

令和 4 年 6 月 10 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02494

研究課題名(和文) プラズマサイクロンの開発と選択的粒子処理

研究課題名(英文) Development of plasma installed cyclone for size-selective particle treatment

研究代表者

関口 秀俊 (Sekiguchi, Hidetoshi)

東京工業大学・物質理工学院・教授

研究者番号：50226643

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：この研究では、固気分離装置であるサイクロン内にプラズマを導入し、粒径選択性を有する粒子処理装置の開発を目的とした。粒子挙動を含む3次元数値流体計算を基に3Dプリンターで作製したサイクロンに、特定の粒子径の粒子が通過すると推測された場所にプラズマを発生させ、ポリエチレン粒子を処理した。その結果、5～10 μm の粒子のみが球状化し処理の粒径選択性が示された。さらに粒子の入口とプラズマの位置の関係を調べて処理を行ったところ、処理量が減少し、選択性はプラズマの位置に依存することが確認された。得られた結果を総括し、提案したプラズマサイクロンは粒径選択性を有する革新的な粒子処理装置であると結論された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

この研究では、伝統的な固気分離装置であるサイクロンにプラズマを導入することで、特定の粒径の粒子のみをプラズマで処理することに成功した。学術的な面では、流体解析とこれを元にした装置設計、そして実験とプラズマ観察等により、粒子プロセッシング場として重要な基礎的知見を得ることができた。一方、社会的な面では、この革新的な装置により、粒径選択性というサイクロンの特長と、プラズマ中の高エネルギー電子や活性種による処理というプラズマの特長を共に活かした革新的な粒子処理プロセスが実現され、得られた知見と成果は、粉体プロセッシングにおけるプラズマ利用の新たな展開の起点になるといえる。

研究成果の概要(英文)：The objective of this study was to develop a particle treatment system with size selectivity by introducing plasma into a cyclone, which is a solid-gas separation device. Polyethylene particles were treated by the cyclone fabricated with a 3D printer based on 3D numerical fluid dynamics calculations including particle behavior. The plasma was generated at the specific location in the cyclone where particles with specific sizes were supposed to pass through. As a result, only particles with diameters of 5 to 10 μm were spheronized, indicating the size selectivity of the treatment. Furthermore, when the relationship between the cyclone inlet and plasma position was changed, the amount of the treatment decreased significantly, indicating that the selectivity depended on the plasma position. It was concluded that the plasma cyclone proposed here is a novel particle treatment system with size selectivity.

研究分野：化学工学

キーワード：サイクロン プラズマ 粒子処理

1. 研究開始当初の背景

サイクロンは安価な気固分離機として知られており、その寸法、入口ガス流速、粒子の種類、ガスの種類などを操作パラメーターとして、粒子を含むガス流から特定の粒径を持つ粒子を分離することができる。サイクロンに導入された粒子は、主にガスから受ける抗力、旋回流による遠心力、さらに重力によって、その運動が支配されているため、粒径によって挙動が異なり、すなわちサイクロン内部の粒子の軌道は、粒径に依存する。したがって、サイクロン内部において局所的な処理を行うことは、特定の粒子径の粒子のみを選択的に処理することにつながると考えられる。

放電によって生成するプラズマは高エネルギー密度媒体であり、その熱的性質により短時間で微粒子などを加熱・溶解することができる。さらにプラズマ中に存在する活性種等により、親水性の付与といった粒子表面への化学的修飾も可能である。そこで、サイクロン内に局所的にプラズマを発生させることができれば、特定の粒子径の粒子のみを選択的にプラズマ処理できると考えられるが、これまで提案されているプラズマによる粒子処理装置は、粒径選択性を持つものは提案されていない。

