

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 3 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26289288

研究課題名(和文) 粉体の瞬間精密電荷制御を可能にする気相単極イオン抽出法の開発と帯電粒子の運動解析

研究課題名(英文) Development of unipolar ion extraction method for instantaneously controlling charge of powder and dynamic analysis of charged particles

研究代表者

松坂 修二 (Matsusaka, Shuji)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：10219420

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：大気圧プラズマジェットから生成される電荷を利用して粒子表面の電荷を制御する方法を実験的に検討した。石英ガラス管に電極を取り付けて交流電圧および直流バイアス電圧を印加し、ヘリウムガスを供給して大気圧プラズマジェットを生成した。直流バイアス電圧の値を変えることにより、プラズマ中の正イオンや電子を選択的に抽出できた。粒子をプラズマジェット中で重力落下させる実験と静置した粒子にプラズマジェットを照射する実験を行い、いずれも空間電荷に基づく電場によって正イオンや電子を粒子に付与できることがわかった。また、外部電場の印加によっても粒子の帯電を制御できた。これらの実験結果をもとに粒子の帯電機構を考察した。

研究成果の概要(英文)：A method for controlling electrostatic charge on particles with electric charges generated by an atmospheric pressure plasma jet was studied experimentally. The atmospheric pressure plasma jet was generated by applying AC voltage and DC bias voltage to an electrode in a quartz glass tube with helium gas flow. By changing the value of the DC bias voltage, positive ions and/or electrons could be extracted from the plasma. Two experiments, one in which particles were allowed to fall in the plasma jet and the other in which particles were irradiated with the plasma jet, were performed, and the experimental results showed that both methods allowed the particles to acquire positive ions and/or electrons because of the electric field caused by the space charge. In addition, particle charging could be controlled by applying an external electric field. Based on these experimental results, the particle charging mechanism involved was discussed.

研究分野：化学工学

キーワード：粉体 粒子 プラズマ 帯電 電荷

1. 研究開始当初の背景

粒子の高精度配列、積層化をはじめとする粒子の位置制御に関する応用技術は、材料の高機能化・集積化のための革新的技術として、現在、多くの産業で注目されている。粉体・粒子を所定の位置まで移動させて高精度で配置するには、粒子を凝集させることなく分散させた状態で操作しなければならない。粒子に触れることなく、遠隔処理で正確に粒子の運動を制御するには、従来行われてきたバルクハンドリングの手法では限界があり、個々の粒子の運動に着目して、新しい技術を開発しなければならない。

粒子を液中で取り扱うと、粒子の分散は比較的容易であるが、洗浄、乾燥、廃液処理が必要であり、工程数の増加とともに異種物質の混入の可能性が増えるので、付加処理を必要としない気相粒子の精密ハンドリングに期待が寄せられている。

工業的利用を考えると、機能性に加えて実用性が不可欠であり、多数の粒子を一度に処理する必要がある。具体的には、電場、磁場、音場などの利用が効果的と考えられているが、遠隔制御性、汎用性を総合的に評価すると、粒子に電荷を付与し、電場によって粒子の運動を制御する方法が最も効果的と考えられる。電場の制御は高い精度で行えるが、粒子への電荷の付与と粒子の挙動に関する基礎現象の解明が遅れているので、この領域の基盤研究の進展が技術革新の鍵を握る。

粒子への電荷の付与と制御は、接触帯電法とイオン荷電法とに大別できる。前者は、異種物質との接触による電荷移動を利用しており (Matsusaka et al., 2007)、仕事関数に起因する接触電位差が基本的な駆動源になる。電荷を精密に制御するには、外部電界を利用して有効接触電位差を制御する必要がある (Bunchatheeravate et al., 2013; Mizutani et al., 2013)。

一方、イオン荷電法は、粒子に対して電荷を瞬時に付与できるという特長をもつが、既存の技術では沿面放電等を利用しており、電極で囲まれた空間 (閉鎖系) で使用しなければならないので操作上の制限が多い。したがって、粒子に電荷を付与する場が閉鎖系ではなく解放系であり、瞬時に粒子を正あるいは負に任意の割合で帯電させられれば、新しい粒子帯電技術 (すなわち、分野横断型基盤技術) となりうる。

