プラズマジェットを用いた減圧下での 高融点材料処理

正員 福 政 修 (山口大)

正員 崎 山 智 司 (山口大)

Application of a Plasma Jet Reactor to Low Pressure Processing of Refractory Materials

Osamu Fukumasa, Member, Satoshi Sakiyama, Member (Yamaguchi University)

In order to demonstrate the application feasibility of the reactor composed of a forced constricted type DC plasma jet generator and a feed ring to low pressure plasma processing, we have studied the production of ultrafine particles of refractory materials (Al_2O_3 , ZrC , TiC) and the interaction between the plasma flow and the injected particles.

According to the experimental results, many ultrafine particles whose diameters are less than $0.1\text{ }\mu\text{m}$ are prepared not only in atmospheric pressure but also in low pressure, although the number density of the prepared ultrafine particles, N , in low pressure is usually less than that in atmospheric pressure. It is also found that we can control the process of particle heating by changing the feed ring length, and that N in low pressure becomes equal to or greater than N in atmospheric pressure with increasing the feed ring length.

キーワード：熱プラズマプロセス，プラズマジェット，フィードリング，高融点材料，超微粒子

1. ま え が き

プラズマ中の電子，イオンやラジカルのもつ豊かな反応性を精密に制御して⁽¹⁾，材料生成や表面処理などへ応用するプラズマプロセスは近年重要な先端技術の一つとなってきた。このようなプラズマプロセスに利用されるプラズマは，主に低圧力下で用いられる低温プラズマと大気圧下で用いられる熱プラズマに大別される。それぞれのプラズマの特徴に対応して，低温プラズマは大面積にわたって均一にプロセスを行いうるが反応速度が低いという弱点があり，熱プラズマは高い反応率で材料処理が可能であるという利点をもつが大容量化は簡単ではない。

プラズマジェットはアーク放電をガス流と器壁で強制集束することによって容易に得られる熱プラズマで高温化学反応⁽²⁾，高融点材料処理⁽³⁾，高速成膜⁽⁴⁾などへの応用が注目されている。著者らも，プラズマジェ

ットを用いた熱プラズマプロセスに関心をもち高融点材料の超微粒子生成やスプレイコーティング⁽⁵⁾⁽⁶⁾，ダイヤモンド合成⁽⁷⁾を検討している。その目的は減圧下でプラズマジェットを用いてプロセスを行うことにより，熱プラズマとしての利点である高い反応速度を維持したまま，低温プラズマの特長であるプロセスの大容量化および均一化を図ることにある。なお，減圧下でのプロセスは不純物の混入も少なくプロセスの高品質化にもつながる。この目標を達成するには，まず，(i)広い圧力範囲にわたって所用のプラズマを安定に供給するプラズマ源と処理物質を高温のプラズマ流内に注入して効果的なプロセスを行う反応器の開発，更に，(ii)プロセス制御の立場からプラズマ流の粒子密度，温度，速度などの精密測定と同時に，プラズマ流とプロセス材料（特に粉末材料）間の熱移動などの相互作用の解明が重要な課題となる。

著者らは，課題(i)に関して，強制伸長型プラズマ

ジェット発生器⁽⁶⁾の前面に材料送給用のフィードリング（以下FRと略記）を接続したプロセッシング装置を既に提案し⁽⁹⁾検討を進めてきた。その基礎特性を調べることにより、本装置は減圧下・粉末材料送給に対して安定であり、かつ高出力が得られることが判明し⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾、現在はこの装置を用いて具体的なプロセスの検討を進めている⁽⁶⁾⁽⁷⁾。

そこで本研究では、課題(ii)に関連して、熱プラズマプロセスでよく扱われる、高融点粉末材料を対象にしてプラズマ流との相互作用について検討した。すなわち、FRは材料粒子とプラズマ流の有効な混合領域として作用している点に注目して、FR長が減圧下での粒子加熱、ならびに微粒子生成に与える影響について実験的に調べた。

更に、このプロセッシング装置で容器圧力や粒径などが粒子の加熱過程に与える影響をモデル計算によって調べ、材料粒子とプラズマ流との相互作用について基礎的な検討も行った。そして、このプロセッシング装置の減圧下での高融点材料処理への応用可能性について検討した。