2. 研究の目的

この研究では、伝統的な気固分離装置であるサイクロン内の特定の位置にプラズマを導入し、プラズマ中に存在する高エネルギー電子や活性種による粒子表面への物理的・化学的修飾を行い、サイクロンの特長である粒径選択性を活かした革新的な粒子処理プロセスの開発を目的とした。数値計算によるサイクロン内での流体解析と粒子の挙動解析をもとに、最適なサイクロンを設計し、これを3Dプリンターで作製して実験を行い、粒子の捕集率や処理状況を調べることを通して、提案したプラズマ粉体プロセッシングの基礎的知見を得ることとした。

3. 研究の方法

研究は、まず、流体シミュレーションによりサイクロン内部の粒子の運動を解析し、局所的な処理に最も適したサイクロンを設計した。その後、このデータをもとに3Dプリンターでサイクロンを作成し、このサイクロン内部に電極を取り付け、プラズマ処理を行い、粒径分布や表面状態の変化を調べることで粒子処理の評価を行った。

3.1 サイクロン内部のガス流れおよび粒子軌跡の数値解析

サイクロン内部の粒子挙動を解析するため、流体シミュレーションソフトウェアであるCOMSOL Multiphysics 5.4を用いてサイクロン内部の流れ場を計算し、得られた計算結果をもとに粒子の軌跡計算を行った。流体はアルゴン、温度は常温とし、粒子は0.32~200 μm の粒径を持つ球形のPTFE粒子とした。そして導入後5秒後までの粒子の軌跡を求めた。

3.2 3Dプリンターによるサイクロンの作製

上記の計算により、サイクロンの形状として、円筒部：円錐部を10:90とすると20 μm 付近の粒子が円錐部において集中して流れると推測されたことから、この形状を持つサイクロンを3Dプリンターにより作製した。また、実際に20 μm の粒子が多く流れている場所を確認し、ここに放電を発生させるため、電極（ステンレス線、直径0.55mm）をサイクロン内部に取り付けた。

3.3 粒子処理実験

反応器を含む実験装置の全体図を図1に示す。サイクロンにはコンプレッサにより空気を供給し、粒子は粒子供給装置により導入した。電極には高周波電源が接続され、交流高電圧を印加することで、放電を発生させた。処理粒子には、PTFEを用いた場合、目立った効果が見られなかったため、代わりにポリエチレン粒子を処理対象に用いた。処理された粒子は、電子顕微鏡により、形状変化の観察や粒径分布の測定を行うとともに、ATR法を用いたフーリエ変換赤外分光計測（FT-IR）により、粒子表面の官能基の変化を調べた。また、粒子を導入しない状態で、高速度カメラを用いた放電の挙動解析も行った。