大気圧プラズマジェットを用いると、正イオンや電子を容易かつ多量に生成でき (Schütze et al., 1998; Massines et al., 2012)、電荷の生成機構も解明されてきているので (Teschke et al., 2005; Lu and Laroussi, 2006; Walsh et al., 2010; Lu et al., 2012, 2014)、プラズマ中の電荷を応用した技術の展開に期待が高まるが、大気圧プラズマジェットから任意の電荷を抽出して粒子に電荷を付与し、粒子の帯電を制御する方法は開発されていない。

2. 研究の目的

本研究では、プラズマジェットを自由空間に生成させて、単極イオンあるいは電子を抽出し、粒子に電荷を精密かつ速やかに付与する技術を開発することを目的とする。電荷を付与するプラズマジェット装置を設計・製作し、単極イオンの生成条件を明らかにしたのち、粒子を供給して帯電粒子の動的挙動を解析するとともに、帯電制御を決定するパラメータを定量的に解析・評価して、粒子帯電システムを構築する。

3. 研究の方法

(1) 単極荷電用大気圧プラズマジェット装置および操作条件の検討

① 大気圧プラズマジェット装置の試作

Fig. 1 に、大気圧プラズマジェット装置の基本構成を示す。希ガスには、大気圧プラズマジェットの生成に有利なヘリウムガスを使用し、マスフローコントローラーでガス流量を制御した。電極に印加する電圧は、ファンクションジェネレータの出力信号を高電圧アンプで増幅した。自由空間における電荷の生成量を評価するために、プラズマジェットの中心軸上、石英ガラス管の出口から 50 mm 離れた位置に微小電極 (外径 2 mm, 長さ 8 mm) を配置し、アースに流れる単位時間あたりの電荷 (すなわち、検出電流) をエレクトロメータで測定した。大気圧プラズマジェットの生成部として、電極の形状や配置が異なる多数の大気圧プラズマジェット装置が提案されて各種実験で使用されているが (Lu et al. (2012)、本研究では、2 種類の代表的な大気圧プラズマジェット装置を試作し、単極荷電装置への適用性を検討した。

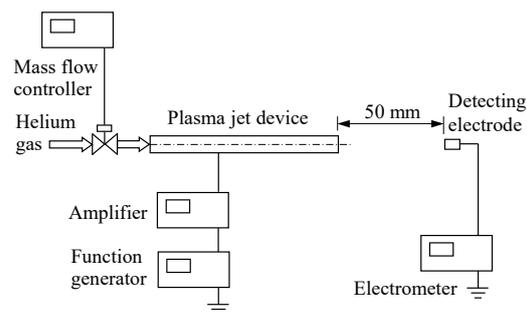


Fig. 1 Experimental setup for generating atmospheric pressure plasma jet

② 大気圧プラズマジェット生成部の構造の検討

Fig. 2 に、2 種類の大気圧プラズマジェット生成部の構造を示す。ひとつは内径 8 mm, 外径 10 mm の石英ガラス管の外側に円筒電極 (銅箔: 内径 10 mm, 長さ 50 mm) を取り付けた構造であり、もうひとつは石英ガラス管の内側に円筒電極 (銅管: 内径 6 mm, 外径 8 mm, 長さ 50 mm) を組み込んだ構造である。

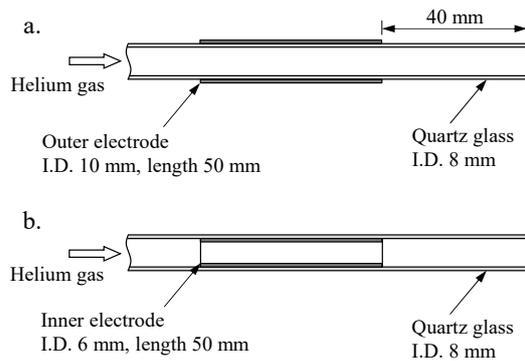


Fig. 2 Atmospheric pressure plasma jet devices: a. outer electrode system, b. inner electrode system

単極荷電に適した大気圧プラズマジェット装置の構造を検討するため、周波数 6 kHz、振幅 5 kV の正弦波交流電圧に直流バイアス電圧 +5 kV を加えて、電圧が 0–10 kV の範囲で周期変動するように設定したのち、ヘリウムガスを 1 SLM（標準状態 0 °C, 1 atm, 1 L/min）で供給した。試作したふたつの装置で安定した紫色のプラズマジェットが生成されたが、石英ガラス管の外側に電極を配置した場合、検出電流が +8 nA であったのに対し、内側に電極を配置すると +400 nA の値が得られた。前者では、印加した直流バイアス電圧の効果がほとんどみられなかったが、後者では、バイアス電圧の印加によって十分に大きい電流が測定された。ヘリウムガスが電極と接する構造では、プラズマジェット中の電子が、電極（正極）にすぐに引き戻されるので、自由空間には正イオンが多くなったと考えられる。すなわち、単極荷電に適した大気圧プラズマジェット装置は、電極を内側に配置して直流バイアス電圧を印加できる構造といえる。

