

高次制御熱プラズマを用いたフェライト微粒子の高速合成

福政 修^{†a)}

Rapid Synthesis of Ferrite Particles from Powder Mixtures by Using Well-Controlled Thermal Plasmas

Osamu FUKUMASA^{†a)}

あらまし 熱プラズマプロセスによる混合粉末 (Fe_2O_3 , ZnO , NiO , CuO) からのフェライト合成について述べる。大気圧から減圧下までの広い圧力範囲にわたって、よく制御され安定に動作するプラズマジェット発生器を基礎に (すなわち、高次制御された熱プラズマを利用した)、熱効率の高い省電力型の熱プラズマプロセス装置を考案した。この装置を用いて混合粉末を瞬時にフェライト化することに成功した。フェライト合成に及ぼす諸条件 (雰囲気圧力、ジェット熱出力、基板位置など) の影響を調べた結果、キャリア材として必要な磁化特性をもつ高品質のフェライト微粒子が容易に合成されることが判明した。なお、粒子サイズはプロセス条件に依存するので、必要とする粒子合成の最適化及び回収方法の検討が必要なものもわかった。

キーワード 熱プラズマプロセス, プラズマジェット, フェライト微粒子, 電子写真用フェライトキャリア

1. まえがき

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高温・高速・高活性な熱プラズマ流であり、新素材開発、高融点材料処理、高速成膜などの材料プロセス用のプラズマ源として注目されている [1]~[3]。

一般にプラズマは、電子、正イオン、中性粒子 (原子や分子、その励起種など) の3成分で構成される。ほとんどのプロセス用プラズマは、ごく一部の中性粒子が電離してできたプラズマで弱電離プラズマと呼ばれ、数密度は圧倒的に中性粒子が大きい。プラズマジェットは通常は大気圧領域の高圧力で生成されるので、電子、イオン、中性粒子間の衝突が頻繁に起きる。そのため、粒子間の運動エネルギーの交換が十分に行われ、軽い電子と重いイオンや中性粒子の温度がほぼ等しい熱平衡状態となり、このようなプラズマを熱プラズマと呼ぶ (大部分を占める中性粒子が電子とほぼ等しい高温となるため、熱容量が大きい)。大口径の熱プラズ

マを生成するのは容易ではないが、熱容量が大きいので、対象を選ぶことなくプラズマ化、加熱が可能であり、難解物質の処理や高速プロセスが実現できる。一方、 10^{-2} Torr 以下の低圧力で生成されるプラズマでは、粒子間の衝突が少なく、軽い電子のみが高い温度となる熱的に非平衡な状態となり、低温プラズマと呼ばれる (大部分を占める中性粒子が室温程度と低いので、熱容量が小さい)。低温プラズマは、反応速度は低いが大面積のプロセスが容易であり、半導体産業などで広く利用されている。

筆者はプラズマジェットを用いた高効率な熱プラズマプロセス装置の開発 [4]~[6] とそれを用いた材料プロセスに関心をもち [7]、高融点材料の超微粒子生成やプラズマ溶射 [4]、ダイヤモンド膜の高速合成 [8]、ニューセラミックス合成 [9]~[12] について研究している。そのねらいは、雰囲気圧力を重要な制御パラメータとしてとらえ、中間圧力でプラズマジェットを動作させ、プロセス媒体として新しいプラズマ状態を利用した高品質プロセス開発を行うこと、すなわち、熱プラズマ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及び均一化を図ることにある [7]。

ところで、フェライトは電子写真用のキャリア (粒径 $50\sim 100\ \mu\text{m}$) として使用されているが [13]、高精細

[†] 山口大学工学部電気電子工学科, 宇部市
Department of Electrical and Electronic Engineering, Faculty of Engineering, Yamaguchi University, Ube-shi, 755-8611 Japan

a) E-mail: fukumasa@plasma.eee.yamaguchi-u.ac.jp

フルカラー電子写真用のキャリアとしては粒径 $10\ \mu\text{m}$ 程度の均質なフェライト粉末が要求されている [14]. 従来のフェライトキャリアはフェライト原料粉末を湿式で均一混合し、スプレードライヤによる造粒後、仮焼成を経て、本焼成を行うという複雑な長い工程 (約 10 時間) で作られる. また, 電子写真は高精細フルカラー化が目標となっており, トナーの小径化が進んでいる. それに対応して小径のフェライトキャリアが必要とされるが, 従来の製法では $20\sim 30\ \mu\text{m}$ の粒径で磁气的電氣的に均質なフェライトキャリアを得ることが極めて困難であり, 新しいプロセスの開発が望まれている [11],[14].

以上を背景として, 私どもは熱プラズマプロセスによるフェライト微粒子の高速合成に挑戦し, 混合粉末を瞬時にフェライト化できることを示した [11]. 本論文では, プロセス条件とフェライト合成の関係を詳述し, キャリヤ材としてのフェライト微粒子合成について検討する.

2. 省電力型熱プラズマプロセス装置の開発

材料プロセス用のプラズマ源として熱プラズマは高いポテンシャルをもっている [1],[3],[7]. しかしその一方で, プラズマ発生に対して大量のガスを使用する, 消費電力が大きい, DC プラズマであれば電極物質の混入がどこまで抑えられるか, 等の問題点も抱えている. このため, 制御性が良く, できるだけ熱プラズマ発生効率の高い省電力型のプラズマジェット発生器の開発が必要である.