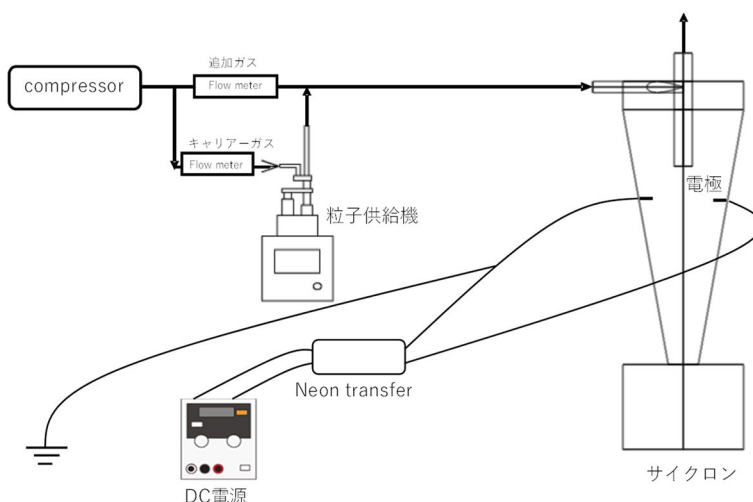


図1 実験装置図

4. 研究成果

4.1 サイクロン内部のガス流れおよび粒子軌跡の数値解析

数値解析により、粒径がそれぞれ 2, 20, 200 μm の粒子が 0.4 秒後にサイクロン内にどのように分布しているかを、計算に用いたサイクロンのサイズと共に図 2(a, b-1, 2, 3)に示す。2 μm や 200 μm の粒子は比較的サイクロン全体に分布しているが、20 μm の粒子は帯状の軌跡を持っていることがわかる。図 2(d)は、この帯状軌跡を立体的に示したものであるが、図中に赤で示すような部分にプラズマを発生させることができれば、他の粒径の粒子も処理されるものの、20 μm の粒子は他に比べて多量に処理することが可能と考えられる。

さらに、同様な計算を、サイクロンの導入部の円筒の高さや円錐部の高さを変えて行ったところ、円筒部の高さ 10mm、円錐部の高さ 90mm が最も軌跡がまとまり、局所的な処理に適していると考えられたため、このサイクロン形状を実際に作製することとした。

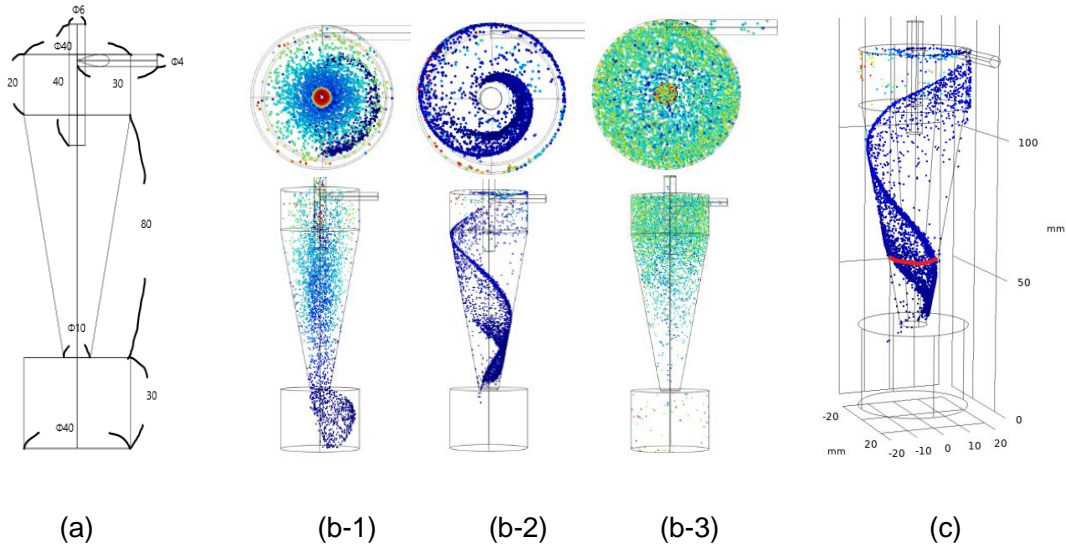
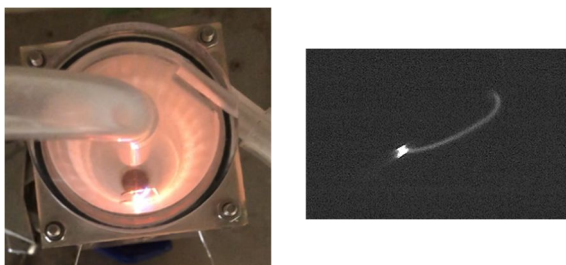


図 2 サイクロンに内に導入された粒子の軌跡

- (a) 解析したサイクロンのサイズ(mm)、(b-1,2,3) 粒径 2 μm , 20 μm , 200 μm の粒子の軌跡
(c) 粒径 20 μm の粒子の 3D 軌跡と提案するプラズマ処理の位置