2. 実験装置および実験方法

〈2・1〉 プロセッシング装置 実験装置は図1に示すように強制伸長型プラズマジェット発生器のノズル出口にFRを設け、更にその下流側に雰囲気圧力を制御するための圧力容器を接続し構成している⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。

強制伸長型プラズマジェット発生器は、陰極と陽極間にノズル状の絶縁集束部を有している点が通常型のプラズマジェット発生器とは異なっている。この絶縁集束部により陽極点がノズル先端に固定されアーク長は一定に保持される。更に、アークはノズル壁および

ガス流によってノズル軸線上に集束されるため、安定で高い熱出力のプラズマジェットを得ることができる。この絶縁収束ノズルの内径は5mm中、軸長は6mmである。また、ノズル型陽極は内径5mm中の銅製で、棒陰極には直径5mm中の2%Th-Wを用いた。

プラズマ流への処理材料の供給方法にはアークに直接供給する方法とプラズマジェットに供給する方法の2種類がある。しかし、前者は加熱効率が高い反面、不純物混入によるアークの不安定性や電極の腐食などの問題があり、後者は陽極ノズル噴出後のプラズマジェットは拡散・膨張しているため温度が低く粒子の加熱効率が悪いという欠点がある。そこで、本装置では陽極ノズルの下流に陽極と同じ内径をもつFRを陽極と電気的に絶縁し設け、このFR内のプラズマ流へ処理材料を供給する方法が用いられている。この方法は、プラズマ流をFR内に閉込め、拡散・膨張に伴う温度低下を防ぎ、処理材料の効果的な加熱を可能とするだけでなく、アークや電極への悪影響もほとんど生じないという利点をもつ。今回用いたFR(銅製、内径5mm中)は軸長が9.5、15.5、21.5mmの3種類(以下それぞれFR1、FR2、FR3とする)である。その構造を図2に示す。

なお、いずれのFRにおいても材料送給口(1.4mm中)をFR入口より3.5mm下流の位置に軸線に対し垂直に2個設けている。そのため材料粒子がFR内で加熱を受ける距離(l_m)はFR1、FR2、FR3の順に6、12、18mmとなる。なお、本論文ではFR内の比較的高温のプラズマ流を単にプラズマ流、FR噴出後のプラズマ噴流をプラズマジェットと呼ぶ使いわけを行っている。

図1 プロセッシング装置

Fig. 1. Schematic view of a plasma processing device mainly composed of a plasma jet.

図 2 フィードリング

Fig. 2. Three feed rings used in the experiment.

圧力容器（内径 70 mm 中，長さ 480 mm）は FR の下流側に接続され，容器内の圧力は真空ポンプ（100 l/min）2 台とニードルバルブによって調節される。また，この容器には観測窓（35 mm×120 mm）を設けておりプロセス進行中のジェットの観測が可能である。

〈2・2〉 実験方法および実験条件 処理材料には Al_2O_3 （平均粒径 20 μm ，粒径分布 10～44 μm ，融点 2,040°C），ZrC（22 μm ，10～53 μm ，3,570°C），TiC（21 μm ，10～44 μm ，3,140°C）の粉末を使用し，これをフィードガスに混入し FR 内のプラズマ流に送給した。また，プラズマジェット中で生成された微粒子は圧力容器軸線上に設けた直径 20 mm 中の円柱状の銅製コールドフィンガ（先端部は半球状）を用いて捕集した。具体的にはコールドフィンガの側面にガラス板（幅 4 mm，長さ 115 mm）を取付け，その表面に付着した生成粒子を回収することによって行った。材料送給時間は 1 回あたり 2 分で一定とし，FR 出口からコールドフィンガ先端までの軸線上の距離（L）は 20～200 mm の範囲で変化させた。なお，回収した生成粒子は走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて観察した。

FR より噴出したプラズマジェットの温度分布は，ノズル出口付近の 4,000K 以上の高温部は分光学的方法（二線強度比法，ArI 4,159 Å，ArI 6,965 Å を使用）を用いて求め，3,000K 以下の低温部は $W \cdot \text{Re}(5\%) - W \cdot \text{Re}(26\%)$ 熱電対により測定した。また，流速はピトー管（外径 6 mm 中，内径 1 mm 中）を用いて測定した。