このような状況を背景に, プラズマジェットの材料プロセスへの応用に関して, 私どもは強制伸長型プラズマジェット発生器の前段に材料送給用のフィードリング (以下 FR と略記) を接続したプロセス装置を提案し, その基礎特性を含めプロセス開発を進めてきた [4],[5],[7]. 図 1 に装置の概略を示す. 強制伸長型プラズマジェット発生器は陰極と陽極の間にノズル状の中間電極 (絶縁集束部) をもち, この点が (陰極とノズル陽極とで構成される) 通常型のプラズマジェット発生器とは異なる. この絶縁集束部により陽極点が陽極ノズル先端に固定されるため, 反応容器内の圧力, アーク電流, ガス流量などの動作条件を大きく変化させても放電は安定で, アーク長もほぼ一定である. このため, アーク電圧の変動が小さく, 発生ジェットの揺らぎも少なく, 極めて安定である. 更に, アークはノズル壁とガス流とでノズル軸線上に集束されて強い熱ピ

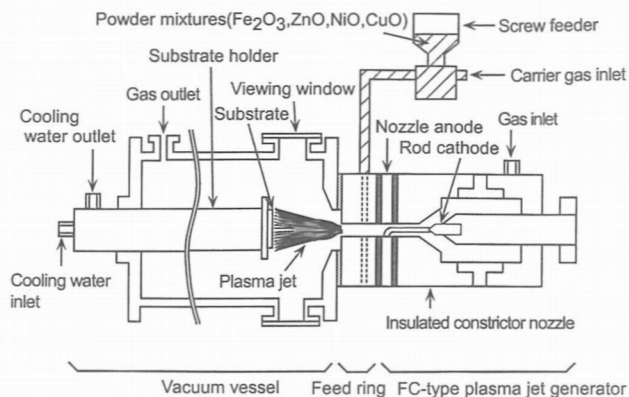


図 1 熱プラズマプロセス装置の概略図
Fig. 1 Schematic diagram of the plasma jet reactor system.

ンチ効果を受け, 低電流域からアーク電流-電圧特性は正特性を示し, 安定かつ高い熱効率 (投入電力に対するジェットのもつ熱量の比で定義) でプラズマジェットを発生できる. 熱効率は $60\sim 65\%$ で, 通常型のジェット発生器と比較して 10% 以上改善されている.

プラズマ流への粉末 (ガス) 材料の供給にはアーク放電領域に直接供給する方法とノズル陽極から吹き出したプラズマジェットの領域に供給する方法の 2 種類がある. 前者は注入された粉末材料粒子の加熱効率が高い反面, 不純物混入 (プラズマガス以外の混入物の意味) によるアーク放電の不安定性や電極の腐食等の問題がある. また後者の場合は, 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側に陽極と同じ内径の FR を陽極と電氣的に絶縁して設置し, この FR 内の熱プラズマ流へ粉末材料を送給する方法を採用した.

本プロセス装置の特長を以下にまとめる.

① 絶縁集束ノズルによってアーク柱が拘束されると同時にその長さが一定に保たれるため, 放電電力及びガス流量の変化に対して動作が安定であり, かつ大気圧前後の高圧力から低圧力 ($0.1\ \text{Torr}$ 以下) までの広い圧力範囲にわたって安定で高熱出力のプラズマジェットが生成される.

② 陽極の下流側に FR を設けたことにより, アーク放電・ジェット発生に悪影響を及ぼすことなく, 粉末並びに反応性ガスの送給が可能である.

以上を総合して, 熱プラズマの生成・制御が高度化され (高次制御熱プラズマ), その高品質材料プロセスへの応用が可能となる.

3. 実験装置及び実験方法

混合粉末からのフェライト微粒子合成は図1に示す装置を用いて行われた。この装置の特長は2.で述べたが、私どもが独自に開発した強制伸長型プラズマジェット発生器 (Cu製ノズル陽極: 内径5 mm, Cu製絶縁集束部: 内径5 mm, 2%Th-W製棒陰極: 直径5 mm), 粉末材料を熱プラズマ流に送給するためのFR (Cu製, 内径5 mm) 及び反応容器 (内径160 mm, 軸長700 mm) から構成されている。反応容器には観測窓が設けてあり, 材料送給中のプラズマジェットの観測, 成膜状況の観測等が可能となっている。なお, 発生器電極の熱損傷を防ぐために毎分2.5 l/minの冷却水を電極各部に供給した。また, この冷却水の電極流入前, 流出直後の水温を熱電対で測定し, その温度差と冷却水量から電極での熱損失を測定した。

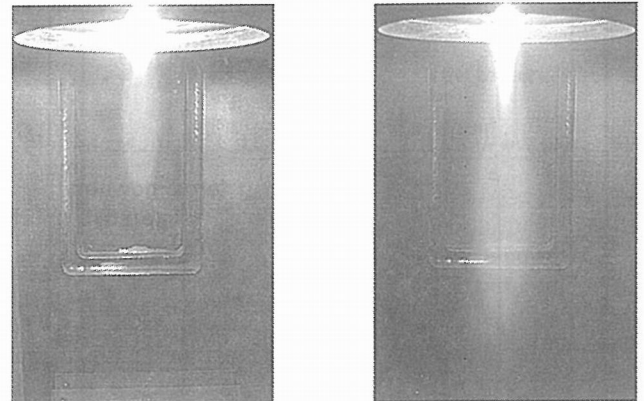
作動ガスにはアルゴン (Ar) を用い, アーク室後方より渦流として供給し, アーク放電によりプラズマジェットを発生させる。フェライト合成には, 平均粒径が $17\ \mu\text{m}$ の酸化第二鉄 (Fe_2O_3), 酸化亜鉛 (ZnO), 酸化ニッケル (NiO), 酸化銅 (CuO) の混合粉末を使用している。この粉末材料をフィードガス (Arを用いる) とともにFRを通して高温・高速の熱プラズマ流に供給する。注入された粉末は, 熱プラズマ流により加熱・溶融・蒸発され, プラズマジェット内で反応が進み, 下流域に設置したモリブデン基板あるいは受け皿にて, 膜あるいは粉末として回収される。

