

タンデム型変調誘導熱プラズマを用いた Si ナノ粒子生成における シースガス H₂ ガス流量依存性

長瀬 有理奈, 古川 颯大, 不破知哉

田中 康規, 中野 裕介, 石島 達夫 (金沢大学)

末安 志織, 渡邊 周, 中村 圭太郎 (日清製粉グループ本社)

1. まえがき

Si ナノ粒子(Si NPs)は、大容量リチウムイオン電池の負極材への利用が期待されている。筆者らは、これまでにパルス変調誘導熱プラズマ(PMITP)と原料粉体の時間制御供給(TCFF)との組み合わせを用いた機能性ナノ粒子の大量生成法を開発している[1]。しかし PMITP は外部からの大きな擾乱に弱いため、大量の Si 原料を投入により熱プラズマが消滅する問題がある。このことに対し、筆者らはタンデム型変調誘導熱プラズマ(Tandem-MITP)を新しく開発した[2]。Tandem-MITP では、2つの独立した電源と2つのコイルにより熱プラズマを安定に維持でき、効率的なナノ粒子生成が期待できる。さらに、比エンタルピー・熱伝導率が高い H₂ ガスをシースガスに加えることで、原料 Si をより加熱させ、一方で熱プラズマ下部での強い温度勾配を実現させ、より多くのナノ粒子が生成可能と考えられる。本報では、シースガスへの H₂ ガス導入流量を変更した時の生成粒子の粒径および組成に与える影響を検討した。

2. 実験条件

実験装置の概略図を Fig. 1 に示す。実験条件は以下のように設定した。チャンバ内圧力を 300 torr, 上段コイルおよび下段コイルへの入力電力をそれぞれ 15 kW および 10 kW, コイル電流周波数を 360 kHz および 210 kHz とした。上段コイル電流および下段コイル電流は矩形波振幅変調とし、変調割合を示す SCL[1]はそれぞれ 70%SCL および 10%SCL とした。変調周期は 15 ms とし On-time を 10 ms, Off-time を 5 ms とした。Si 原料粉体を、平均供給レートを 17g/min とし、Ar キャリアガス 4 slpm とともに変調熱プラズマに同期して間歇供給した。シースガス Ar 90 slpm に対し、H₂ を 0 slpm, 0.5 slpm, 1.0 slpm, 1.5 slpm 導入し、Filter 部で回収した生成粒子の粒径および組成を評価した。

3. 生成ナノ粒子の分析結果

Fig. 2 に、Filter 部で回収した、0 slpm および 1.5 slpm の条件における生成粒子の SEM 画像を示す。同図から、いずれの条件においても NPs が生成されたことがわかる。

Fig.3 は、Fig.2 の SEM 画像から約 400 個の粒子径を測定して求めた粒径度数分布である。これらの粒径度数分布から、粒径 100 nm 以下のナノ粒子の割合を求めた結果、H₂ 流量 0 slpm では 60%, H₂ 流量 1.5 slpm では 75% であった。水素を導入するとナノ粒子生成割合が増加した理由は、チャンバ部の温度が低下し、原料蒸気が急冷されたためと考えられる。Ar シースガスへの H₂ ガスの追加により、H₂ の解離にエネルギーが消費され、プラズマが収縮する。H₂ ガスは熱伝導率が高いため、チャンバ壁付近の温度は低下し、核が生成されやすくなったと考えられる。以上から、H₂ ガスの導入により、原料蒸発蒸

気の冷却効果向上が見込め、粒子成長の抑制が可能である。なお、これらの温度低下効果は変調熱プラズマに対する電磁熱流体解析の結果からも確認した。

参考文献

- [1] N. Kodama, et al. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **47**,195304(2014)
[2] K. Kuraishi, et al. *J. Phys. Conf. Ser.*, **441**, 012016(2013)

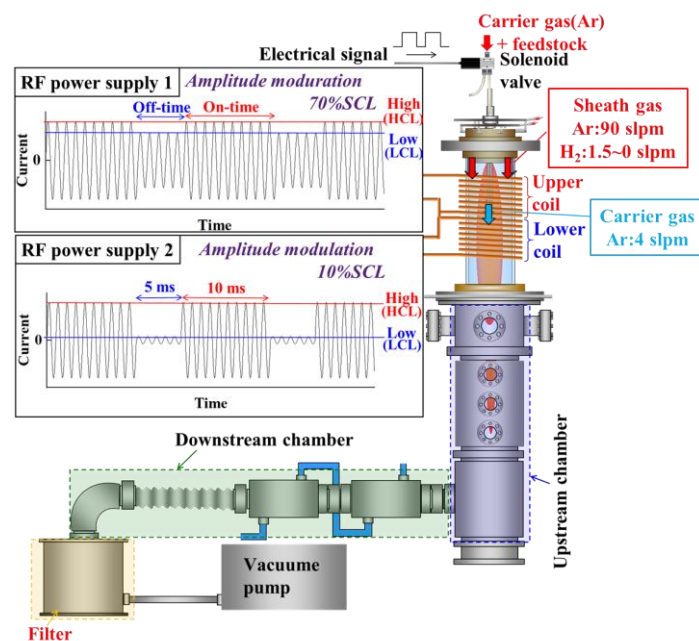


Fig. 1 Tandem-MITP system for NPs synthesis.

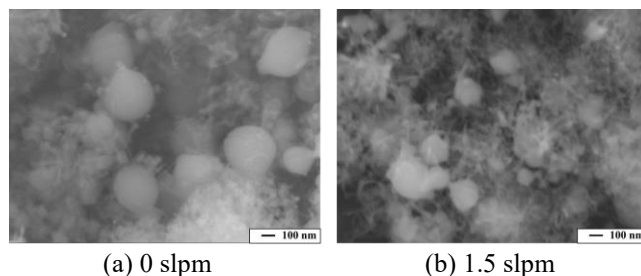


Fig. 2 FE-SEM images of nanoparticles under different conditions of H₂ gas injection.

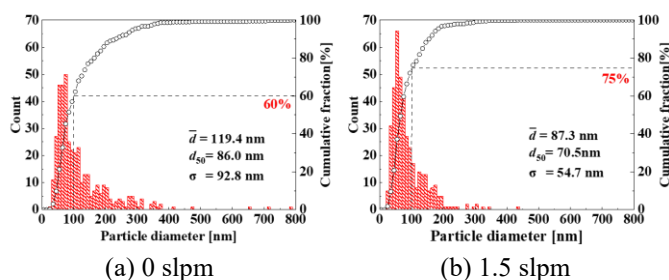


Fig. 3 Particle size distribution of fabricated nanoparticle.