

プラズマジェット中に注入された 粒子の加熱・冷却過程の解析

崎山智司*・恩塚辰典**・酒井広隆***・渡辺 真***
福政 修*・大崎 堅****・佐伯節夫*****

Analysis of Particle Heating and Cooling in the Plasma Jet Reactor

Satoshi SAKIYAMA, Tatsunori ONZUKA, Hirotaka SAKAI,
Makoto WATANABE, Osamu FUKUMASA, Katashi OSAKI
and Setsuo SAEKI

Abstract

In the plasma processing with plasma jet reactors, powder materials are injected into the plasma flow. Then it is important to study interaction between the plasma flow and injected powder particles. In this paper, by using a single particle model for processing, we have calculated the temperature and the trajectory of the particle injected into the plasma flow at different pressures (760 Torr, 100 Torr) with various particle diameters ($5\mu\text{m} \sim 20\mu\text{m}$).

According to the numerical results, particle heating and cooling depend strongly on the pressure in the reactor. At 760 Torr all particles are heated up to boiling point in the feed ring and cooled rapidly out of the feed ring. On the other hand at 100 Torr the particles whose diameters are larger than $15\mu\text{m}$ can't be reached boiling point in the feed ring and they keep high temperature above melting point in the downstream region far from the feed ring exit. Numerical results are also compared with experimental ones.

1 まえがき

近年プラズマのもつ高温高活性の性質を材料プロセスや加工に応用する試み¹⁾が促進され、一部は実用技術として重要な役割を果たしつつある。特に熱プラズマとして著名なプラズマジェットを用いるプロセッシング²⁾は高融点材料の溶射³⁾や微粒子化⁴⁾などに利用されてい

る。これらのプロセッシングではプラズマジェット中に処理材料を粉末粒子として注入することが多く、この場合注入された材料粒子の過熱、冷却過程などに関し高精度の解析を行なうことはプロセスの向上をはかる上で非常に重要となる。

熱プラズマを用いて粒子を加熱する場合は粒子はプラズマの中心部の高温領域を通過することが有効である。プラズマジェットの場合にはノズル噴出後径方向への拡散再結合による損失が大となり、中心温度は低下し、粒子の加熱効率は低くなる。処理材料を効率よくプラズマ中に送給し加熱するためには、ノズル陽極の下流側に処理材料送給口を有する同じくノズル状のフィードリング (以下FRと略す) を設置する方式⁵⁾が有効である。

筆者らは強制伸長型プラズマ発生器⁶⁾のノズル出口にFRを接続したプロセッシング装置を用いて、高融点材

*工学部電気工学科

**大学院電気工学専攻

(現日本電気株式会社)

***工学部電気工学科

(現大学院電気工学専攻)

****工業短期大学部電気工学科

*****九州共立大学

料の超微粒子の生成、皮膜の形成などについて実験的研究を行ってきた。⁷⁾⁸⁾ここでは、これまでの実験結果を参考にしながら、材料粒子とプラズマ流との相互作用について理論的かつ基礎的な検討を行なった。⁹⁾即ち、プラズマ流内に単一粒子を注入したと仮定し、プロセス条件が粒子の軌跡および温度履歴に与える影響を計算によって調べた。また、その結果をもとに前記装置のプラズマプロセスへの適応性を検討した。

2 プラズマ流の温度場および速度場

粒子の加熱過程を計算で求める場合、プラズマ流の温度と速度が必要となる。これらの値としては以下に述べるように、FR 噴出後については実測値を、また FR 内については測定値を境界値として計算によって求めた値を使用した。ここではその概略について述べる。

2.1 FR 噴出後のプラズマ流の温度および速度

2.1.1 プロセッシング装置

実験装置は Fig. 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。

強制伸長型プラズマ発生器は、陰極と陽極の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。さら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。本装置の棒陰極は直径 5 mmφ の 2% Th-W で、ノズル形陽極は内径 5 mmφ の銅製である。フィードリングは内径 5 mmφ、軸長 9.5mm の銅製で、その入口から軸方向に

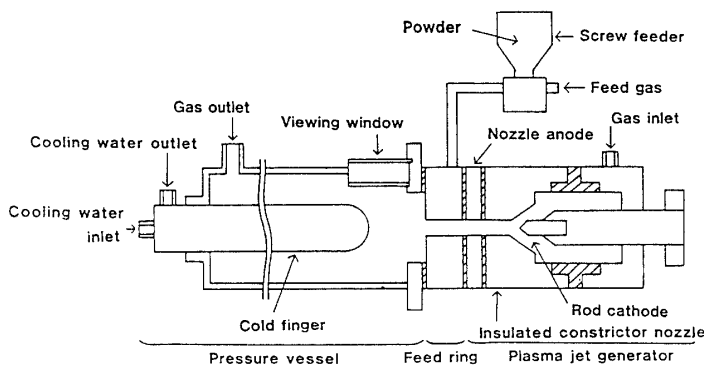


Fig. 1 Schematic view of plasma processing device.