回収したサンプルは, X線回折装置により結晶構造を, 走査型電子顕微鏡 (SEM) により表面状態・粉末の形状等を評価した。また, 合成された膜及び粉末の磁化を振動試料型磁力計 (VSM: vibrating sample magnetometer) により測定し, 磁化特性の評価を行った。更に, 電子線プローブマイクロアナライザ (EPMA: electron probe micro analyzer) により元素分析も行った。

実験条件は, 作動ガス (Ar) 流量 Q が20 l/min, フィードガス (Ar) 流量 Q_f が6 l/min, 混合粉末材料の送給量 Q_m が0.5 g/min, 容器圧力 P_t が100~760 Torr, ジェット熱出力 W_j が3~5 kW, FRから基板 (受け皿) までの距離 L が30~200 mm, 反応継続時間 t_p が1~15 minである。

4. 実験結果及び検討

現在行われているフェライト粉末生成は所要時間が



(a) $P_t=760\ \text{Torr}$

(b) $P_t=200\ \text{Torr}$

図2 フェライト合成中のプラズマジェット. 実験条件: ジェット熱出力 $W_j=3\ \text{kW}$, プラズマガス流量 $Q\ (\text{Ar})=20\ \text{l/min}$, フィードガス流量 $Q_f\ (\text{Ar})=6\ \text{l/min}$, 粉末送給量 $Q_m=0.5\ \text{g/min}$

Fig. 2 Photographs of the plasma jets for two different pressures. Experimental conditions are as follows: Jet power $W_j=3\ \text{kW}$, working gas flow rate $Q\ (\text{Ar})=20\ \text{l/min}$, feed gas flow rate $Q_f\ (\text{Ar})=6\ \text{l/min}$ and powder feeding rate $Q_m=0.5\ \text{g/min}$.

10時間以上にも及ぶ長いプロセスである。そこで, 熱プラズマプロセスを用いた混合粉末材料からのフェライトの瞬時合成という高速合成法の確立を目指して実験的検討を行った。以下に, フェライト合成の同定, フェライトキャリアとして必要な磁化特性の確認, 粒径分布の制御, 等について順次述べていく。

4.1 フェライトの高速合成

図2に $W_j=3\ \text{kW}$, $P_t=760, 200\ \text{Torr}$ での, フェライト合成中のプラズマジェットの写真を示す。ここで W_j とは, アーク電圧 V_a と電流 I_a の積 $V_a \cdot I_a$ で評価した電気入力から各電極部分の熱損失を差し引いたもので, 陽極下流側に熱プラズマ流がもち出す熱エネルギー量に対応する。図から明らかのように, 減圧することにより軸方向・径方向ともにジェット形状が著しく拡大される。ここには示さないが, 特に10 Torr前後での変化が著しい。またジェットの温度分布, 流速分布の測定結果から, これらのプラズマジェットの重要なパラメータがジェット形状の変化に対応して拡大していることを確認し [4],[10], P_t が熱プラズマの制御ひいてはプロセス制御の重要なパラメータであることがわかった。

まず最初に, 混合粉末からのフェライト合成について確認した。 $W_j=3\ \text{kW}$, $P_t=760\ \text{Torr}$, $L=5\ \text{mm}$, $t_p=5\ \text{min}$ にて, Mo基板上に堆積させた膜のX線回折パターンを図3(c)に示す。参考として, 原材料 (混合粉末) のX線回折パターンを図(a), 市販の (焼結法

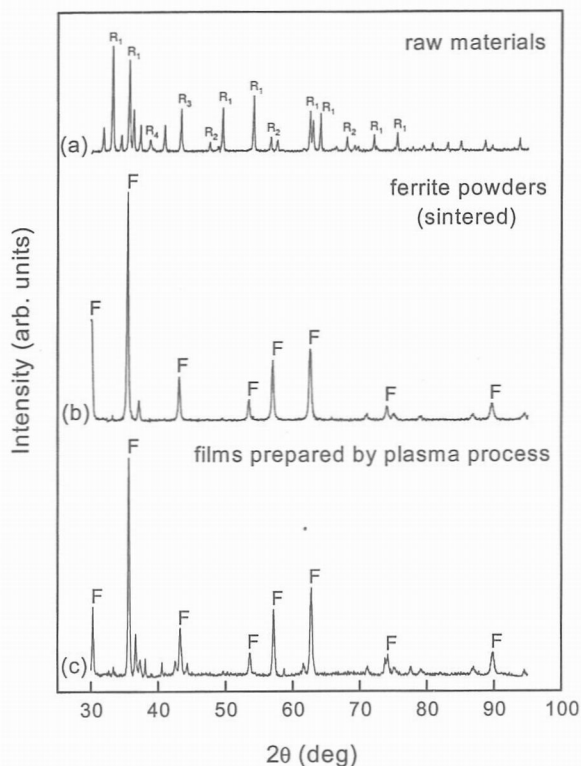


図3 X線回折のパターン, (a)原材料粉末, (b)市販のフェライト粉末, (c)本実験で合成された膜. シンボルはFがフェライト, R_1 が Fe_2O_3 , R_2 がZnO, R_3 がNiO, R_4 がCuO. 実験条件: $W_j=3$ kW, 容器圧力 $P_t=760$ Torr, 基板位置 $L=50$ mm, 反応継続時間 $t_p=5$ 分

Fig. 3 X-ray diffraction patterns of raw powder mixtures (a), commercial ferrite powder (sintered) (b), and a prepared film in the plasma (c). Symbols are F (ferrite), R_1 (Fe_2O_3), R_2 (ZnO), R_3 (NiO) and R_4 (CuO). Experimental conditions are as follows: $W_j=3$ kW, pressure in the chamber $P_t=760$ Torr, substrate position $L=50$ mm and processing time $t_p=5$ min.