③ 単極荷電抽出法の検討

Fig. 3 に、検出電流におよぼす直流バイアス電圧の影響を示す。印加した正弦波交流電圧の周波数は 6 kHz、振幅は 5 kV であり、直流バイアス電圧を -5 kV から +5 kV の範囲で変えると検出電流は負から正まで連続して変化した。負のバイアス電圧を印加するとプラズマ中の正イオンが電極に引き戻されるので、自由空間には電子が過剰に存在し、

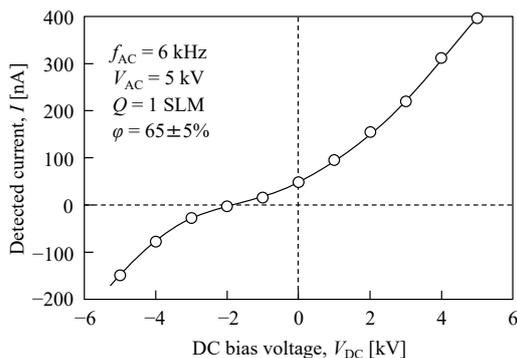


Fig. 3 Effect of DC bias voltage on space charge

バイアス電圧の符号を変えると、正イオンが過剰に存在するようになる。その割合は、直流バイアス電圧の大きさに依存するので、大気圧プラズマ中の電荷の濃度を直流バイアス電圧によって調節できる。

Fig. 4 に、ヘリウムガスの流量を変えて得られたプラズマジェットの画像を示す。正弦波交流電圧の周波数は 6 kHz、振幅は 5 kV、直流バイアス電圧は +5 kV で一定にした。ヘリウムガスの流量が 1 SLM のとき、紫色のプラズマジェットの長さは 20 mm 程度であり、ジェットの先端は細くなっているが、ヘリウムガスの流量を多くするとプラズマジェットは長く伸び、10 SLM ではプラズマジェットは 80 mm に達した。ただし、ヘリウムガスの流量を多くすると周囲の空気を乱すので、過剰な条件設定は避けるべきである。

Fig. 5 に、ヘリウムガスの流量を 1 および 5 SLM に設定し、微小電極の位置を変えて測定したプラズマジェット周辺の検出電流を

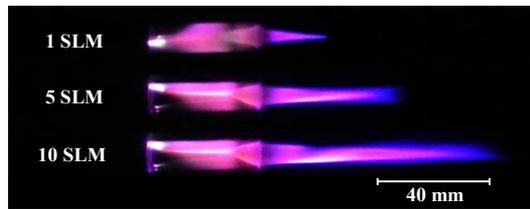


Fig. 4 Photographs of atmospheric plasma jets with different flow rates of helium gas ($f_{AC} = 6$ kHz, $V_{AC} = 5$ kV, $V_{DC} = +5$ kV)

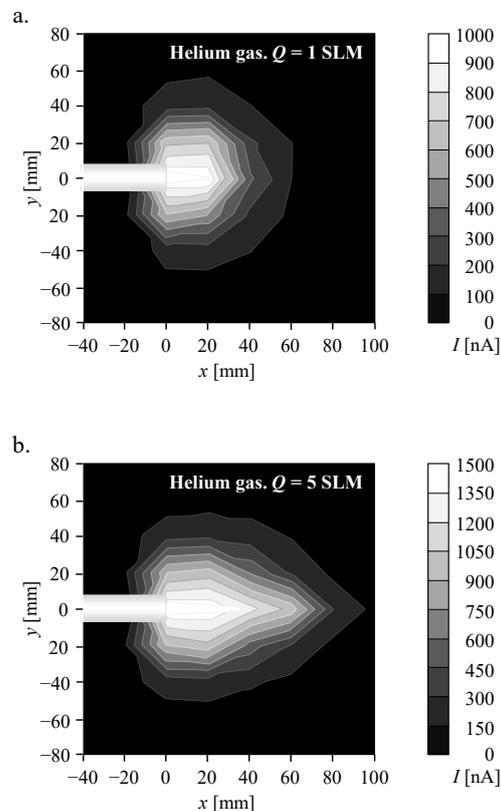


Fig. 5 Two-dimensional distribution of detected currents ($f_{AC} = 6$ kHz, $V_{AC} = 5$ kV, $V_{DC} = +5$ kV)