4 mm 下流の位置に軸線に対して直交しかつ互いに向向する位置に 2 箇所直径 1.4mmφ の処理材料送給口を設けてある。

実験条件は容器圧力 $P_t = 100, 760$ Torr, ジェットパワー 3kW, 作動ガス (Ar) 流量 20 l/min で材料粒子としてアルミナを用いフィードガス (Ar) 流量 6 l/min に毎分 0.5g 混入して供給する。

2.1.2 プラズマ流の温度および速度の測定

プラズマジェットの温度測定は 5000K 以上の領域に対しては分光学的手法を用い、3000K 以下の領域に対しては $W \cdot Re$ (5%) - $W \cdot Re$ (26%) 熱電対 (直径 0.5mmφ) を用いて測定した。分光学的温度はジェットが熱平衡状態にあり光学的に薄く軸対称であると仮定し、2 線強度比法により求めた。なお計算に用いたスペクトル線は ArI 4159Å, ArI 6965Å である。

流速 v はピトー管 (外径 6 mmφ, 内径 1 mmφ) を用いてプラズマ流の総圧 P_{to} と静圧 P_s を測定し、以下の式により算出した。

$$v = a \left[\left\{ \frac{2}{\gamma - 2} \right\} \left\{ \left(\frac{P_{to}}{P_s} \right)^{\frac{\gamma - 1}{\gamma}} - 1 \right\} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (1)$$

ただし a : 音速 γ : 比熱比

2.1.3 測定結果

Fig. 2, Fig. 3 にアルミナ粒子注入時のジェットの温度及び速度の 2 次元分布を示す。

温度は容器圧力 100 Torr 及び 760 Torr のいずれの場合も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。径方向に対する温度の減少量は、軸方向のそれに比べ大となる。圧力を減じた場合、粒子間の平均自由行程が長くなるため、等温線は径方向及び軸方向に広がり高温領域は拡大する。例えば、アルミナの融点 (2313K) 以上の温度を保有するプラズマ流の体積を求めると大気圧下では約 270mm³ となるのに対し、低圧力下では約 1200mm³ とほぼ 4.4 倍に膨張する。一方、速度分布も温度分布と同様な傾向を示し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 下流での速度は 10m/s であるが低圧力下では同位置の速度は 527m/s と高速になる。すなわち、容器圧力を減ずることにより、プラズマ流の高温高速の領域が拡大することとなる。

2.2 FR 内のプラズマ流の温度および速度

FR 内のプラズマ流は高温高速で測定領域が探針サイズに比べ小さいため温度及び速度の計測は困難である。そこで、ここでは簡単なモデルを仮定し数値計算

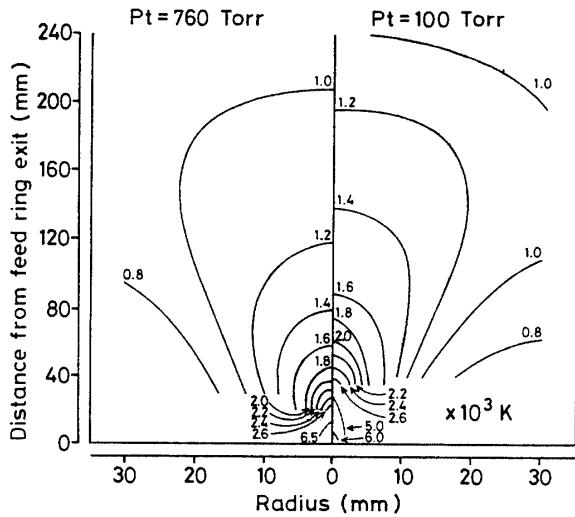


Fig. 2 Temperature fields in the plasma flow out of the feed ring.

