プラズマ荷電による微粒子の分級と物質の同定[†]

黒 部 利 次* 今 中 治** 池 野 昌 彦***

Fine Particle Classification and Identification by Using Glow Discharge

by

Toshiji KUROBE*, Osamu IMANAKA** and Masahiko IKENO***

A plasma-assisted fine particle classification and identification method has been developed by using a Geisler tube with a coneshape electrode. A particle is charged in plasma, in which its surface is covered with the sheath made of double layer of negative and positive ions. The charged particle flies to the positive electrode under high voltage. The flying mode, however, is influenced by the gravity, the collision of plasma ions with the flying particles and the viscosity of the constituent non-charged gas molecules. The newly-developed classification setup is made with three main parts; the Geisler tube, a powder supplier and an evacuation system. The fine powders such as alumina, silica, silicon carbide were classified under the condition of DC voltage of 500 V and the tube current of 30 mA at 2.0 Torr (2.7×10^{-2} Pa). It is found from the experiments that the finer particles fall down near the upper side of cone electrode, but the coarser ones fly apart from it and that the grains with different mechanical and physical properties can be identified.

キー・ワード：分級，グロー放電，微粉，物質の同定

1 緒 言

近年，電子材料，セラミックス等の分野では高品位に分級された微粒子に対する需要が次第に大きくなってきている。一般に，分級は微粒になるにつれて難しくなる^{2,3)}。微粒子分級法の一つとして前報で¹⁾，プラズマを援用した微粒子分級法の実験的検討結果について報告した。分級は，ガイスラー放電管中の陽光柱部に被分級微粉を自然落下の形で供給することにより行った。実験から，プラズマを利用して粒子分級が行えることが明らかとなった。しかし，本分級法は粒子の一方向飛翔の形式をとっており，生産性の観点からさらに工夫が必要と感じられた。

本研究は，粉体の飛翔方向を 2π ラジアンとし，粒子が鉛直下方に飛翔する形式の分級法について実験的検討を行ったものである。すなわち，粉体を上部電極円形開口端より供給し，下方に配置されている円すい（傘型）電極へ飛翔させる形式の分級法について検討した。さらに本研究では，異種粒子が混在する微粉体のいわゆる物質分級の可能性についても調べた。その結果幾つかの興味ある知見が得られたので報告する。

2 分 級 原 理

分級を行うガイスラー管内の放電状態を Fig. 1 に示す。ガイスラー管に直流電圧が印加されると，管内には図に示すような放電じま（模様）が生ずる。それらの明暗部は上から，Aston暗部，陰極グロー，Crooks

暗部，負グロー，Farady暗部，陽光柱，陽光柱暗部，陽光グローとそれぞれ呼称されている。図に示すように，それらの各部で輝度や電位，電場の強さ，空間電荷，負・正電荷密度の値が異なる。被分級粉体は図に示すように，上部電極円形開口端より供給される。

Fig. 1. Schematic illustration of particle classification.

いま，管内のプラズマは安定であるとし，その中へ粉末粒子が1個自然落下する場合を考える。その際粒子は帯電していないものとする。プラズマは電子とイオンによって構成される準中性の気体であるので，その領域へ粒子が侵入するとプラズマの中性が破られ，直ちに電子が粒子に飛来することになる。すなわち，粒子は負に帯電する。つぎに，その負電荷を打ち消す

[†] 原稿受理 昭和60年8月14日 Received Aug. 14, 1985

* 正 会 員 金沢大学工学部 金沢市小立野, Faculty of Engineering, Kanazawa University, Kodatsuno, Kanazawa

** 正 会 員 富山職業訓練短期大学校 魚津市川縁, Toyama Vocational Training College, Kawahuchi, Uozu

*** 金沢大学大学院 金沢市小立野, Graduate Student, Kanazawa University, Kodatsuno, Kanazawa

べくプラス電荷をもったイオンが粒子の表面に飛来する。前報⁶⁾で考察したように、粒子はシース (Sheath) という衣を被った状態となる。すなわち、粒子表面には負電荷と正電荷のいわゆる電気二重層が形成される。Fig. 2 にその様子を示す。前報¹⁾での解析から表面の電荷量 Q は次式で与えられる。

$$Q = \pi r^2 N \{ q_e n_e < C_e \rangle (1 + e^{- (V_s / T_e)}) - 2 q_i n_i < C_i \rangle \} \quad (1)$$

Fig. 2. Charging model of particle.