4.2 高速度カメラによる放電挙動の解析

放電の様子をデジタルカメラと高速度カメラで撮影した画像を図 3 に示す。デジタルカメラの画像では、連続的に発光が起きているように観察されたが、300,000 フレーム速度(fps)の高速度カメラ撮影により、放電は、発生と消滅を繰り返していることが確認された。また放電は、ガス流れによってアークが移動するグライディングアーク放電ではなく、アークは移動せずにほぼ同じ位置で発生していた。高速度カメラで撮影された各フレームを解析したところ、放電維持時間はおよそ 3×10^{-5} 秒、放電間隔は 2.7×10^{-4} と推測された。さらに放電の直径(測定値:0.545mm)や、この放電に対するガス流れとの角度(推定値: 30°)を勘案して、粒子の速度に対する放電の処理回数を推測した結果を図 4 に示す。処理割合が 1 以上となっている条件は、粒子が放電空間を移動する際に 1 回以上の放電が起きていることを示す。サイクロン内の流体解析の結果では、電極付近のガス流速は 0.4 ~ 1.5 m/s と計算されており、実際の粒子の移動速度もこれに近い値と考えると、実験においては、粒子が放電空間を移動する際に、2.5 回以上プラズマと接触し処理されていると推測される。



(a) 通常のカメラ、(b) 高速度カメラ

図 3 放電の様子

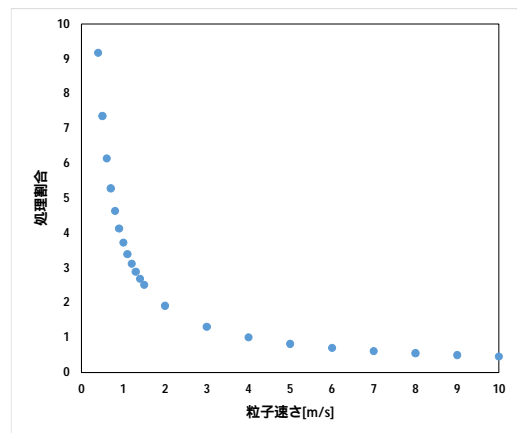


図 4 粒子速度に対する放電による処理回数

- (a) 通常のカメラ、(b) 高速度カメラ

4.3 粒子表面の官能基解析

ATR 法を用いて処理前後のポリエチレン粒子表面の FT-IR 測定を行い、表面に存在する官能基の変化を調べた。その結果、プラズマ処理後の粒子では、1750 ~ 1650cm⁻¹ 付近および 1570 ~ 1500cm⁻¹ 付近のピーク強度が強くなっているように見受けられた。前者は C=O 由来のピークであり、放電によって生成する含酸素活性種が反応し、カルボニル基が生成したと推測される。一方、後者は NO₂ や NH に由来するものと想定され、これは含窒素活性種によるものと考えられる。実験は、空気を用いているため、酸素、窒素由来の官能基が生成することは容易に推測できる。ただし、これらの変化はわずかで有り、今回用いたプラズマの化学的効果は余り大きくなかったと考えられる。

4.4 粒子の形状変化

プラズマ処理によるポリエチレン粒子の形状変化を SEM により観察した結果、プラズマ処理前はすべての粒子が凹凸状となっているのに対し、プラズマ処理後は一部の粒子が球形に変化していた。これはサイクロン中に生成させたプラズマにより、この部分を通じた粒子が融解し、その後、凝固したためと考えられた。そこで、この効果を定量的に評価するため、SEM 画像から粒径に対する粒子の個数分布を求めた。その結果を図 5 に示す。図の縦軸は粒度分布の積算値を示す。これより、球形に変形した粒子は、粒径が 5 ~ 10μm に集中していることがわかる。これは、この範囲の粒子が比較的多くプラズマ領域を通過することを示唆している。一方、処理されていない粒子の分布は、処理前の分布と大きく変わっていないが、5 ~ 10μm の粒径範囲の割合が多少、少ない。この結果からもこの粒径範囲の粒子処理が進んでいるといえる。