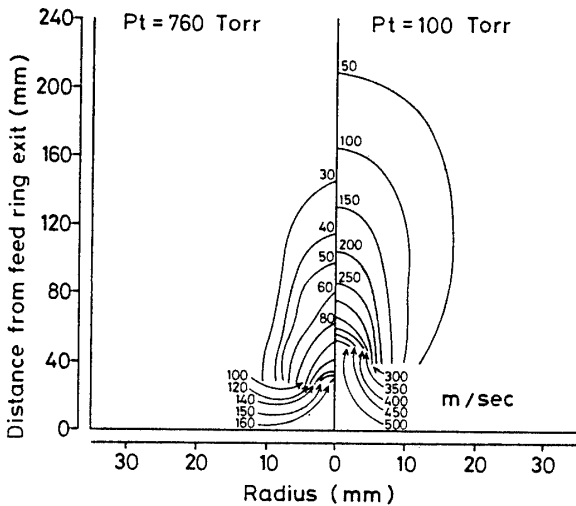


Fig. 3 Velocity fields in the plasma flow out of the feed ring.

により温度及び速度を求める。

2.2.1 計算モデル

FR内のプラズマ流は軸対称で方位角方向に物理量の変化はなく、温度及び速度とも径方向に放物線分布をとると仮定する。これらの仮定は朴らの実験結果の温度及び速度分布が放物線分布に似ている¹⁰⁾ことから可能であると考えられる。これより任意の半径 r の位置の温度 T_r および速度 U_r は

$$T_r = (T_c - T_w) \left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right) + T_w \quad (2)$$

$$U_r = U_c \left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right) \quad (3)$$

ただし

T_c : プラズマ流の中心軸上の温度

T_w : 管壁の温度

R : プラズマ流の半径

U_c : プラズマ流の中心軸上の速度

で表わされる。

又、プラズマ流からの損失は壁への熱伝達のみとすると管内エネルギーの保存式は

$$\dot{m} C_p \frac{dT_b}{dt} = -\pi Dh(T_b - T_w) \quad (4)$$

ただし

\dot{m} : 質量流量

C_p : 定圧比熱

D : 管径

h : 熱伝達率

t : 時間

となる。ここで

$$T_b = \frac{1}{\pi R^2} \int_0^R \left\{ (T_c - T_w) \left[1 - \frac{r^2}{R^2} \right] + T_w \right\} \times 2\pi r dr = \frac{T_c + T_w}{2} \quad (5)$$

で、一般に用いられている平均温度である。これはプラズマ流の温度が放物分布であることを仮定しているので中心温度と管壁の温度で簡単に表される。

よって、(2), (4), (5)式を連立して解けば温度が得られる。

一方、速度は連続の式

$$\dot{m} = \int_0^R \rho U_r 2\pi r dr \quad (6)$$

および、平均速度

$$V_b = \frac{1}{\pi R^2} \int_0^R \left\{ U_c \left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right) \right\} 2\pi r dr = \frac{1}{2} U_c \quad (7)$$

と(3)式を連立して解けばよい。

境界条件としてFR出口での T_c を先の実験結果と一致するように与え、これを満たすようなFR入口での T_c を初期条件とした。

2.3 計算結果

Fig. 4 にFR内のプラズマ流の温度分布を示す。温度は、軸方向および径方向に進むに従って低下する。圧力を減じた場合温度は減少するが、いずれの圧力においても中心軸上で7000K以上の温度を保っており、アルミナ粒子を十分加熱溶融することができることがわかる。比較のために局所圧縮形の絶縁収束ノズルを備えたプロセッシング装置で得られた温度をプロットしている。¹¹⁾この装置での実験条件は容器圧力200Torr, ジェットパワー3.2kWである。これより計算値は実験

によって得られたプラズマ流の温度分布と大差はないことがわかる。

速度分布も Fig. 5 に示すように軸方向及び、径方向に進むに従って低下する。容器圧力が速度分布に与える影響は大で Pt=100Torr の場合は、Pt=760Torr に比べ速度は増加し、FR 入口では大気圧下の約2.2倍の約1500m/s にも達する。