ここで、 r は粒子を球と仮定したときの半径、 N は単層の電子吸着時間、 q_e , q_i は電子、イオン 1 個当りの電荷量、 n_e , n_i は単位面積当りに飛来する電子、イオン数、 $< C_e \rangle$, $< C_i \rangle$ は電子、イオンの平均速度、 V_s はシース電位、 T_e は電子温度相当電圧値である。

シースという衣を被った帯電粒子がプラズマ管に入るわけであるが、そこでは管軸方向に電場 E_z が作用しているため、粒子には

$$F_1 = QE_z \quad (2)$$

なる力が働くことになる。粒子はこれらの力を受けてプラズマ管内を飛翔する。帯電量は式(1)から粒径に依存するので、粒径の大小によって働く力も異なることになる。すなわち、分級は粒子の飛翔状態を計測することによってなされる。

3 実験方法

3.1 分級装置

作製した円すい電極型粒子分級装置の模式図を Fig. 3 に示す。装置は、アクリル大円筒容器上端部に粉体供給装置①を配置し、内部に有孔円板電極②、有孔円すい電極Ⅰ～Ⅲ③、バケット④を設置した構成となっている。さらに、プラズマを発生させるため、排気装置と直流高圧電源が配置されている。

アクリル大円筒の大きさは、内径 300 mm、外径

Fig. 3. Classification setup.

320 mm、高さ 300 mm であり、上端密閉、下端開放型となっている。真空容器としてアクリルを使用したのは、放電プラズマの状態が外から透視でき、分級の状況が目視で観察し得るためである。Fig. 3 に示す③の円すい電極はアルミニウム製 (厚さ 0.8 mm) であり、上端有孔直径 30 mm、底面直径 160 mm、斜辺の長さ 100 mm の傘型である。Ⅰ～Ⅲの電極はいずれも同じ寸法形状である。Ⅰ、Ⅱ、Ⅲの電極間隔は 80 mm 一定となっている。上部有孔電極と円すい電極Ⅰの間隔は 30 mm である。捕集用バケット④は円すい電極に接して置かれ、電極円周上に互いに 90 度の間隔で 4 箇所配置されている。図に示すように、鉛直方向には 40 mm 間隔で紙製 (40 × 25 × 15 mm) のバケットが 5 個取り付けられている。

ここで、粒子分級に有孔円すい電極③を用いたのは次の理由による。Fig. 3 に示すように、電圧の印加方向および重力の作用方向が鉛直であり、被分級粒子の流れは下方になる。精密な分級を行うためには、粒子の流れをできるだけ 2π 方向に拡げる方が望ましい。円板状電極を選定した理由である。また、それを円すい (円すい角 2α) 状にすることによって、飛翔距離を $1/\sin \alpha$ 倍に拡大できる。ただし、 α が小さすぎると被分級粒子が電極に付着することなく、すべる。両者の摩擦係数を考慮して決めなければならない。

3.2 粒子分級と物質分級の手順

粒子分級試験は下記の手順により行った。①分級に供する粉末粒子をデシケータ内に 48 時間以上保持し乾燥を行う。②円すい電極およびバケットを適正な位置に配置し、容器内をクリーンにした後密閉する。③デシケータより粉末粒子を所定量取り出し粉体供給装置に入れる。④油回転ポンプにより装置内を排気し、 2.7×10^{-2} Pa (2.0 Torr) の真空度にする。⑤電極間に直流電圧を印加 (約 500 V) し、プラズマを発生 (管電流 30 mA) させる。⑥所要のプラズマが発生したら、粒子落下口のふたを徐々に開けプラズマ管内に粉末粒子を供給する。その際、粒子の流れが滑らかとなるよう配慮した。

分級試験終了後次の方法で粒子径を測定した。管内を大気圧に戻した後、Fig. 4 に示す位置 (1, 2, 3... の数字の位置) でサンプリングし、光学顕微鏡で粒径を測定した。分級に供した粉体は、アルミナ Al_2O_3 (WA #1000)、炭化ケイ素 SiC (GC #1000)、シリカ SiO_2 (10 μm 以下) の 3 種である。

物質分級試験は次のように行った。平均粒径のほぼ等しいアルミナ、炭化ケイ素、シリカの各粉体を等量混合しデシケータ内で乾燥を行う。分級試験の方法は先に記した粒子分級の方法と同じである。試験終了後の分級状態 (物質分級) の観察は X 線マイクロアナ

Fig. 4. Sampling position.