実験条件は容器圧力（P）760，100 Torr，作動ガス（Ar）流量 20 l/min，フィードガス（Ar）流量 6 l/min，材料粒子送給量 0.5 g/min である。なお，ジェット熱出力は 3.0 kW 一定とした。

3. 実験結果および検討

〈3・1〉 プロセッシング装置の減圧下での諸特性

（1） プロセッシング装置の基礎特性 強制伸長型プラズマジェット発生器のアーク電圧対アーク電流の関係は図 3 に示すように，大気圧下だけでなく低圧力下においても上昇特性を示す⁽⁶⁾。通常型の発生器ではこの電流範囲では垂下特性を示している。このため強制伸長型プラズマジェット発生器を用いると電流の増加に伴い効果的に入力増大を図ることが可能となる。また，異なる長さの FR を装着した場合のアーク電圧の差は 5% 以内であり，FR 長の違いはアーク特性にほとんど影響を与えない。

このほかに著者らは，容器圧力の変化，粉末材料及反応性ガスの送給がアーク特性に与える影響は軽微であることも確認している⁽⁶⁾⁽⁷⁾⁽¹⁰⁾。すなわち，本装置は，処理材料の注入や容器圧力の変化などに対しても発生器の基礎的な特性はほとんど影響を受けず，常に安定で高温のプラズマジェットの発生が可能である。

（2） プラズマ流の温度場および速度場 図 4，図 5 は FR 噴出後のプラズマジェットの温度および速度の二次元分布を示す。温度は〈2・2〉節で示したように熱電対と分光学的方法を用い，流速はピトー管を用いて測定した。

温度は，中心軸上で最大値をとり外周部に向かうに従って減少する分布をとる。FR 出口から 4 mm 下流の中心軸上においても温度は約 5,500K 以上を維持しており，また，FR 内の温度は後述の図 10 に示すように FR 噴出後の温度より高温である。つまり，いずれの領域においてもプラズマ流の温度は高融点材料の融点に比べ十分高い値を有している。また，圧力を減じた場合，等温線は径方向および軸方向に広がり，高温領域は拡大するので，プロセスの大面積化が期待で

図3 アーク電圧対アーク電流の関係
Fig.3. Arc voltage vs. arc current for three feed rings.

図4 実験により測定したFR噴出後の
プラズマジェット温度分布
Fig.4. Temperature fields of the plasma
jet measured in experiment for different
two pressures.

きる。

一方、速度分布も低圧力下では高速度の領域が拡大する。例えば中心軸上でFR出口から50mm下流で

(a) 760 Torr (b) 100 Torr

図5 実験により測定したFR噴出後の
プラズマジェットの速度分布
Fig.5. Velocity fields of the plasma jet
measured in experiment for different two
pressures.

速度は約100m/sであるが、低圧力下では同位置の速度は約530m/sと高速になる。すなわち、圧力を減じることににより高温高速の領域が拡大することになる。

〈3・2〉 微粒子生成に及ぼす圧力の影響 プラズマジェットを用いるプロセスでは粉末材料の加熱過程の制御が重要である。ここでは材料粒子とプラズマ流の相互作用を微粒子生成を通して実験的に検討する。特に容器圧力およびFR長が微粒子生成に及ぼす影響について、処理材料として Al_2O_3 を用いた場合を例に検討する。

(1) FR長が微粒子生成に及ぼす影響 プラズマ流に対し材料供給を行った場合に回収された生成粒子のSEM写真を、処理前の粒子と比較して図6に示す。どのFRを使用しても同様の観測結果が得られるため、ここではFR1(加熱を受ける距離 $l_m=6\text{mm}$)で得られた結果の一例を示す。処理前の材料粒子は(a)図に示すように不定形な多角形状をしている。これに対し回収された生成粒子は(c), (e)図に見られるように、大部分が $5\mu\text{m}$ 以下に微粒子化されている。またその形状は、 $P=760\text{Torr}$ ではほとんどが球状を呈するが、 100Torr では不規則な形状の粒子が含まれる。これは減圧下におけるプラズマジェットが著しく高速度のため加熱溶融した材料粒子が高速でコールドフィンガや捕集板に衝突するためと考えられ

l は FR 出口から回収位置までの距離

図 6 Al_2O_3 粒子の SEM 写真
Fig. 6. SEM photographs of raw powder materials and fine particles prepared.