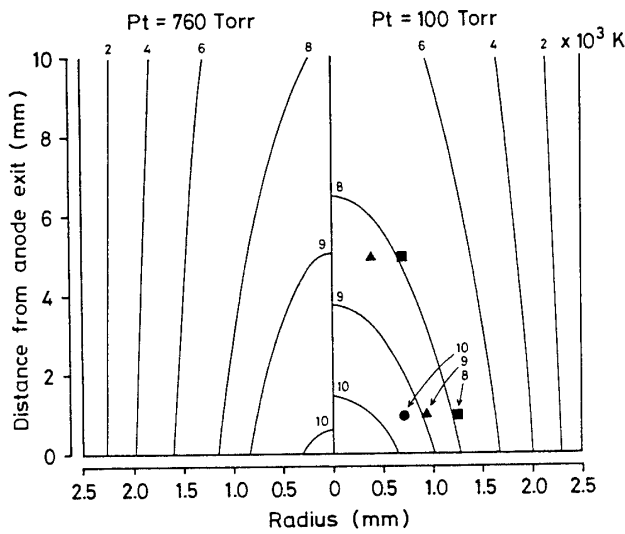


Fig. 4 Temperature fields in the plasma flow in the feed ring.

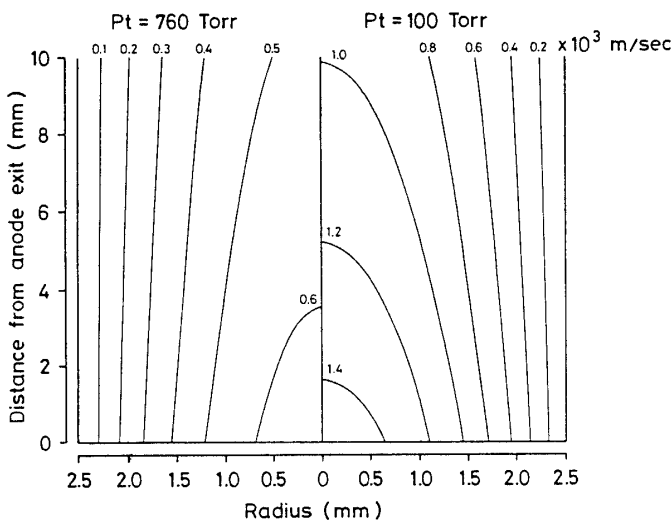


Fig. 5 Velocity fields in the plasma flow in the feed ring.

3. 粒子の温度および速度

プラズマ流内に送給された粒子は主に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エネルギーを与えられる。ここでは以下のようなモデルを仮定し粒子の温度ならびに速度を計算した。

3.1 計算モデル

3.1.1 粒子の挙動

粒子の温度を求めるにはまず粒子の軌跡を求める必要がある。プラズマ流内における粒子の運動方程式は次式¹²⁾で表わされる。

軸 (z) 方向

$$\frac{dV_z}{dt} = -\frac{3}{4} C_D \frac{\rho_g}{\rho_p D_p} V (V_z - U_r) + g \quad (8)$$

径 (r) 方向

$$\frac{dV_r}{dt} = -\frac{3}{4} C_D \frac{\rho_g}{\rho_p D_p} V \cdot V_r \quad (9)$$

ここでVは相対速度で

$$V = \{(V_z - U_r)^2 + V_r^2\}^{\frac{1}{2}} \quad (10)$$

である。ただし

C_D : 抗力係数

ρ_g : プラズマ流の密度

ρ_p : 粒子密度

D_p : 粒子径

V_z : 粒子の軸方向速度

V_r : 粒子の径方向速度

(8) 式の右辺第一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。

粒子は、管壁の注入口から軸線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、さらにFR噴出後はプラズマ流の中心軸上を飛行するとした。これはこの軌跡をとる場合に効果的な加熱が行なわれるものと考えられるからである。よって計算は粒子がFR内を通過する場合は(8)、(9)、(10)式を連立して解き、FR噴出後は、径方向の速度を0として(8)、(10)式を連立して解いた。これより粒子のzおよびr方向の位置が時間に対して求まる。初期条件としては粒子の注入速度を前述の軌跡を描くよう選定し与えた。

3.1.2 粒子の温度

プラズマ流中に注入された粒子はプラズマ流からの

対流, 輻射, プラズマ粒子との衝突により内部温度を上昇させる. やがてその温度は融点 T_m , 沸点 T_v となり粒子はその半径を小さくしながら, ついには蒸発し消滅する. このときの粒子温度 T_p の変化は以下のようになる¹³⁾

1) $T_p < T_m, T_m < T_p < T_v$

$$m_p C_{mp} \frac{dT_p}{dt} = h_p S_p (T_s - T_p) - S_p \epsilon \sigma (T_p^4 - T_w^4) \quad (11)$$