二次元分布として示す。プラズマジェットの周囲の検出電流は、距離が離れるほど低下した。また、ヘリウムガスの流量を多くするとプラズマジェットの検出電流は大きくなり、気流の方向に電荷の分布が伸びることもわかった。以上の実験結果を基にして、本研究における単極荷電用大気圧プラズマジェットの生成条件は、周波数 6 kHz、振幅 5 kV の正弦波交流電圧を標準とし、直流バイアス電圧は ± 5 kV の範囲で変更することにした。また、ヘリウムガスの流量は 1 SLM を標準とすることにした。

(2) 大気圧プラズマジェットによる粒子帯電実験

① 実験装置および方法

Fig. 6 に、大気圧プラズマジェットを用いた粒子帯電実験装置の概略構成を示す。内径 6 mm、外径 8 mm、長さ 110 mm の円筒電極（銅管）を内径 8 mm、外径 10 mm の石英ガラス管内に組み込んだ。円筒電極の終端と石英ガラス管の出口までの距離は 40 mm で一定とし、ヘリウムガスが水平に排出されるようにプラズマジェット生成部を配置した。

粒子は、振動フィーダーを用いて少流量（30 mg/s 以下）で 2 分間供給し、プラズマジェット内を重力落下した粒子を平板上に堆積させた。粒子の電荷が平板を介して漏洩しないように、平板には誘電体（厚さ 1 mm のアクリル板）を使用し、外部電場の影響を防ぐために、平板は接地した金属板の上に置いた。平板上に堆積した粒子の電荷は、吸引式ファラデーケージを使用して測定した。また、プラズマジェット内を粒子が通過しない条件でも実験を行った。すなわち、円筒電極に電圧を印加しない状態で粒子を 2 分間供給し、重力落下によって粒子を堆積させたのち、円筒電極に電圧を印加してプラズマジェットを 2 分間生成し、粒子の電荷を吸引式ファラデーケージで測定した。

使用した粒子は、マンガンフェライト（質量規準中位径 $D_{p50} = 79 \mu\text{m}$ 、体積抵抗率 $\rho_p = 7.6 \Omega \cdot \text{m}$ ）、アクリル樹脂で被覆したマンガンフェライト（ $D_{p50} = 81 \mu\text{m}$ 、 $\rho_p = 2.8 \times 10^3 \Omega \cdot \text{m}$ ）、アルミナ（ $D_{p50} = 51 \mu\text{m}$ 、 $\rho_p = 7.1 \times 10^7 \Omega \cdot \text{m}$ ）の

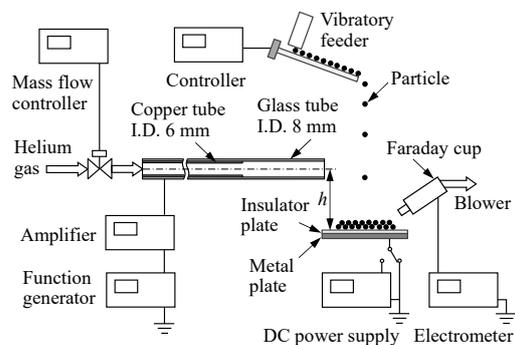


Fig. 6 Experimental setup for particle charging by atmospheric pressure plasma jet

3 種類であり、電気抵抗はそれぞれ大きく異なる。

② 粒子帯電実験の結果および考察

Fig. 7 に、粒子の表面電荷密度におよぼすプラズマジェットの中心軸と平板までの距離の影響を示す。直流バイアス電圧として +5 kV を印加した結果、粒子は正に帯電した。プラズマジェット内に粒子を重力落下させると（実線）、プラズマジェット内に粒子を通過させない場合（破線）に比べて、粒子の電荷は大きくなったが、いずれの場合においても、平板をプラズマジェットから遠ざけると粒子の帯電量は小さくなった。すなわち、プラズマジェット内に粒子を通過させることが粒子の帯電の必須条件ではなく、プラズマジェットの中心軸と平板までの距離が粒子の電荷を決める主要因子といえる。平板をプラズマジェットに近づけると、空間中の電荷の濃度は大きくなるので、帯電の進行も速くなるが、プラズマジェットは 2 分間照射しているので粒子の帯電に帯電速度の影響は現れず、平衡帯電を考えればよい。