る。しかし、いずれの圧力においても、更に高倍率で観察すると(b), (d)図に見られるような超微粒子と呼ばれる $0.1\mu\text{m}$ 以下の微粒子が密集している状態が確認される。これらの SEM 写真より、単位面積 ($0.1 \times 0.1\text{mm}^2$) あたりの粒子数 (粒子数密度) を求め、その粒径分布を調べると、回収された粒子数の約 99% が粒径 $0.1\mu\text{m}$ 以下であった。処理前の材料粒子の粒径分布は、 $10 \sim 44\mu\text{m}$ で $12 \sim 20\mu\text{m}$ の粒子が約 75% を占めていること、および Al_2O_3 の沸点が $3,773\text{K}$ の高温であることを考慮すると、注入された粒子はプラズマ中の高温領域までうまく侵入し、溶融・蒸発が行われているものと考えられる。注入された材料粒子に対する微粒子化された粒子の割合については現在検討中であるが、減圧下においても本装置を用いて高融点材料の微粒子化が十分可能であることがわかる。

次に、FR 長の変化が超微粒子の生成に及ぼす影響を図 7 に示す。この図は FR 出口から回収位置までの距離 (l) に対して、捕集された生成粒子のうちの超微粒子の数密度を示したものである。ここでは粒子の数密度の l 依存性を問題としているが、実験では FR 出口からコールドフィンガ先端までの距離 L をいろいろ変化させて粒子を回収した。図 7 にはそのデータをプロットしている。そのため同一の l の位置に観測値が 2 個存在する場合がある。

FR 1 ($l_m=6\text{mm}$) を使用した場合には l の増加に伴い粒子数密度が減少する傾向を示すが、FR 2 ($l_m=$

(a) 760 Torr

(b) 100 Torr

図 7 Al_2O_3 超微粒子 (半径 $\leq 0.1\mu\text{m}$) の数密度の軸方向分布

Fig. 7. Number density of Al_2O_3 ultrafine particles (diameter $\leq 0.1\mu\text{m}$) as a function of the distance from the FR exit.

12mm), FR 3 ($l_m=18\text{mm}$) では l に無関係にほぼ一定値となっている。また、FR 1 ($l_m=6\text{mm}$) と比較して FR 長の長い FR 2 ($l_m=12\text{mm}$), FR 3 ($l_m=18\text{mm}$) のほうが回収される超微粒子の粒子数密度が高い。この FR 長を延長すると回収される粒子数が増加する傾向は減圧下ほど顕著である。一例として $l=80\text{mm}$ における粒子数密度を挙げる。まず、FR1 ($l_m=6\text{mm}$) を装着した場合、圧力を 760Torr から 100Torr に減じると回収される粒子数は約 $1/2$ に減少す

る。しかし、FR3 ($l_m=18$ mm) を装着すると、760 Torr では FR1 ($l_m=6$ mm) の約2倍の約 6×10^5 個、100 Torr では約10倍の約 9×10^5 個に増加する。すなわち、一般論として予測されるごとく圧力を減じると回収される粒子数は減少する。しかし、FR長を延長すれば大気圧下と同程度の生成粒子を回収することができることがわかる。このように、回収された超微粒子の粒子数密度が増加するのはFR長を延ばすことによって生成量そのものが増加したためと考えられる。

以上の実験結果と後述の計算結果を考え合すると、容器圧力を減じるとプラズマ流から材料粒子への熱伝達量が低下し、粒子は加熱されにくくなるが、FR長を延長することで粒子加熱が改善されることがわかる。

また著者らは Al_2O_3 粒子よりも更に高融点を有する ZrC、TiC についても同様の結果を得ている⁽⁶⁾。

(2) プラズマジェットの温度とFR長の関係

ここでは(1)項で述べた、FRを延ばすことによる回収粒子数密度の増加とプラズマジェットの温度分布の関係について考える。

図8はFR出口から4 mm 下流の位置におけるプラズマジェットの温度の径方向分布をFR1 ($l_m=6$ mm) とFR3 ($l_m=18$ mm) について示したものである。図よりプラズマジェット軸線上の温度は $P=760$ Torr

図8 プラズマジェットの分光学的温度の径方向分布

Fig. 8. Radial profiles of the spectroscopic temperatures in the plasma jet.