ここで、粒子の球状化について、プラズマからの熱供給という観点で検討を行う。粒子が融点まで昇温し、さらに溶融するまでに要する時間 t は以下の式で表せると仮定する。

$$t = \frac{\rho_p d_p C_{p,p}}{6h} \ln \frac{T_f - T_0}{T_f - T_m} + \frac{\rho_p d_p \lambda_{m,p}}{6h(T_f - T_m)}$$

- T_f プラズマの温度 [K]
- T_m 粒子の融点 [K]
- h 熱伝達係数 [J/m²·K·s]
- ρ_p 粒子の密度 [kg/m³]
- $C_{p,p}$ 粒子の定圧比熱 [J/kg·K]
- $\lambda_{m,p}$ 粒子の融解エンタルピー [J/kg]

上述した放電挙動から、粒子は 7.5x10⁻⁵ ~ 2.7x10⁻⁴ 秒間プラズマと接触すると考えると、この式から、プラズマ温度 T_f に依るものの、20μm の粒子は、この接触時間では溶融しないが、10μm 以下の粒子は溶融されるという結果となり、すなわちプラズマ処理が 5 ~ 10μm の粒子に集中すると考えられる。さらに、粒子がサイクロン内に均一に分散しているとすれば、観測された放電の体積から、処理前の粒子数に対して 1% 以上処理が行われていないと、放電による選択的な処理とはいえない。そこで、SEM 画像から粒径ごとに処理された割合を算出した結果を図 6 に示す。これより粒径が 10μm 以下の場合、割合が 1% を大幅に超えており、サイクロン内部の局所的なプラズマの存在により、10μm 以下の粒子が効率的に処理されていることがわかる。

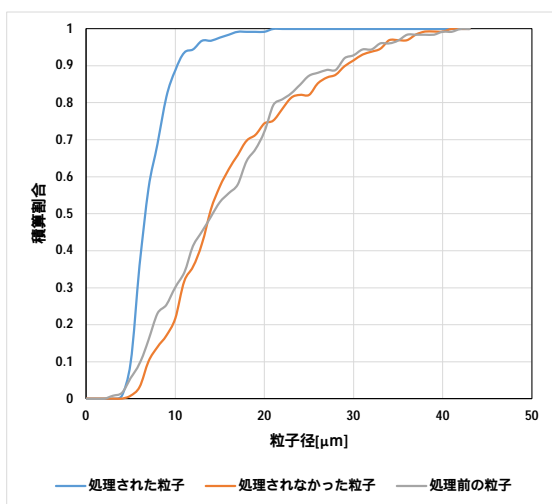


図 5 処理前後の粒子の粒度分布

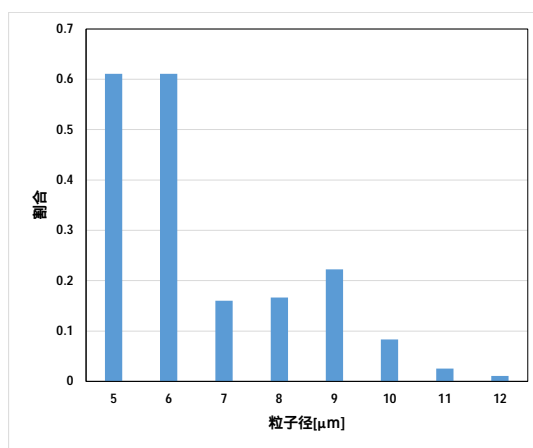


図 6 処理された粒子の割合

粒子の軌跡はサイクロンの粒子導入位置で変化すると予測されたことから、入口を 180 度逆転させ、帯状軌跡上で放電が起こらず、その向かい側で放電が起こる位置関係で粒子処理を行った。その結果を図 7 に示す。処理された粒子の粒径分布には変化は無かったが、処理された粒子