本実験では、平板は接地した金属板の上に置いているので、正イオンは電場内の電気力線に沿って移動し、粒子に到達することになる。また、平板および金属板をプラズマジェットに近づけるほど、空間電荷に起因する電界強度は大きくなる。粒子の帯電がいわゆる電界荷電によるものと考えると、粒子の平衡帯電は電界強度とともに増加するので、平板をプラズマジェットに近づけるほど粒子の電荷は増加することになる。なお、個々の粒子が重力落下する過程で生じる電界荷電の方が、堆積粒子層を帯電させる場合に比べて、粒子表面を十分に帯電させる可能性が高く、この差が実験結果に表れたと考えられる。

Fig. 8 は、プラズマジェットの中心軸と平板までの距離を一定にし（30 mm）、直流バイアス電圧を変化させて得られた粒子帯電の結果である。粒子をプラズマジェット中に落下させる方が、帯電量（絶対値）は大きくなるが、直流バイアス電圧の値を変えることによって、粒子の電荷の符号および帯電量を制御できることがわかった。直流バイアス電圧

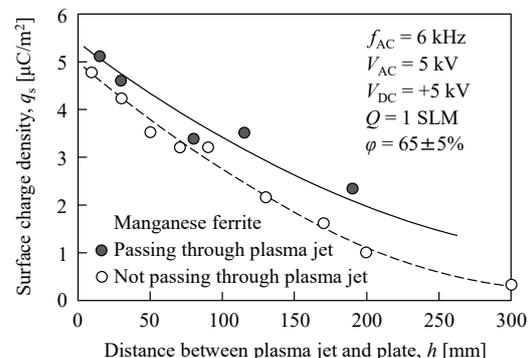


Fig. 7 Effect of distance between plasma jet and plate on particle surface charge density

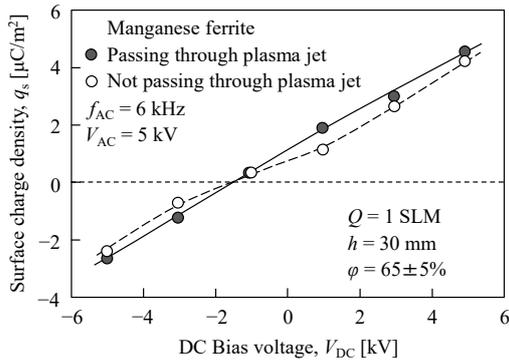


Fig. 8 Effect of DC bias voltage on particle surface charge density

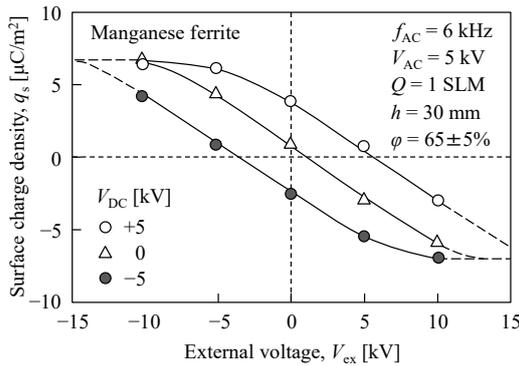


Fig. 9 Effect of external voltage on particle surface charge density

を変えると自由空間の電荷の濃度が変化し、これにともなって電界強度が変わるので、帯電量が変化したと考えられる。すなわち、直流バイアス電圧による粒子帯電の制御も、上で述べた電界荷電によって説明できる。

電界荷電は外部電場によって制御することも可能なはずである。平板下部の金属板を接地する代わりに電圧を印加し、粒子をプラズマジェット中に落下させずに堆積させたのち、プラズマジェットによって生成した電荷を2分間、粒子に照射する実験を行った。

Fig. 9に、粒子の電荷におよぼす外部電場の影響を示す。金属板に印加する電圧を ± 10 kV の範囲内で変えると、粒子の電荷の符号および値が大きく変化しており、粒子の帯電は外部電場によって制御できることが検証された。さらに、プラズマジェットのバイアス電圧を $+5$ kV あるいは -5 kV に変更すると空間に生成される正イオンや電子の濃度が変化するので、空間の電場も変わることになる。空間の電荷によって形成される電場と外部電場の向きが逆で強度が同じ場合、電荷の移動は停止する。