で生成された) フェライト粉末のX線回折パターンを図(b)に示す. 図(b)の8本のピークがフェライトを示す典型的なスペクトルであり, 図(a)の13本のピークは混合した4成分のそれぞれの主要なスペクトルの重ね合せとなっている. 実験で得られた膜のX線回折結果図(c)には, 図(b)のフェライトスペクトルと一致したピークがめいりょうに観測される. したがって, 熱プラズマプロセスにより Fe_2O_3 , ZnO, NiO, CuOの混合粉末からフェライトを一気に合成できることがわかる. また, これらのX線回折パターンはスピネル構造のフェライトであることを示している.

純度の高いフェライト微粒子合成とその回収方法を議論するために, 主要なプロセス条件である W_j , P_t , L , t_p の影響を検討する必要がある. ここでは, L と

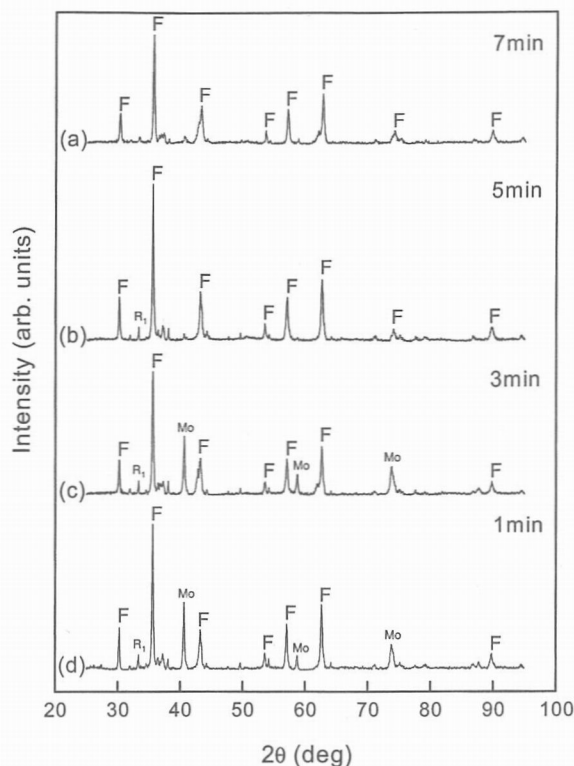


図4 生成膜のX線回折パターン, パラメータは反応継続時間 t_p . シンボルはFがフェライト, R_1 が Fe_2O_3 , Moは基板のモリブデン. 実験条件: $W_j=3$ kW, $P_t=760$ Torr, $L=90$ mm

Fig. 4 X-ray diffraction patterns of the thin films as a function of t_p . Symbols are F (ferrite), R_1 (Fe_2O_3) and Mo (substrate). Experimental conditions are as follows: $W_j=3$ kW, $P_t=760$ Torr and $L=90$ mm.

t_p に関する実験結果について述べる.

図4に $W_j=3$ kW, $P_t=760$ Torr, $L=90$ mmの条件下で異なる四つの反応継続時間で合成した膜のX線回折パターンを示す. $t_p=3$ min, 1 minで生成された膜(c), (d)のX線回折結果で, 基板であるMoのピークが見られるものの, 生成されたすべての膜(a), (b), (c), (d)のX線回折結果で, 図3(b)に示したフェライト粉末のX線回折パターンと一致したピークが明確に観測され, これらの生成膜はスピネル構造のフェライト膜であることがわかる. t_p が短いと合成される膜の膜厚が薄くなるため, Moのピークが見られたと考えられる. したがって, t_p はフェライト合成の純度にはほとんど影響しないことがわかる. この結果は, フェライト合成に関する長時間運転あるいは大量生産プロセスとして, 本プロセスが適用可能なことを示している.

次に, 基板位置がフェライト合成に与える影響について検討する. 図5に $W_j=3$ kW, $P_t=760$ Torr, $t_p=5$ minの条件下で異なる四つの基板位置で合成し

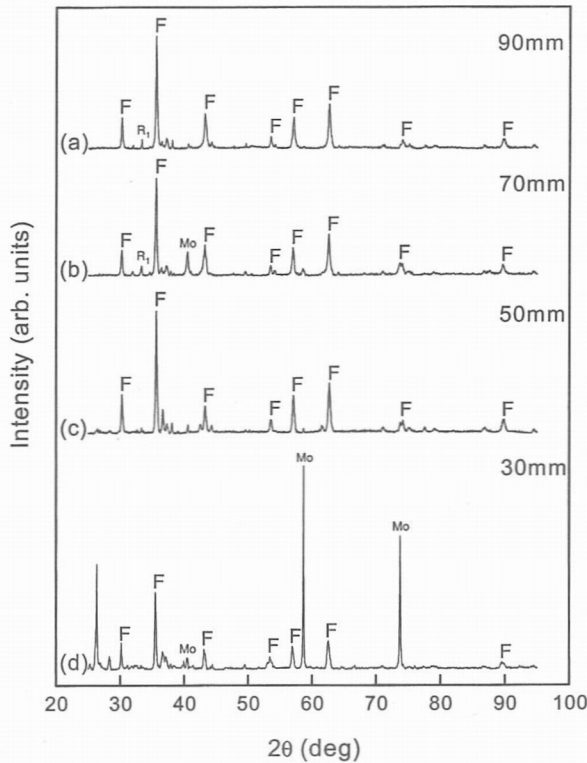


図5 生成膜のX線回折パターン、パラメータは基板位置 L 。シンボルはFがフェライト、 R_1 が Fe_2O_3 、Moは基板のモリブデン。実験条件： $W_j=3\text{ kW}$ 、 $P_t=760\text{ Torr}$ 、 $t_p=5\text{ 分}$

Fig. 5 X-ray diffraction patterns of the thin films as a function of L . Symbols are F (ferrite), R_1 (Fe_2O_3) and Mo (substrate). Experimental conditions are as follows: $W_j=3\text{ kW}$, $P_t=760\text{ Torr}$ and $t_p=5\text{ min}$.