ではFR1 ($l_m=6$ mm) で約6,800K、FR3 ($l_m=18$ mm) で約5,500K、100 Torr ではFR1 ($l_m=6$ mm) で約6,900K、FR3 ($l_m=18$ mm) で6,200Kとなる。従って、両FRとも処理材料に用いた Al_2O_3 の沸点を大幅に上回る高温を有することがわかる。また、特に減圧下ではFR長を延ばした場合中心温度は約700Kしか低下せず、 Al_2O_3 の沸点にほぼ等しい約4,000Kの温度を有する半径は2.5 mm から3.5 mm に拡大する。更に、材料送給口から温度測定点までの軸線上の距離がFR3 ($l_m=18$ mm) はFR1 ($l_m=6$ mm) に比べ12 mm も長いことを考慮すると、 Al_2O_3 を蒸発させることが可能なプラズマ流の体積は増加したことになる。つまり、FR長を延ばすことによってFR内のプラズマ流の高温・高密度な領域が拡大されたことがわかる。このためプラズマ流から材料粒子への熱伝達量が増加しFR内における粒子加熱が効果的に行われ、(1)項で示したように微粒子化が促進されたと考えられる。

(3) プラズマ流中の粒子の加熱過程の計算

ここでは、上記の実験結果の定性的な検討のためにも、単一粒子モデルを用いてプラズマ流中での注入粒子の軌跡および温度履歴を計算し、容器圧力が粒子加熱に与える影響について検討した。

(i) 計算モデル 図9に計算モデルを示す。アーク放電にガスを吹付け、得られたプラズマジェットは、陽極下流に接続されたフィードリングを通過し圧力容器内に噴出する。材料粒子はフィードリング入口から3.5 mm 下流側の位置でプラズマ流に垂直に注入され、プラズマ流の粘性により加速を受けると同時に粒子とプラズマ流との温度差に応じた熱を得、溶融、蒸発を行う。更に、下流のプラズマジェット中では逆に粒子は冷却され凝固し微粒子が形成される。

注入された粒子の速度および温度は以下の運動方程式、熱収支式⁽¹¹⁾を解いて求めた。なお、計算に必要なプラズマ流の温度と速度はFR噴出後のプラズマジェットについては図4、図5に示す測定結果を用いた。また、FR内のプラズマ流の温度および速度については、その二次元分布の計測が困難であるため、ここでは朴ら⁽¹²⁾が管内プラズマ流の計算に対して用いた手法を導入し、FR出口での温度および速度の測定値を境界条件として計算によって求めた値⁽¹³⁾を使用した。その結果を図10、図11に示す。比較のために、図10には同じ実験条件で得られた温度の実測値をプロットしている。計算値は実験値と大差はないため、FRノズル内の温度分布にこの計算値が十分使用できることがわかる。

図 9 計算モデル
Fig. 9. Simulation model.

図 10 計算により求めた FR 内のプラズマ流の温度分布

Fig.10. Calculated temperature fields of the plasma flow in the FR for different two pressures.

図 11 計算により求めた FR 内のプラズマ流の速度分布

Fig.11. Calculated velocity fields of the plasma flow in the FR for different two pressures.

運動方程式

軸(z)方向

$$\frac{dV_z}{dt} = -\frac{3}{4} C_D \frac{\rho_g}{\rho_p D_p} V (V_z - V_g) + g \dots (1)$$

径(r)方向

$$\frac{dV_r}{dt} = -\frac{3}{4} C_D \frac{\rho_g}{\rho_p D_p} V V_r \dots (2)$$

ただし、V は平均速度で

$$V = \{(V_z - V_g)^2 + V_r^2\}^{1/2}$$

熱収支式

$$(1) \quad T_p < T_m, \quad T_m < T_p < T_v$$

$$m_p C_{mp} \frac{dT_p}{dt} = h_p S_p (T_g - T_p) \dots (3)$$

$$(2) \quad T_p = T_m$$

$$m_p L_m \frac{dT_p}{dt} = h_p S_p (T_g - T_p) \dots (4)$$

$$(3) \quad T_p = T_v$$

$$\frac{\rho_p \pi D_p^2}{2 L_v} \frac{dT_p}{dt} = h_p S_p (T_g - T_p) \dots (5)$$