Fig. 10 異なる材質（マンガンフェライト、アクリル樹脂で被覆したマンガンフェライト、アルミナ）の粒子を用いて行った帯電実験の結果である。ここでは、操作条件として直流バイアス電圧を変化させたが、同図からわかるように、粒子の表面電荷密度におよぼす直流バイアス電圧の影響は同様であり、プラズマジェットによって生成される正イオン

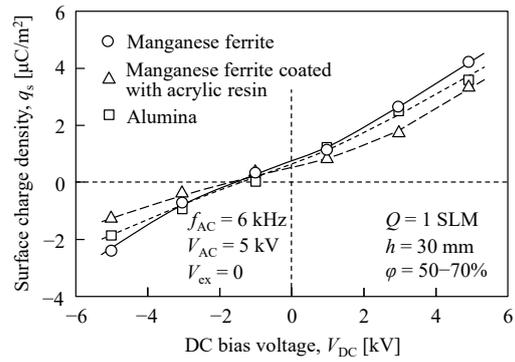


Fig. 10 Particle surface charge density for different materials

や電子を用いて粒子の電荷を制御することは可能といえる。

4. 研究成果

単極荷電用大気圧プラズマジェット装置を設計・製作し、基礎特性を評価した結果、プラズマジェット生成部は、石英ガラス管内側に円筒電極を取り付ける構造が適していることがわかった。正弦波交流電圧として 6 kHz、振幅 5 kV を印加し、ヘリウムガスを 1 SLM で供給すると紫色のプラズマジェットが生成され、直流バイアス電圧の符号および大きさを変更すると大気圧プラズマ中の電荷を負から正まで連続して変更できた。すなわち、直流バイアス電圧によって大気圧プラズマジェット中の正イオンや電子を選択的に抽出できた。

次に、大気圧プラズマジェットを用いた粒子帯電実験装置を製作して実験的検討を行い、プラズマジェットで生成した正イオンや電子を利用して粒子に任意の極性の電荷を適切な割合で付与する方法を開発した。粒子の帯電機構は電界荷電が支配的であり、直流バイアス電圧を制御する方法と外部電場を制御する方法を併用すると設定の自由度がさらに高くなることを明らかにした。

<引用文献>

- ① Bunchatheeravate, P., J. Curtis, Y. Fujii and S. Matsusaka; "Prediction of Particle Charging in a Dilute Pneumatic Conveying System," *AICHE J.*, 59, 2013, 2308–2316
- ② Lu, X. and M. Laroussi; "Dynamics of an Atmospheric Pressure Plasma Plume Generated by Submicrosecond Voltage Pulses," *J. Appl. Phys.*, 100, 2006, 063302
- ③ Lu, X., M. Laroussi and V. Puech; "On Atmospheric-Pressure Non-Equilibrium Plasma Jets and Plasma Bullets," *Plasma Sources Sci. Technol.*, 21, 2012, 034005
- ④ Lu, X., G.V. Naidis, M. Laroussi and K. Ostrikov; "Guided Ionization Waves: Theory and Experiments," *Phys. Rep.*, 540, 2014, 123–166
- ⑤ Massines, F., C. Sarra-Bournet, F. Fanelli, N.

- Naudé and N. Gherardi; “Atmospheric Pressure Low Temperature Direct Plasma Technology: Status and Challenges for Thin Film Deposition,” *Plasma Process. Polym.*, 9, 2012, 1041–1073
- ⑥ Matsusaka, S., M. Oki and H. Masuda; “Control of Electrostatic Charge on Particles by Impact Charging,” *Adv. Powder Technol.*, 18, 2007, 229–244
- ⑦ Mizutani, M., K. Takeda, M. Yasuda and S. Matsusaka; Characterization of Particles Triboelectrically Charged by a Two-Stage System using Vibration and External Electric Fields, *Journal of the Society of Powder Technology, Japan*, 50, 2013, 832–839
- ⑧ Schütze, A., J. Y. Jeong, S. E. Babayan, J. Park, G. S. Selwyn and R. F. Hicks; “The Atmospheric-Pressure Plasma Jet: A Review and Comparison to Other Plasma Sources,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 26, 1998, 1685–1694
- ⑨ Teschke M., J. Kedzierski, E. G. Finantu-Dinu, D. Korzec and J. Engemann; “High-Speed Photographs of a Dielectric Barrier Atmospheric Pressure Plasma Jet,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 33, 2005, 310–311
- ⑩ Walsh, J. L., F. Iza, N. B. Janson, V. J. Law and M. G. Kong; “Three Distinct Modes in a Cold Atmospheric Pressure Plasma Jet,” *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 43, 2010, 075201