た膜のX線回折パターンを示す。生成されたすべての膜(a), (b), (c), (d)のX線回折結果は、図3(b)に示したフェライトのX線回折パターンと一致している。つまり、スピネル構造のフェライトを示すピークがめいりょうに観測される。

合成膜(d)のX線回折結果で、Moのピークが見られる。上流側($L \leq 30\text{ mm}$)では、Mo基板がプラズマジェットに直接さらされ、これが原因で合成される膜が薄くなるためである。いずれにせよ、ジェットに直接さらされる位置より下流側に基板を設置すれば、 L はフェライト合成及びその純度にはほとんど影響しないことがわかる。反応がプラズマ体積内で起こる (volume process) のか基板表面で起こる (surface process) のかがプラズマプロセスでしばしば問題となるが、このフェライト合成に関しては、純度の高いフェライトがプラズマジェット中で合成されていることになる。したがって、合成されたフェライト微粒子を下流側で粉末として回収することが可能となる。

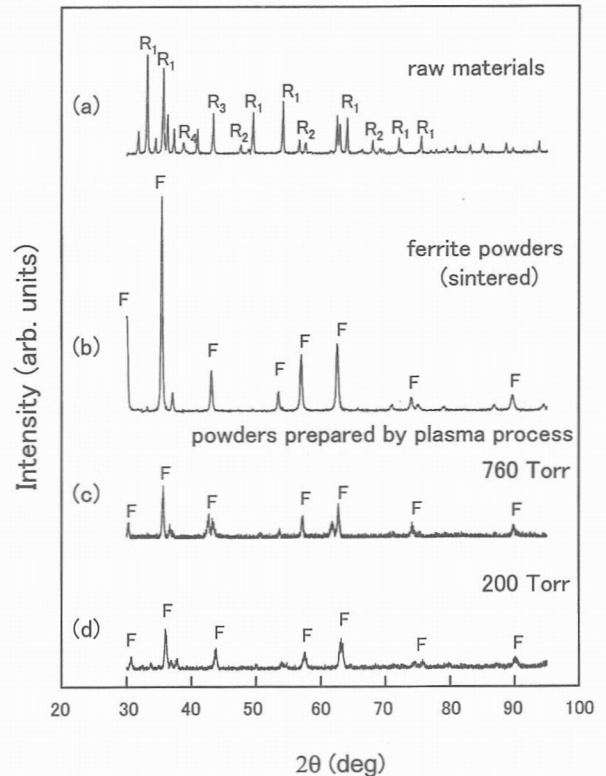


図6 X線回折パターン、(a)原材料粉末、(b)市販のフェライト粉末、(c)と(d)が本実験で合成された粉末。シンボルは図3と同じ。実験条件： $W_j=3\text{ kW}$ 、 $L=200\text{ mm}$ 、 $t_p=10\text{ 分}$

Fig. 6 X-ray diffraction patterns of raw powder mixtures (a), commercial ferrite powder (sintered) (b) and two prepared powders (c) and (d), in the plasma. Symbols are the same as ones in Fig. 3. Experimental conditions are as follows: $W_j=3\text{ kW}$, $L=200\text{ mm}$ and $t_p=10\text{ min}$.

4.2 フェライト粉末の高速合成

フェライト粉末を電子写真用トナーのキャリア材として利用するためには、球状微粒子でなければならない。合成されたフェライトを粉末として回収するために、セラミックス製の受け皿をプラズマジェットの downstream に設置した。

$W_j=3\text{ kW}$ 、 $L=120\text{ mm}$ 、 $t_p=10\text{ min}$ として、大気圧下及び減圧下で回収した粉末のX線回折パターンを図6に示す。参考として、図3と同様に原材料 (混合粉末) のX線回折パターンを(a)、従来の焼結法で生成されたフェライト粉末のX線回折パターンを(b)に示す。実験で得られた粉末のX線回折結果(c), (d)は、フェライト粉末のX線回折パターン(b)とよく一致していることがわかる。つまり、 Fe_2O_3 、 ZnO 、 NiO 、 CuO の混合粉末を用いてスピネル構造のフェライト粉末を瞬時に合成できることが示された。