ここで、 C_D : 抗力係数、 V_g : プラズマ流の速度、 ρ_g : プラズマ流の密度、 V_z : 粒子の軸方向速度、 ρ_p : 粒子密度、 V_r : 粒子の径方向速度、 m_p : 粒子の質量、 L_m : 融解熱、 C_{mp} : 粒子の比熱、 L_v : 蒸発熱、 h_p : プラズマ流と粒子間の熱伝達係数、 T_g : プラズマ流の温度、 S_p : 表面積、 T_p : 粒子温度、 t : 時間、 T_m : 粒子の融点、 g : 重力加速度、 T_v : 粒子の沸点、 D_p : 粒子径

(1)式の右辺第1項は流体によって粒子に働く抗力であり、第2項は重力加速度である。また、(3)～(5)式の右辺はプラズマ流から粒子への対流および熱伝達による熱輸送量を表す。

低密度気体中（低圧力下）を運動する粒子に対しては熱および運動量伝達に関して非連続効果（クヌーセン効果）が無視できなくなる。本計算ではこの効果は抗力係数および熱伝達係数を求める際に使用するヌッセルト数に含まれる。抗力係数には Phillips⁽¹⁴⁾の値を用い、ヌッセルト数は Apeliad⁽¹⁵⁾の方法によって求めた。

粒子の温度は以下の①～④の手順を繰返すことによって求めた。

① (1), (2)式を連立して解き、粒子のある時刻での位置および速度を算出する。

② その粒子の位置におけるプラズマ流の温度を図4または図10から読取る。

③ このプラズマ流の温度を粒子の状態に応じて(3)～(5)式のいずれかに代入し、粒子の温度を求める。

④ 時刻を Δt だけ進める。

なお、ここでは粒子加熱が容器圧力によりどのような影響を受けるかに注目して容器圧力依存性の定性的・半定量的な検討を目的としている。そこで、簡単

のためプラズマ流の半径方向速度は考慮せず、粒子はプラズマ流中の高温の領域を通過し、もっとも効果的に加熱される場合について考えた。すなわち、粒子は図9に示すように、FR壁面からプラズマ流に対し垂直に注入され、FR出口でプラズマ流の中心軸上の位置に到達し、更にFR噴出後はプラズマ流の中心軸上を飛行するとした。粒子の初速度としては前述の軌跡を描くよう選定し、また粒子の初期温度は300 Kとした。

(ii) 計算結果および検討 図12は容器圧力ならびに粒径の違いがFR内での粒子の速度に及ぼす影響を示している。注入された粒子はこの領域ではプラズマ流によって加速され、下流に進むほど高速度となる。そして、この傾向は粒径が小さくなるほど強くなる。各粒子に対するプラズマ流中での滞留時間を求めると粒径10, 20, 30 μm に対して大気圧下では, 73, 134, 169 μs , 低圧力下では 94, 151, 170 μs となる。つまりFR内のプラズマ流中で滞留時間は粒径に大きく依存する。

注入された粒子の温度は図13に示すように $P=760$ Torr では急激に加熱され直径の小さな粒子は融点を経て沸点に達し、蒸発を始める。粒径が大きくなると、加熱される粒子の体積（熱容量）が増すため、粒径30 μm の粒子は沸点に達しない。すなわち、粒子の到達温度は粒径に依存する。一方低圧力下 ($P=100$ Torr) では、粒子は大気圧下に比べ加熱されにくくなり、FR出口（図の横軸が6 mmの位置）にお

図12 直径の異なる材料粒子 (10, 20, 30 μm) のFR内の速度

Fig. 12. Calculated particle velocities for three different diameters (10, 20, 30 μm) in the FR as a function of the distance from powder feeding port.

図13 直径の異なる材料粒子 (10, 20, 30 μm) のFR内の温度

Fig. 13. Calculated particle temperature for three different diameters (10, 20, 30 μm) in the FR as a function of the distance from powder feeding port.