2) $T_p = T_m$

$$m_p L_p \frac{dT_p}{dt} = h_p S_p (T_s - T_p) - S_p \epsilon \sigma (T_p^4 - T_w^4) \quad (12)$$

3) $T_p = T_v$

$$\frac{\rho_p \pi D_p^2}{2L_v} \frac{dT_p}{dt} = h_p S_p (T_s - T_p) - S_p \epsilon \sigma (T_p^4 - T_w^4) \quad (13)$$

ただし,

- m_p : 粒子の質量
- C_{mp} : 粒子の比熱
- h_p : プラズマ流と粒子間の熱伝達係数
- S_p : 表面積
- T_s : プラズマ流の温度
- σ : ステファンボルツマンの定数
- L_m : 融解熱
- ϵ : 放射率
- D_p : 粒子径
- L_v : 蒸発熱

いずれの式も右辺第1項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わし, 第2項は周囲への粒子表面からの放射損失を意味する.

粒子の温度は以下の①~④の手順を繰り返すことによって求めた, ①3.1.1で述べた方法で粒子のある時刻での位置を算出する, ②この位置のプラズマ流の温度を2.2の計算結果から求める, ③このプラズマ流の温度を粒子の状態に応じて(11), (12), (13)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.

初期条件として粒子温度300Kを与えた.

3.2 計算結果

Fig. 6は容器圧力や粒径の違いが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, 軸方向距離が大となるに従って高速度となる. そしてこの傾向は粒径が小さくなるほど大きい. また容器圧力を低下し

た場合は, 粒子の速度はプラズマ流の速度が大となるためさらに増加しFR出口では大気圧下の場合の1.3~1.6倍程度となる. つまりプラズマ流中での滞留時間は粒径が小さく容器圧力が低い程短くなる.

一方, 加熱されていく粒子の温度はFig. 7に示すようにPt=760Torrでは注入後急激に上昇し沸点に達し, 粒子は蒸発を始める. 粒径を大とするとプラズマ

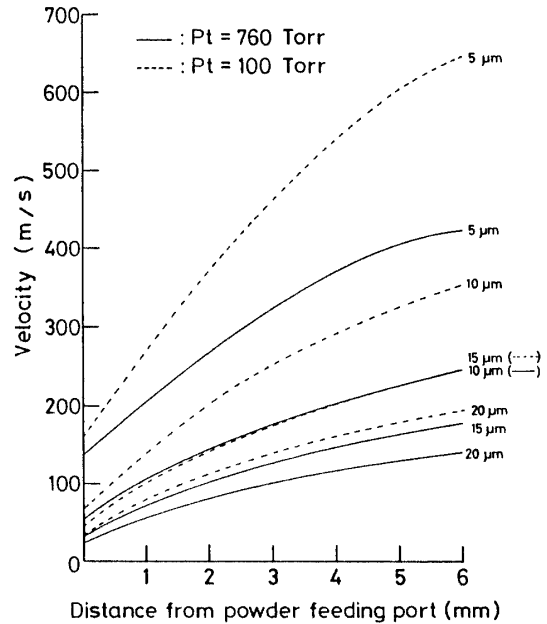


Fig. 6 Particle velocity as a function of distance from feeding port in the feed ring.

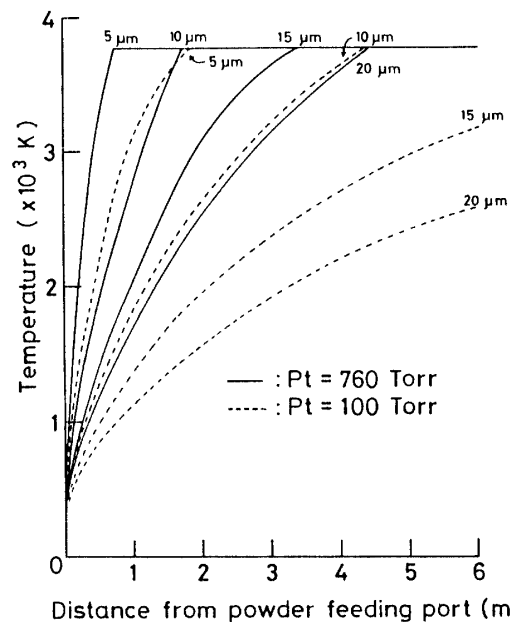


Fig. 7 Particle temperature as a function of distance from feeding port in the feed ring.