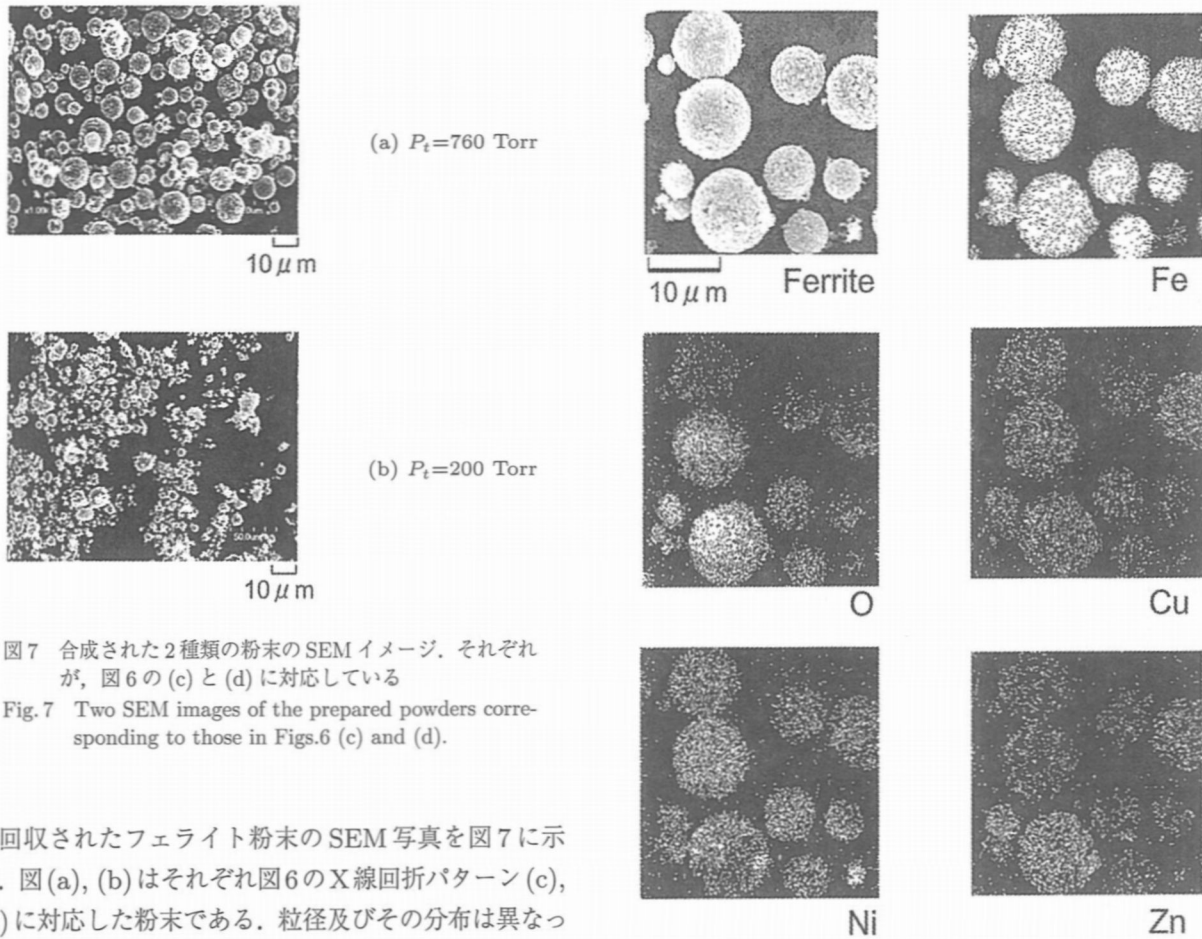


図7 合成された2種類の粉末のSEMイメージ. それぞれが, 図6の(c)と(d)に対応している
 Fig. 7 Two SEM images of the prepared powders corresponding to those in Figs.6 (c) and (d).

回収されたフェライト粉末のSEM写真を図7に示す. 図(a), (b)はそれぞれ図6のX線回折パターン(c), (d)に対応した粉末である. 粒径及びその分布は異なっているが, 球状のフェライト微粒子が合成されている. これらの粉末は $L=200$ mm で回収されたものであり, 図2にも示したようにプラズマジェット及びその高温領域は雰囲気圧力によって大きく変化する. 混合粉末の融点は 1148°C (CuO) から 1998°C (NiO) までと分布しているが, その温度差は比較的小さい. 以上を総合すると, 図7の結果より, 混合粉末からのフェライト合成は高温領域での原材料の溶融・蒸発とそれに続く気相反応での合成による結果と判断される.

4.3 キャリヤ材としての性能評価

4.3.1 磁化特性

フェライトキャリヤに関して, 磁化が $60\sim 80$ emu/g のものが要求されている. そこで合成されたフェライト粉末に対して磁化をVSMにより測定した. 回収した粉末に対してVSMによりヒステリシスループ ($M-H$ 曲線) を描き, その曲線から磁化 M_s を求めている. L を $120\sim 200$ mm と変えて, t_p を 5, 10分としたときのフェライト粉末の磁化特性を測定し, t_p, L がフェライト粉末の磁化特性に与える影響を調べた. その結果, ほとんどのサンプルにおいて磁化は $60\sim 80$ emu/g となることが確認できた. 電子写真用のキャリヤ材とし

図8 合成された粉末のEPMAによる元素分析結果. 実験条件: $W_j=3$ kW, $P_t=760$ Torr, $L=200$ mm, $t_p=10$ 分
 Fig. 8 Composition analysis of the prepared powders by using EPMA. Experimental conditions are as follows: $W_j=3$ kW, $P_t=760$ Torr, $L=200$ mm and $t_p=10$ min.

て必要な磁化 (60 emu/g 以上) をもつフェライト微粒子を熱プラズマプロセスによって合成可能なことがわかった.