る粒子温度は1,200K から 1,470K の範囲であり、粒径による温度差はほとんどない。プラズマ流中の滞留時間はほぼ等しいにもかかわらず、このように粒子加熱が容器圧力により大きく異なるのは、低圧力下ではクヌーセン効果が強くなりプラズマ流から粒子への熱伝達率が大きく低下するためであることがわかる。FR 出口での熱伝達率を求めてみると、例えば粒径 30 μm の場合低圧力下では大気圧下の約 1/4 にまで低下する。

FR を通過した粒子は引続き圧力容器内に噴出したプラズマジェット中を飛行するが、このときの粒子の温度、速度の計算には FR 出口での先の計算結果を初期値境界値 (図 12, 図 13 に示す 6 mm での値) として用いた。

図 14 は FR 噴出後の粒子の速度の変化を示す。粒子はいずれの条件下でも更に加速を受けるが、粒子の速度 V_p がプラズマ流の速度を超えると徐々に減速される。プラズマ流の速度が雰囲気圧力によって大きく異なり、低圧力下ではプラズマ流の速度は大気圧下に比べ著しく速いため注入粒子は FR より離れた位置でも高速で飛行する。

粒子温度の変化について図 15 に示すように、粒子はプラズマ流の温度 T_p に等しくなる位置まで加熱さ

れ、これを超えると冷却を受ける。その冷却効果もまた容器圧力により異なる。大気圧下では粒子は気相、液相、固相という状態変化を行い、その温度履歴は粒径により大きく異なる。一方、減圧下ではプラズマ流から材料粒子への熱伝達率が小さいために、粒子は融点または融点に近い温度に達するのみで粒径による温度履歴の違いはほとんどない。

上記の結果は粒子の加熱・冷却過程が容器圧力により大きな差を生じることを示している。すなわち、①大気圧下では粒子は急激に加熱され、その温度履歴は粒径に大きく依存する、②低圧力下ではクヌーセン効果が大きいので粒子は加熱されにくく、ほとんどの粒子は融点または融点の近くまでしか加熱されず、温度履歴の粒径による違いも小さい、更に、③低圧力下では粒子は FR より離れた位置においても高速で飛行する、ということがわかった。

以上の結果を熱プラズマプロセスへの応用の観点から整理してみる。一般的なプロセス条件として、例えばスプレイコーティングの場合は熔融状態にある粒子を高速で基板に衝突させることが重要であり、微粒子化を行う場合は粒子を沸点まで加熱し蒸発させることが必要である。これを計算結果と対応させて考えるとプロセス条件として低圧力下の場合がスプレイコーティングに適しており、大気圧下の場合が微粒子化に適しているといえる。本装置を用いた予備的な実験結果でも大気圧下では多数の微粒子が捕集され、低圧力下

図 14 直径の異なる材料粒子 (10, 20, 30 μm) の FR 噴出後の速度

Fig. 14. Calculated particle velocities for three different diameters (10, 20, 30 μm) in the plasma jet as a function of the distance from the FR exit.

図 15 直径の異なる材料粒子 (10, 20, 30 μm) の FR 噴出後の温度

Fig. 15. Calculated particle temperature for three different diameters (10, 20, 30 μm) in the plasma jet as a function of the distance from the FR exit.

では溶融状態の粒子が多いことが確認されており⁽¹²⁾、ここで得られた理論的予測を裏付ける結果となっている。すなわち、概して低圧力下では粒子は加熱されにくいことを示している。ところが、プロセスの高品質化・大容量化を目指すには微粒子化、スプレイコーティングなどの処理を低圧力下で行う必要がある。このためには、低圧力下での熱伝達量の増加を図らなければならない。この方法としては、①プラズマ流の高温化、②滞留時間の延長、③熱伝達率の増加、が考えられる。①については発生器の絶縁収束部を延長することで効果的にアーク入力を増加させることが可能であることを確認している。②、③についてはFRの軸長をのばすことにより高温高密度のプラズマ流の領域が拡大され、熱伝達量の増加が可能であると考えられる。〈3・2〉節(1)項ならびに(2)項に示した実験結果はこれと定性的によく対応している。

4. おわりに

強制伸長型プラズマジェット発生器の前面に材料送給用のFRを備えたプロセッシング装置⁽⁹⁾を対象に、この装置の減圧下での高融点材料処理への応用可能性について検討した。その結果を要約すると、