流からの熱伝達量は増加するが、加熱されるべき粒子の体積すなわち熱容量が大となるため粒子の温度の上昇率は低下し、沸点に達する位置は注入口より遠くなる。また圧力を減じるとプラズマ流から粒子への熱伝達率が低下し、さらに滞留時間が短くなるため、粒子は大気圧下に比べ加熱されにくくなる。このため粒径 $15\mu\text{m}$ 以上の粒子温度はFR出口において、融点以上にはなるが沸点には到達しない。このようにFR内での粒子の到達温度はその粒径と容器圧力に依存し、粒子は粒径が大となるほど、また容器圧力が低いほど加熱されにくい。

次にノズル噴出後の粒子の速度及び温度の変化を Fig. 8, Fig. 9 に示す。粒子はいずれの条件下でもさらに加速を受けるが、粒子の速度がプラズマ流の速度を超えると徐々に減速される。低圧力下の場合は大気圧下に比べ粒子は減速されにくく、その速度はFR出口からの距離が240mmの位置でも最大速度の87%以上を維持している。この位置の速度は約 $230\sim 265\text{m/s}$ で大気圧下の速度の約6.0~8.3倍である。これより容器圧力により粒子の速度は大きく変化し、低圧力下ではFR出口より離れた位置においても粒子は高速度で飛行することがわかる。

粒子温度の変化については Fig. 9 に示すように、粒子は主にこの領域で冷却を受けるがその冷却効果も容器圧力により異なる。粒径 $15\mu\text{m}$ を例にとると、Pt=760 Torr ではノズル出口より30mmを超えると温度は急激

に減少し、FR出口より178mmの位置で融点となる。引き続き217mmの位置までこの温度を維持し、さらに下流でその温度はふたたび低下する。このように大気圧下ではFR出口からの距離が240mmの位置までに気相、液相、固相という状態変化を行なう。一方、Pt=100 Torr は熱伝達率が小さく粒子の速度が大であるため温度はほとんど低下しない。FR出口から240mmの位置においてもFR出口での温度をほぼ維持し融点以上となっている。このように粒子は大気圧下では急激に冷却され個体粒子となるが、低圧力下では溶融状態のまま高速で長距離を飛行する。

以上の結果より粒子の加熱・冷却過程は容器圧力と粒径により大きな差が生じている。低圧力下では粒子の滞留時間が短く熱伝達率が小さくなるため、ノズル噴出後の粒子の温度変化はゆるやかであることがわかった。これら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。例えばスプレーコーティングの場合は溶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、微粒子化を行な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。これを計算結果と関連づけるとプロセス条件として低圧力下で粒径が大きい場合がスプレーコーティングに適しており、大気圧下で粒径が小さい場合が微粒子化に適していることに対応する。

今回の計算結果はあくまでも一つの事例研究ではあるが、粒子温度が融点を超えるが沸点には到達しない

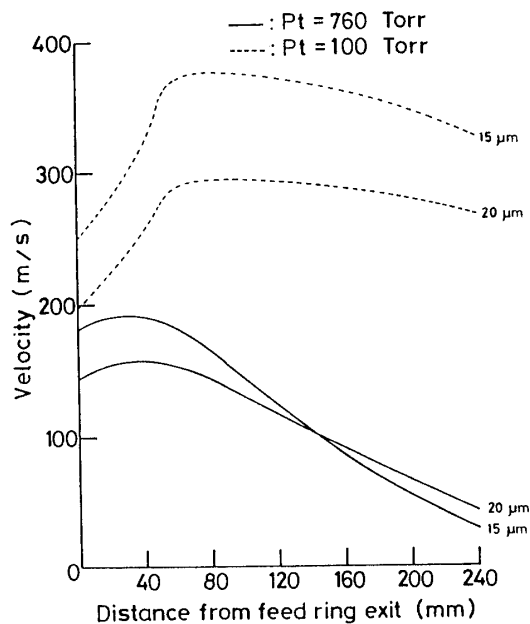


Fig. 8 Particle velocity as a function of the feed ring exit.