4.3.2 組成分析

合成されたフェライト微粒子の均質性を評価するために, EPMAにより組成分析を行った. 結果の一例を図8に示す. 上段左側が測定対象のフェライト微粒子のSEM像であり, その他が各元素 Fe, O, Cu, Ni, Znの分布状態を示している. Fe及びOの含有率が他の構成元素より高いものの, フェライトを構成している各元素 (Fe, Zn, Ni, Cu, O) が各微粒子中にほぼ一様に含まれていることがわかる. 電子写真用のキャリヤ材として必要な性能である均質な球状微粒子が得られていると考えられる. また, 実験で得られたフェライト微粒子が Zn-Ni-Cu フェライトになっているこ

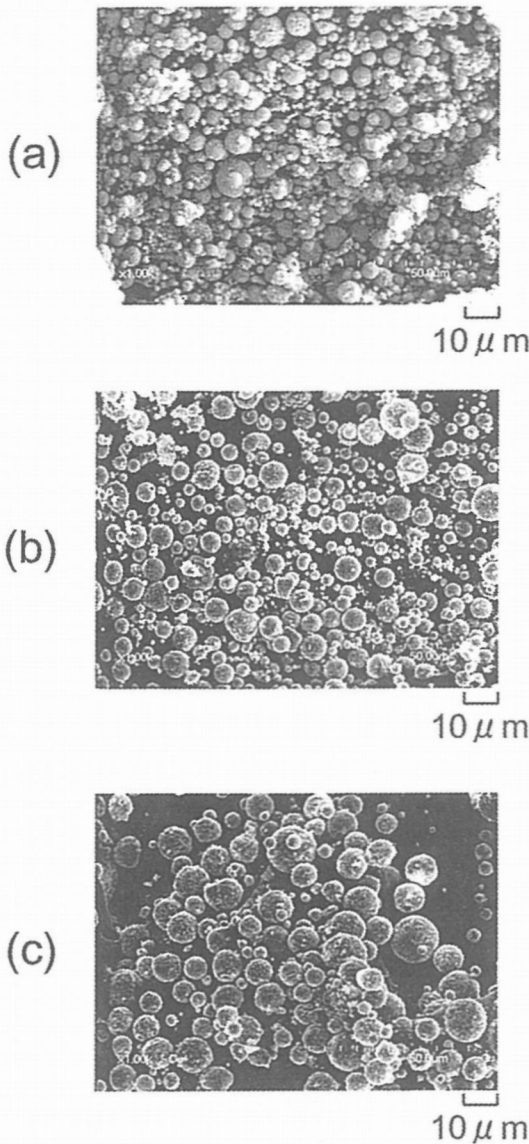


図9 合成粉末のSEMイメージ, (a) $L=120$ mm, (b) $L=160$ mm, (c) $L=200$ mm. 実験条件: $W_j=3$ kW, $P_t=760$ Torr, $t_p=10$ 分
 Fig.9 Three SEM images of the prepared powders, (a) $L=120$ mm, (b) $L=160$ mm and (c) $L=200$ mm. Experimental conditions are as follows: $W_j=3$ kW, $P_t=760$ Torr and $t_p=10$ min.

とも確認できる。

4.3.3 粒径分布

フェライトをキャリア材として利用するには、その粒径が重要なパラメータとなる。プロセス条件と合成フェライト微粒子の粒径分布との相関を調べた。粒径分布の評価方法としては、各条件下で合成されたフェライト微粒子のSEM写真(縦 $100\mu\text{m}\times$ 横 $130\mu\text{m}$ の部分写真)を10枚(場所が異なる写真)撮って、その写真に写っている粒子の直径を測った。2 μm ごとの

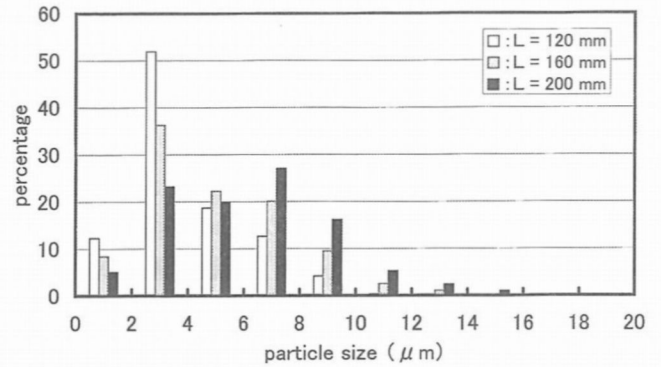


図10 図9に示した合成粉末の粒径分布
 Fig.10 Size distribution of prepared particles corresponding to those in Fig.9.

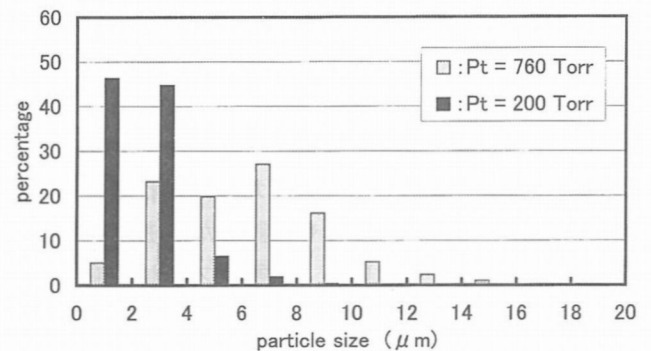


図11 合成粉末の粒径分布の圧力依存性. 実験条件: $W_j=3$ kW, $L=200$ mm, $t_p=10$ 分
 Fig.11 Pressure dependence of size distribution for prepared particles. Experimental conditions are as follows: $W_j=3$ kW, $L=200$ mm and $t_p=10$ min.