イザー (島津, EMX-SM 型) を用いて行った。

4 実験結果および考察

分級試験の一例を Fig. 5, 6 に示す。図において、円すい電極の場合は、横軸は電極上端部からの距離を表し、縦軸は粒径を表している。バケットの場合は横軸はバケット番号を表している。図中のバーは粒径のばらつきの程度 (2σ (標準偏差)) を示しており、○印は平均粒径を表す。粒径の測定は、分級後撮影した写真からランダムサンプリングにより 100 個の粒子を抽出し、そのフェレー (Feret) 径を測定することに

より行った。

Fig. 5 は炭化ケイ素, Fig. 6 はアルミナの測定結果を表している。これらの図から、粒径は円すい電極が I ~ III へと移るにつれて大きくなることがわかる。また、電極を固定して眺めた場合、上部開口端からの距離が増すにつれて粒径が大きくなる。バケットでは、円すい電極の場合よりも大きな粒子が補集される。

平均粒径のほぼ等しいアルミナ、炭化ケイ素、シリカ微粉末を等量 (1 gr) ずつ混合した試料について分級 (物質分級) した結果を Fig. 7 に示す。サンプリングは円すい電極 II について行い、電極上端から 20, 40, 60, 80, 100 mm の各位置で両面接着テープにより被検試料を採取した。X線マイクロアナライザーで観察するため、微粉の付着しているテープを所定の寸法 (8 mm 角) に切断し、黄銅製支持台に貼り付け金蒸着を行った。面分析は $AlK\alpha$ 線, $SiK\alpha$ 線について行った。Fig. 7 で黒塗りの粒子はアルミナであり、白ぬきの粒子は炭化ケイ素またはシリカの粒子である。図から明らかなように、円すい上端から下端にいくにつれて炭化ケイ素、シリカの割合が減少し、逆にアルミナの割合が増加しているのがわかる。これはアルミ

Fig. 5. Relation between particle size and flying distance (Silicon carbide).

Fig. 6. Relation between particle size and flying distance (Alumina).

Fig. 7. Particle identification.

ナが遠くへ飛翔したことを物語っている。すなわち、物質分級が行われたことを意味している。

第2節の分級原理のところで記したように、被分級微粉末はプラズマ中で帯電し、電場から力を受けて飛翔すると考えられるが、Fig. 5, 6 に示した実験結果はこれを実証したものといえる。また、物質によって帯電状態に差異（物質によって誘電率が異なる）が生ずると考えられ、それがため異種混合粉体の各個物質の飛翔距離に違いが生ずるはずである。Fig. 7 に示した実験結果はこのことを実証したものと考えられる。

このように、粒子分級は基本的にはプラズマ中に落下した粒子が帯電することにより行われるが、以下に分級の状態について少しく考察する。粒子の帯電量は、粒子の表面積すなわち粒径 d の2乗に比例すると考えられる。したがって、粒子の比帯電量（帯電量/質量）は $1/d$ に比例する。この比帯電量は粒子の飛翔を考える上で重要な因子と思われる。概括的に言えば、比帯電量が大きければ（ d が小：微粒）帯電効果が顕著となり、電場から受ける力の影響が大きく、逆に小さければ（ d が大：粗粒）重力効果が著しくて、電場から受ける力の効果が小になる。このことは微粒ほど電極に引き付けられやすいことを意味する。微粒になるほど円すい電極上端側に捕集されるはずである。粗粒の場合は、重力作用の他プラズマの流れも影響を及ぼしていると思われる。すなわち、アクリル樹脂を透しての目視から、粒子（粗粒）はプラズマから浮力とラジアル方向への流れ作用を受けていると推察される。必然粗粒子は遠くへ飛翔することになり、円すい電極の外側の方に捕集されることになる。微粒の場合はこれ

Fig. 8. Flying mode of particle.