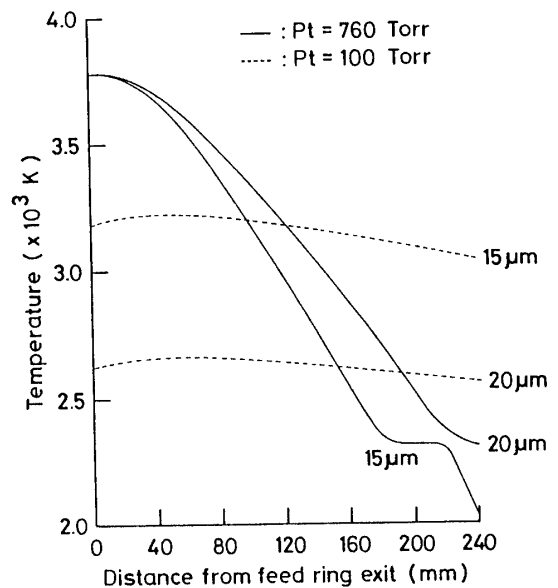


Fig. 9 Particle temperature as a function of the feed ring exit.

条件, すなわち $Pt=100\text{Torr}$ で粒径 $\geq 15\mu\text{m}$ がスプレ
イコーティングの条件に, また粒子温度が沸点に達す
る条件, すなわち $Pt=760\text{Torr}$ で粒径 $\leq 20\mu\text{m}$ および
 $Pt=100\text{Torr}$ で粒径 $\leq 10\mu\text{m}$ が微粒子化の条件にうまく
対応している. なお, プロセスの高品質化を目指す
には微粒子化, スプレイコーティング等の処理を低圧
力下で行なう必要がある. これらの点と今回の計算結
果との関連については稿を改めて議論する.

4. 実験結果との対応

前節で得られた計算結果の傾向とこれまで得られて
いる実験結果の傾向とを比較する.

Fig.10はプロセス前の材料粒子と生成粒子のSEM
写真の一例である. プロセス前の材料粒子は(a)に
示すように不定形な多角形状を示している. その粒径
分布は $5\sim 40\mu\text{m}$ (平均粒径 $20\mu\text{m}$)で, $10\mu\text{m}$ 以下の
粒子の含まれる割合は15%程度である. これに対し処
理後の粒子の形状は容器圧力にかかわらず(c), (f)
に示すように丸みをおびている. また粒径はほとんど
が $10\mu\text{m}$ 以下になっており, プラズマ中で粒子の表面温
度が融点以上に達したことがわかる. さらに拡大する
と(b), (e)のように $0.1\mu\text{m}$ 以下の微粒子が観測さ
れる. これは注入粒子が前述の粒径分布を有している

ため, 直径の小さな粒子が溶融, 蒸発し微粒子化され
たものと考えられ, 先の計算結果と定性的に一致する.
また, フィードリングからの距離が 140mm の位置での
粒子は, $Pt=760\text{Torr}$ では(d)に示すように凝固した
のち回収されたものであるのに対し, $Pt=100\text{Torr}$ で
は(g)のように扁平しつみ重なっており, 溶融状態
で基板に衝突したことがわかる. この結果も低圧力下
では大気圧下に比べ粒子は溶融状態で長距離を飛行す
るという計算結果と一致しており, 先のような簡単な
モデルでもプロセスに対する定性的な予測を行なうこ
とができることがわかった.

実際のプロセス反応では, 多数の粒子がプラズマ中
に注入されるため, プラズマ流の温度低下や流動パター
ンの変化などが起こり多様な粒子の軌跡や温度履歴が
考えられる. 我々が得た他の実験結果では, 補集され
た粒子の粒径分布はFR出口からの距離によって変化
すること, 先に示した $0.1\mu\text{m}$ 以下の超微粒子がFRか
らある距離の点に局所的に集中して存在することなど
が確認されている. これらについて検討するためには
今回用いたテスト粒子的な扱いでは議論できず, 粒子
を統計的に取り扱う手法や3次元モデルを考えなけれ
ばならない.