区分に粒子を振り分け、それぞれ全体(写真10枚中に写っている微粒子の合計で約4500個がサンプル数)の何%を占めているかを計算し、粒径分布とした。

$W_j=3$ kW, $P_t=760$ Torr, $t_p=5$ minとして、回収位置を変えたときに得られたフェライト粉末のSEM写真を図9に示し、これより求めた粒径分布の結果を図10に示す。粒径分布はかなり広がりをもっているが、回収位置が下流側になるほど粒径の大きな粒子の回収割合が増加していることがわかる。

粒径分布は P_t にも依存するが、その結果を図11に示す。これは $W_j=3$ kW, $L=200$ mmで回収されたフェライト微粒子の粒径分布を調べた結果である。粒径分布がガス圧の影響を大きく受けることを示している。

キャリア材として必要な粒径(約 $10\mu\text{m}$)のフェライトのみを得るためには、プロセス条件と粒径との関係を更に検討すると同時にその回収方法を考える必要があることがわかった。

5. む す び

熱プラズマプロセスによるフェライト微粒子の高速合成を試みた。その結果、 Fe_2O_3 、 ZnO 、 NiO 、 CuO の混合粉末を瞬時にフェライト膜あるいはフェライト微粒子化することに成功した。ジェット熱出力 W_j 、雰囲気圧力 P_t 、合成時間 t_p 、基板・回収位置 L 等のプロセス条件がフェライト合成に与える影響について調べた結果、以下のことが実証された。

- ① 高純度のフェライトがプラズマジェット中での反応により合成される。
- ② 合成時間に関係なく高純度のフェライト合成が維持されている（連続運転可能）。
- ③ 回収位置にほとんど依存せず、ジェット下流域で容易に高純度のフェライトを粉末として回収することができる。

本研究で目標とした電子写真用のキャリア材としての性能（磁化が60~80 emu/g、均質な球状微粒子、粒径が10 μm 程度）についても検討した。磁化特性と均質な微粒子に関しては W_j 、 P_t 等のプロセス条件に関係なく所望の特性をもった微粒子が合成されることが明らかとなった。今回回収されたフェライト粉末のほとんどが粒径2~10 μm の範囲にあり、その平均粒径はプロセス条件（特に、 P_t 、 L ）に依存していることがわかった。

今後は本プロセスの実用化に向けて、フェライト粒子の粒径制御についてプロセスの最適化を行うと同時に、材料粉末の送給量（今回は0.5 g/minで一定とした）とフェライト合成量の関係、合成フェライトの回収方法を検討していく予定である。

謝辞 本研究にかかわる共同研究者である山口大学の太崎堅助教、崎山智司助教、藤本聡技官に感謝します。また、本論文をまとめるにあたり、御協力頂いた山口大学の学生諸君（藤原崇雅、立野一史、山下雄大、安達秀任）に感謝します。混合粉末の提供並びに磁化特性の測定をして頂いた戸田工業(株)の藤岡和夫氏には深謝致します。なお、本研究の一部は、科学研究費（地域連携推進）及び平成10年度地域コンソーシアム研究開発事業の補助を受けて行われた。

文 献

- [1] (社)日本鉄鋼協会, 熱プラズマプロセッシング研究会編, 熱プラズマ材料プロセッシングの基礎と応用, 信山社サイテック, 1996.
- [2] P. Fauchais and A. Vardelle, "Thermal plasmas," IEEE Trans. Plasma Sci., vol.25, no.6, pp.1258-1280, Dec.

- 1997.
- [3] E. Pfender, "Thermal plasma technology: Where do we stand and where are we going?" Plasma Chem. and Plasma Processing, vol.19, no.1, pp.1-31, 1999.
- [4] 福政 修, 崎山智司, "プラズマジェットを用いた減圧下での高融点材料処理," 電学誌 (A), vol.112, no.4, pp.269-278, April 1992.
- [5] S. Sakiyama, T. Hirabaru, and O. Fukumasa, "A plasma reactor based on the forced constricted type dc plasma jet and its application to thermal plasma processing in low pressure," Rev. Sci. Instrum., vol.63, no.4, pp.2408-2410, April 1992.
- [6] K. Osaki, O. Fukumasa, S. Fujimoto, and A. Kobayashi, "Plasma electrode-type plasma spray gun - effect of powder loading on the behavior of plasma jet," Vacuum, vol.65, no.3-4, pp.305-309, May 2002.
- [7] 福政 修, "熱プラズマを用いた材料プロセスの新しい展開," 応用物理, vol.67, no.2, pp.181-185, Feb. 1998.
- [8] 崎山智司, 福政 修, "減圧熱プラズマプロセスによるダイヤモンド合成," 日本金属学会誌, vol.63, no.1, pp.55-61, Jan. 1999.
- [9] O. Fukumasa, S. Sakiyama, and H. Esaki, "Synthesis of β'' -alumina from powder mixture using thermal plasma processing," Jpn. J. Appl. Phys., vol.38, no.7B, pp.4571-4575, July 1999.
- [10] O. Fukumasa and S. Sakiyama, "Thermal plasma processing — Syntheses of diamond and β'' -alumina," Surface and Coatings Tech., vol.131, pp.493-499, 2000.
- [11] O. Fukumasa, "Synthesis of new ceramics from powder mixtures using thermal plasma processing," Thin Solid Films, vol.390, pp.37-43, 2001.
- [12] H. Mukunoki, O. Fukumasa, and S. Sakiyama, "Integrated synthesis of AMTEC electrode by using controlled thermal plasma processing," Thin Solid Films, vol.407, pp.92-97, 2002.
- [13] T. Iimura, K. Eguchi, and H. Harada, "Ferrite carrier for electro photography," IEEE Trans. Magn., vol. MAG-19, no.5, pp.1781-1783, Sept. 1983.
- [14] 藤岡和夫, private communication.

(平成14年10月3日受付)



福政 修 (正員)

昭43名工大・工・電気卒。昭48京大大学院工学研究科(博士課程)学修。同年4月京都大学工学部助手, 昭57年4月山口大学工学部講師, 昭58年4月同助教授を経て, 昭63年11月より山口大学工学部教授, 現在に至る。工博。専門はプラズマ理工学, 電気エネルギー工学で, 主として大電流重水素負イオン源の開発, 熱プラズマプロセスによる材料開発などの研究に従事。電気学会, プラズマ・核融合学会, 日本物理学会, 応用物理学会, 照明学会, 電気設備学会各会員。