数が明らかに減り、放電の位置によってサイクロン内部での処理量に大きな差が生じることが明らかとなった。したがって、数値解析で予測されたとおり、特定の粒径を持つ粒子はサイクロン内で帯状の軌跡を示し、その軌跡上に放電を起こしてプラズマ処理することで、粒径選択性をもつ粒子処理が行われたといえる。

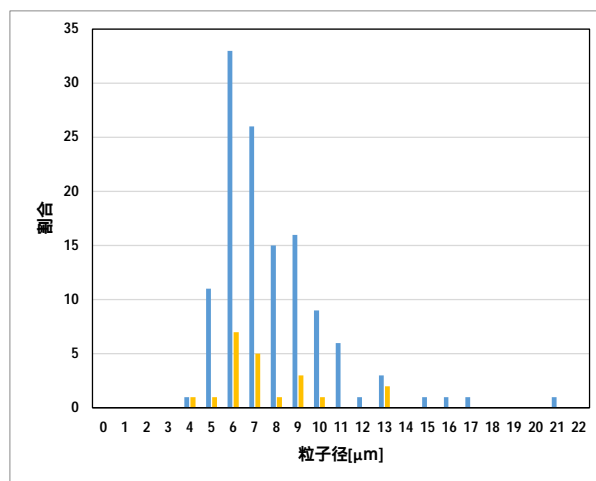


図7 導入位置による処理された粒子の割合変化

青：通常的位置、黄：180度反転させた位置

4.5 総括

本研究では、サイクロン内部に電極を導入し、放電によって局所的にプラズマを発生させ、粒径選択性を持つサイクロン型プラズマ反応器の開発を行った。

- ・ 粒子処理に適したサイクロン形状を設計するため、サイクロン内部流の数値計算を行い、その結果を基に粒子の軌跡を推測した。そして、特定の粒径を持つ粒子がサイクロン内で帯状の軌跡をもつことが示され、この場所での局所的な放電により、この粒子を選択的に処理できると推測された。
- ・ 数値計算で最適とされたサイクロンを、3Dプリンターを使用して作製した。そして、20μmの粒子が帯状に流れる場所を特定し、この部分に電極を取り付け、プラズマ処理を行う装置を作製した。
- ・ 作製した装置内の放電の様子を高速度カメラにより撮影し、放電維持時間と放電間隔を計測した結果から、粒子が放電領域を通過する間に放電が複数回接触していることが示唆された。
- ・ 作製した装置を用いて、ポリエチレン粒子の処理を行ったところ、わずかな表面官能基の変化と粒子の球状化が確認された。球状化した粒子径は5~10μmに集中し、処理されない粒子の粒径との違いが確認された。
- ・ サイクロンの粒子導入口を180度変え、入口と放電の位置関係を逆転させた場合、粒子の処理量が減少したことから、特定の粒径を持つ粒子がサイクロン内で帯状の軌跡をもつこと、そしてこの場所での局所的な放電により、この粒子を選択的に処理できることを裏付ける結果が得られた。

以上のことから、本研究で提案されたプラズマサイクロンは、粒径選択性を有する粒子処理装置として十分にポテンシャルを有し、プラズマを用いた粒子処理プロセスとして新たな展開の起点になると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sekiguchi H., Kodama S., Ishikawa K., Miyazaki K.	4. 巻 778
2. 論文標題 Size-Selective Treatment of Polypropylene Particles in a Plasma Cyclone Reactor	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 IOP Conference Series: Materials Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 012057 ~ 012057
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1757-899X/778/1/012057	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 H. Sekiguchi, S. Kodama, K. Ishikawa, K. Miyazaki
2. 発表標題 Size-Selective Treatment of Polypropylene Particles in a Plasma Cyclone Reactor
3. 学会等名 26th Regional Symposium on Chemical Engineering（国際学会）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

	氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
研究 分 担 者	小玉 聡 (Kodama Satoshi) (90589417)	東京工業大学・物質理工学院・助教 (12608)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------