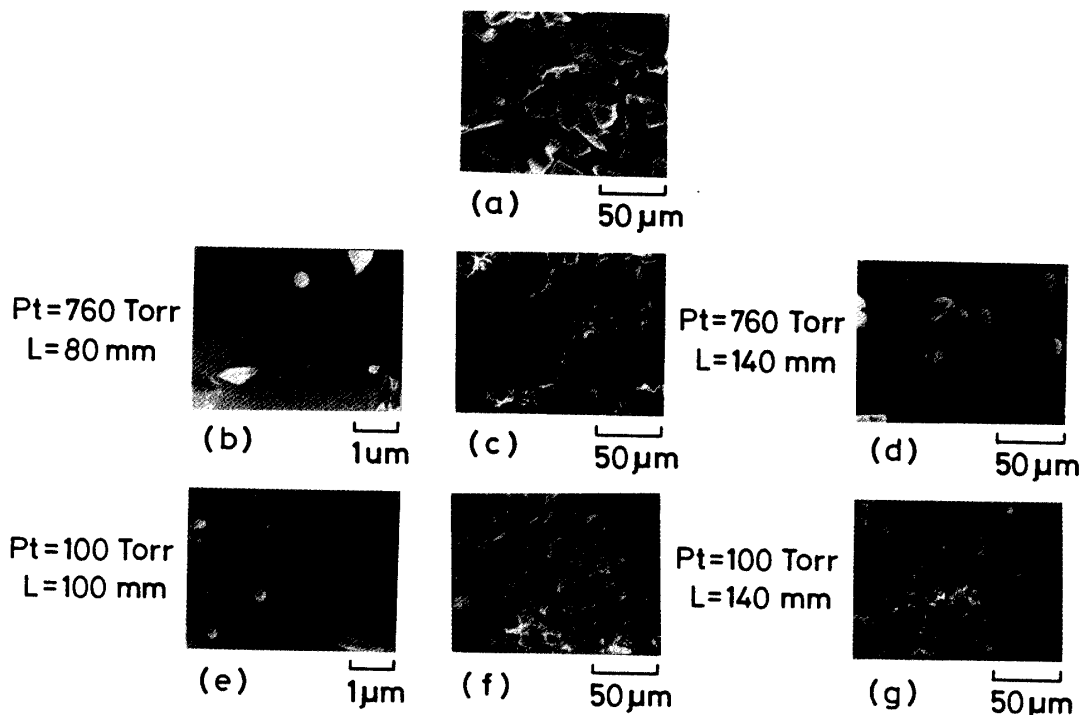


Fig.10 SEM Photographs of Al_2O_3 particles.

5. まとめ

プラズマジェットのプロセッシングへの応用可能性を検討するための基礎的研究として、プラズマジェット内に注入された粒子の加熱・冷却過程について理論的検討を行なった。また、アルミナ粉末材料を用いた予備的な実験を行ない計算結果と比較した。その結果、実験結果と計算結果は定性的に一致し、本モデルにより熱プラズマプロセス反応の予測が行なえることがわかった。すなわち、プラズマジェットを用いた熱プラズマプロセスでは容器圧力および粒径などを適当な値にすることにより、目的のプロセス反応が効果的に行なえる可能性が示された。さらに、低圧力下で有効なプロセス反応を行なうためには熱伝達率及び滞留時間の増加をはかるような改良を加えなければならないことも判明した。

参 考 文 献

- 1) E.Pfender : Pure.Appl.Chem.,**60**,591(1988)
- 2) J.Howarth and R.Richardson : Plant Manage Eng.,**45**,10(1986)
- 3) M.F.Smith : Thin Solid Films,**118**,23(1984)
- 4) P.Kong,T.T.Huang and E.Pfender : IEEE Trans. Plasma Sci.,**14**,357(1986)
- 5) S.Saeki,O.Fukumasa and K.Osaki : ISPC-8,**4**, 1987(1987)
- 6) 佐伯節夫, 内山格郎 : 山口大学工学部研究報告 : **27**,113(1976)
- 7) 恩塚辰典, 福政修, 佐伯節夫, 大崎堅, 崎山智司 : 昭和 63 年度電気関係学会中国支部連合大会 020205
- 8) 福政修, 恩塚辰典, 崎山智司, 大崎堅, 佐伯節夫 : 第 6 回プラズマプロセッシング研究会資料, 431(1989)
- 9) 恩塚辰典 : 昭和63年度修士論文
- 10) 坂本和久, 帯刀郁夫 : 昭和 62 年度卒業論文
- 11) 朴東北, 本田卓也, 神沢淳他 : 化学工学論文集 **13**, 613(1987)
- 12) D.Apeliad,D.Wei and M.Paliwal : Thin Solid Films,**118**,395(1984)
- 13) P.Fauchais,E.Boudrin and J.F.Coudet : Topics in Current Chemistry 107,Plasma Chemistry IV Springer Verlag (1983) p93

(平成元年 4 月 15 日 受理)