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計6件)

- ① 北嶋士郎, 安田正俊, 松坂修二; 「大気圧プラズマジェット電荷抽出法による誘電板上移動粒子の表面電荷の制御」, *化学工学論文集*, 査読有, 43, 2017, 16–21
https://www.jstage.jst.go.jp/article/kakoronbunshu/43/1/43_16wh036/article/-char/ja/
- ② 松坂修二, 野口敦史, 北嶋士郎, 安田正俊; 「大気圧プラズマジェットを利用したイオン/電子照射による粉体層の荷電」, *化学工学論文集*, 査読有, 42, 2016, 137–141
https://www.jstage.jst.go.jp/article/kakoronbunshu/42/4/42_16wh020/article/-char/ja/
- ③ 松坂修二, 野口敦史, 北嶋士郎, 安田正俊; 「大気圧プラズマジェットによる粒子表面電荷の制御」, *化学工学論文集*, 査読有, 42, 2016, 100–106
https://www.jstage.jst.go.jp/article/kakoronbunshu/42/3/42_15wh058/article/-char/ja/
- ④ Techaumnat, B. and S. Matsusaka; “Effect of Charge Transfer on Electrostatic Adhesive Force under Different Conditions of Particle Charge and External Electric Field,” *Powder Technology*, 査読有, 301, 2016, 153–159
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0032591016303461>
- ⑤ Mizutani, M., M. Yasuda and S. Matsusaka; “Advanced Characterization of Particles

Triboelectrically Charged by a Two-Stage System with Vibrations and External Electric Fields, *Advanced Powder Technology*,” 査読有, 26, 2015, 454–461

<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0921883114003148>

- ⑥ Matsusaka, S., D. Wei, M. Yasuda and S. Sasabe; “Adhesive Strength Distribution of Charged Particles on Metal Substrate in External Electric Field,” *Advanced Powder Technology*, 査読有, 26, 2015, 149–155
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0921883114002350>

〔学会発表〕(計7件)

- ① 松坂修二; 「大気圧プラズマジェットによる粒子の帯電」, 粒子帯電制御研究会(招待講演)2016年9月2日, 同志社大学鳥丸キャンパス
- ② 松坂修二, 北嶋士郎, 安田正俊; 「粒子の帯電制御用大気圧低温プラズマジェットの開発」, 粉体工学会春期研究発表会, 2016年5月17–18日, 京都リサーチパーク
- ③ 松坂修二, 野口敦史, 北嶋士郎, 安田正俊; 「大気圧プラズマジェットによる粒子表面電荷の制御」, 化学工学会第81年会, 2016年3月13–15日, 関西大学千里山キャンパス
- ④ 北嶋士郎, 安田正俊, 松坂修二; 「大気圧プラズマジェットを用いた粒子帯電機構の解明」, 粉体工学会秋期研究発表会, 2015年10月13–14日, 大阪南港 ATC コンベンションルーム
- ⑤ Matsusaka, S.; “Characterization of particles triboelectrically charged in external electric field,” STEP-1 (招待講演) 2014年12月20日, Soka University
- ⑥ 松坂修二; 「付着, 流動, 静電気の特性評価と粉体ハンドリングへの応用」, NEPTIS-23 (招待講演) 2014年12月19日, ステーションコンファレンス東京
- ⑦ 野口敦史, 安田正俊, 松坂修二; 「大気圧低温プラズマジェットを利用した粒子の帯電現象」, 粉体工学会秋期研究発表会, 2014年11月25–26日, 東京ビッグサイト

〔その他〕

京都大学学術情報リポジトリ

- ① <https://repository.kulib.kyoto-u.ac.jp/dspace/handle/2433/217406>
- ② <https://repository.kulib.kyoto-u.ac.jp/dspace/handle/2433/217405>
- ③ <https://repository.kulib.kyoto-u.ac.jp/dspace/handle/2433/224939>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松坂 修二 (Matsusaka, Shuji)

京都大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 10219420