らの作用は小さいと考えてよい。逆に、径の大きな粒子の落下は遅く、下端側に捕集されることになる。この様子を模式的に表せば Fig. 8 のようになる。これらの考えは実験結果とも大体合うように思われる。

分級空間内を飛翔する微粉粒には、プラズマ帯電に基づく電磁力の他に、重力やプラズマ中のイオンの衝突ならびにイオン化していない気体からの浮力などを受ける。Fig. 8 に示すように、粒子はこれら力の合力方向に飛翔することになる。粒子の飛翔に影響を及ぼす因子としてこの他、①粒子の幾何形状、②粒子表面の物理特性、③かさ比重、等を考慮しなければならない。生産性の立場からは、①粉体供給法に工夫が必要であり、②効率的捕集法の開発等も必要とされる。

前報で述べた陽光柱利用の分級法と円すい電極利用 2π ラジアン法を比較した場合、本分級法は工業生産性に優れているといえる。しかし、Fig. 1 (b) に示すように、場所場所によって電位こう配が異なり、粒子に作用する力も場所場所によって異なると思われる。精密分級を行う場合このことを十分考慮しなければならない。

5 結 論

2π 方位型プラズマ分級装置を試作して粒子分級実験を行った結果、次のような結論が得られ、新しい粒度分級法、物質分級法としての可能性を確認した。

- (1) アルミナ、シリカ、炭化ケイ素等の微粉に関して分級が可能であることを確かめた。
- (2) 粒径のばらつきは、円型開口端からの距離が長くなるにつれて大きくなる。
- (3) バケットに捕集される粒子は円すい電極上のものより大きい。
- (4) アルミナ、シリカ、炭化ケイ素の物質分級が可能であることを確認した。

（昭和57年5月25日 日本材料学会第31期学術講演会にて講演）

参 考 文 献

- 1) 黒部利次, 今中 治, 石橋信彦, 材料, **34**, 1352(1985).
- 2) 井保輝一郎, “粉体—理論と応用—”, p. 459 (1962) 丸

- 善.
- 3) 高分子学会編, “静電気ハンドブック”, p. 439 (1972) 丸善.
 4) Francis F. Chen 著, 内田岱二郎訳, “プラズマ物理入門”, p. 23 (1977) 丸善.
 5) 後藤憲一, “プラズマ物理学”, p. 71 (1967) 共立出版.
 6) 岡田 実, 荒田吉明, “プラズマ工学”, p. 197 (1965) 日刊工業新聞社.
 7) 岡田 実, “プラズマ工学”, p. 197 (1965) 日刊工業新聞社.

書 評

“Polymer Permeability”

J. Comun (編)

(1985年, Elsevier Applied Science Publishers Ltd. 発行, 23×15 cm, 383ページ, ￡45.00)

セラミックス, ガラス, 金属などの材料とは異なり, 高分子材料には物質(主として低分子)を透過する性質があるのが一つの特徴である。この透過性があるが故に, 高分子は材料として利点と欠点をもつ。たとえば, 高分子材料を容器として用いた場合は, 内容物の損失, 汚染が問題となる。また, 接着剤や繊維強化複合材料には水の拡散による劣化が問題となる。他方, 利点の例としては, 染色や薬物の分配などへの応用である。いずれにしても, 透過性は高分子材料の実用化と深くかかわっている重要な性質である。

本書は最近数年間の高分子の透過性に関する基礎的研究の成果をまとめ, また, 応用研究の成果を集めたものである。第1章では拡散の数学的基礎が入門的に解説され, 続く第2章では高分子系における気体透過現象の基礎が解説されている。第3章では高分子材料の応用上重要な問題と関連深い Case II 収着挙動についての解説がある。次につづく6章では, 酸素透過性と材料劣化の問題および安定剤との関連, 接着剤, 薬物の移送と分配の制御, 包装材料, 電子材料やオプトエレクトロニクス・デバイスの被覆およびカプセル化と透過性の問題, 複合材料における水の透過とその影響など, 透過性が問題になる応用分野における諸問題が具体的実例とともに論じられている。

本書は, 食品包装, 製薬, 接着剤, 電子部品の製造など, 高分子材料を利用した分野の各産業における研究者, 技術者に有益な内容をもつものである。

(京都大学工学部 浅田 忠裕)