子衝突解離によって生成したラジカルが重要な役割を果たしていると理解されてきたが、最近になって、振動状態が励起された分子がガス転換反応に寄与しているとの指摘がなされている。非平衡プラズマ中の分子の振動温度は並進温度より高く、プラズマ中には大量の振動励起状態分子が存在するので、それらが反応に寄与すれば、ガス転換プロセスのエネルギー効率を高められると期待されている。

このような中において、本論文は、振動状態の励起は生じるが電子衝突解離によるラジカルの生成は生じない低電子温度プラズマを用いて、二酸化炭素の分解およびアンモニアの合成における振動励起状態分子の効果を確認するための研究を行い、その成果を報告している。

第1章は序論であり、本研究の背景について述べ、本研究の目的および意義を明らかにしている。

第2章では、本研究で用いた実験装置について述べるとともに、本研究で使用した測定方法について、原理を含めて詳細に説明している。本研究で用いたプラズマ発生装置は、電子温度の高い上流部と電子温度の低い下流部に分割されており、二酸化炭素等の反応ガスを下流部プラズマのみと相互作用させる点において特徴がある。

第3章では、二酸化炭素を添加した水素プラズマおよびヘリウムプラズマの電子温度および電子密度について報告している。下流部における水素プラズマの電子温度は典型的に 0.1 eV であり、この電子温度においては電子衝突による二酸化炭素の解離は無視でき、振動状態の励起のみが選択的に生じることを立証している。ヘリウムプラズマの場合には、中心部がやや高い電子温度をもつプラズマとなるが、プラズマ体積全体を平均すれば、二酸化炭素の電子衝突解離が無視できるプラズマであると報告している。

第4章では、第3章でプラズマパラメータを明らかにしたプラズマを用いた二酸化炭素の分解特性を報告している。二酸化炭素の分解性能を総括反応の速度係数として整理し、プラズマの電子温

度の関数としてプロットしたところ、速度係数は電子温度に逆比例して低下するとの実験結果を得ている。また、このことに基づき、振動励起状態を経た二酸化炭素の分解が高い総括反応速度係数を有すると結論している。さらに、低電子温度プラズマにおいて二酸化炭素の振動励起が効率的となる理由について、エネルギー準位構造にもとづく考察を述べている。

第5章では、下流部プラズマに窒素および水素を添加したプラズマの内部状態を詳しく調べた実験結果を報告している。この章では、低電子温度が得られるヘリウムプラズマと、電子温度が高いアルゴンベースプラズマを比較し、窒素および水素の振動温度の実測結果に基づき、低電子温度のヘリウムプラズマにおいて窒素分子の振動励起が効率的になることを示すとともに、そのメカニズムについて、エネルギー準位構造に基づいて考察している。

第6章では、第5章で内部状態を調べたヘリウムプラズマおよびアルゴンベースプラズマを用いたアンモニアの合成特性を報告している。まず、アンモニアの合成過程がステンレス製真空容器の表面を触媒として使った反応であることを示している。次に、窒素からアンモニアへの転換率を振動励起状態窒素分子密度の関数としてプロットし、両者により相関関係があることを示している。これに対し、窒素からアンモニアへの転換率を原子状窒素密度の関数としてプロットしたときには両者の間により相関関係がみられないことを報告し、真空容器の表面を触媒として使ったアンモニアの合成反応に対する振動励起状態窒素分子の寄与を指摘している。

第7章では、本研究の成果を総括し、今後の展望を述べている。

以上述べたように、本論文は、プラズマを用いた二酸化炭素の分解およびアンモニアの合成における振動励起状態分子の寄与を実験的に立証したものであり、得られた成果は学術的な重要性を有するだけでなく、プラズマを用いたガス転換技術の今後の方向性に新しい指針を与えている。よって、著者は北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格があるものと認める。