(1) 本装置を用いて、高融点材料の超微粒子が多数回収された。特に減圧下でFR長を延ばすことにより生成粒子数の増加が著しい。FR 1 (加熱を受ける距離 $l_m=6$ mm) とFR 3 ($l_m=18$ mm) を、例えばノズル出口から80 mm下流の位置で比較すると $P=760$ Torr ではFR 1 ($l_m=6$ mm) の約2倍に、 $P=100$ Torr では約10倍に増加する。

(2) Al_2O_3 (融点 $2,040^\circ C$) だけでなく、更に高融点を有するTiC (融点 $3,140^\circ C$)、ZrC (融点 $3,570^\circ C$) についても超微粒子が多数回収された。

(3) プラズマジェット発生器の基礎特性に影響を及ぼすことなくFR長を延ばすことによりプラズマ流の高温・高密度な領域を拡大することが可能である。FR長の最適値がいくらになるかは今後の検討課題である。

(4) 単一粒子モデルによる解析ではあるが、粉末粒子のプラズマ流中での加熱過程を定性的には十分に、更に半定量的に検討した。プラズマジェットを減圧下の熱プラズマプロセスに応用するためには、プラズマ流から材料粒子への熱伝達量を増加することが重要であり、このための有効な指針が得られた。

以上より、本装置はFR長によりプラズマ流から材料粒子への熱伝達量の制御が可能であり、大気圧下だ

けでなく減圧下においても高融点材料処理に十分有効であることがわかった。

最後に、御激励いただく本学名誉教授 佐伯節夫先生に感謝します。本研究に対して御討論いただいた大崎 堅助教授、内藤裕志助教授に感謝します。また、本研究に御協力いただいた、恩塚辰典、酒井広隆、渡辺 真、小田勝之助、平原徹也の諸君に感謝します。
(平成3年5月2日受付、同3年10月28日再受付)

文 献

- (1) 板谷：電学誌，110，167 (平2-3)
- (2) 明石：溶融塩，28，234 (昭60)
- (3) 武田：金属学会会報，24，822 (昭60)
- (4) M. Yoshitaka, T. Yoshida & K. Akashi: *Rev. Sci. Instrum.*, 60, 248 (1988)
- (5) S. Saeki, O. Fukumasa & K. Osaki: *Proc. 8th ISPC 1989* (1987)
- (6) 福政・恩塚・崎山・大崎・佐伯：第6回プラズマプロセッシング研資，p. 341 (平元)
- (7) 崎山・平原・福政・内藤・大崎：第8回プラズマプロセッシング研資，p. 453 (平3)
- (8) 佐伯・内山：山口大学工学部研究報告，27，113 (昭51)
- (9) S. Saeki, O. Fukumasa, K. Matubara, K. Osaki & I. Yamada: *Proc. 9th Symp. on ISAT '85*, p. 31 (1985)
- (10) S. Saeki, O. Fukumasa, K. Osaki & K. Matubara: *Proc. 10th Symp. on ISAT '86*, p. 143 (1986)
- (11) P. Fauchais, E. Boudrin & J. F. Couder: *Topics in Current Chemistry 107, Plasma Chemistry IV*, p. 93 (1983) Springer Verlag
- (12) 朴・本田・神沢：化学工学論，13，613 (昭62)
- (13) 崎山・恩塚・渡辺・酒井・福政・内藤・大崎・佐伯：山口大学工学部研究報告，40，243 (平元)
- (14) W. F. Phillips: *Phy. Fluid*, 18，1089 (1975)
- (15) D. Apeliad, D. Wei & M. Paliwal: *Thin Solid Films*, 118，395 (1984)

福 政 修 (正員)

昭和21年1月8日生。48年3月京都大学大学院工学研究科電気工学専攻修士課程修了。同年4月同大学助手。57年山口大学工学部講師，58年同助教授，63年同教授，現在に至る。工学博士。プラズマ理工学，放電物理，プラズマ化学に関する研究に従事。物理学会，プラズマ・核融合学会，電子情報通信学会，照明学会会員。

崎 山 智 司 (正員)

昭和33年9月17日生。58年3月山口大学大学院工学研究科電気工学専攻修士課程修了。同年4月同大学工学部助手，現在に至る。放電物理，プラズマ化学に関する研究に従事。物理学会会員。