

氏名	りん じゃしゅ 林 嘉澍
学位(専攻分野)	博士 (工学)
学位記番号	博甲第958号
学位授与の日付	令和2年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科 電子システム工学専攻
学位論文題目	Formation and transport of particles in low temperature plasmas (低温プラズマにおける微粒子の形成と輸送に関する研究)
審査委員	(主査)教授 高橋和生 教授 一色俊之 教授 栗辻安浩 オルレアン大学 教授 Laifa Boufendi オルレアン大学 教授 Mikael Motelica

論文内容の要旨

本論文では微粒子プラズマが扱われ、プラズマ内に存在する微粒子が研究対象となっている。研究内容は大きく分けて二つの部分からなる。一つはプラズマ内における微粒子の形成についてであり、もう一つはプラズマ内における微粒子の挙動についてである。

プラズマ内における微粒子の形成に関する研究では、アセチレンとアルゴンの混同ガスにおける高周波プラズマが用いられ、微粒子がアセチレンの連鎖反応から生成されることがわかった。プラズマ内における微粒子は、三つの過程、核形成、凝集、表面成長を経て形成されることが先行研究で明らかになっている。本研究では、核形成に要する時間がプラズマ条件、圧力、電力、ガス温度に対して変化することが実験で確認された。核形成過程は、放電の自己バイアスの変化から観測される。核形成が起こり、核同士の凝集が始まる瞬間、微粒子の帯電量がその成長と共に急速に増大し、プラズマ内の電子密度が低下する。それにより自己バイアスの値が急激に変化する。放電開始からこの時点までの時間を微粒子の核形成時間と定義した。核形成時間はガス温度の上昇と共に増大し、圧力及び電力の増大により減少した。即ち、高温では核形成の進行は遅くなり、高圧力、高電圧下では進行が速くなった。核形成のガス温度への依存性は、アセチレンの分子振動の状態により説明される。アセチレンの連鎖反応は振動エネルギーによって引き起こされるが、アルゴン分子との衝突により、この振動が緩和される。高温ではこの衝突緩和がより頻繁になり、核形成が妨げられる。また、形成された核は拡散し、これがプラズマ内に滞在するには電子により負に帯電する必要がある。高圧力条件は核の拡散速度を減少させ、また、高電圧条件はその帯電確率を増大させるため、核形成が有利に進行する。

プラズマ内における微粒子の挙動についての研究では、大きさが既知の微粒子がアルゴンプラズマ内に導入され、レーザ光の散乱により観察された。微粒子をコントロールする手法として、高周波プラズマに対するパルス変調が試みられた。パルス変調とは方形波を高周波に重畳し、方形波の周期に合わせて高周波をオンオフすることである。パルス変調がプラズマパラメーターに与える影響が調査され、変調により電子温度を減少させられることが示された。高周波の振幅が、プラズマ密度に関係することも計測により示された。パルス変調の有無、高周波の振幅により、

微粒子の浮遊位置、落下過程、落下地点が変化する様子について考察された。プラズマ内での微粒子の運動は微粒子の受ける力によって説明される。本研究では主に重力、静電力、イオン粘性力を考慮した。プラズマ密度の増加は両極性拡散によるイオンの粘性力を増大させ、電子温度の低下は静電力を減少させる。イオン粘性力は微粒子を外部に押し出す力として、静電力は内部に閉じ込める力として作用する。微粒子は力が均衡する所で浮遊する。シース電界から受ける静電力が微粒子に働く重力及びイオン粘性力と均衡しない時に、微粒子は落下することが示された。また、大小二種の微粒子が存在するとき、そのサイズの違いによってもたらされる影響が検討された。重力、静電力、イオン粘性力はそれぞれ異なるサイズ依存性を有するため、サイズの違いにより、力の均衡点が異なり、微粒子がサイズにより分離されて浮遊する。高周波の振幅等の浮遊する条件も異なり、あるサイズの微粒子のみを落下させ、もう一方をプラズマ内に浮遊させたままにできることを示した。これにより、サイズによる微粒子の分離法の提案が可能である。

本研究を通してプラズマ内での微粒子の形成及び挙動が調査され、それらの機構について論じられた。将来の展望として、本研究で得られた理解が、プラズマ環境における新規微粒子の形成法や粒径分散特性を向上させる技術に利用されることが期待される。

論文審査の結果の要旨

元来、エッチングや化学気相堆積の半導体プロセスにおいて、デバイスの歩留まりの低下を招くとして、プロセス中に生成される微粒子は除去の対象として扱われていた。ところが、微粒子が工業材料として注目を集めるようになり、プラズマを利用した新規微粒子の生成法が検討されている。このような状況の中、本研究は、プラズマにおける微粒子の形成過程および挙動を論じ、その制御を含めた活用法を示唆するものである。

申請者は、アセチレンプラズマにおいて、アセチレン分子の重合により微粒子が生成される過程を詳細に調査した。可視化するのが極めて難しい核形成過程を、プラズマにより生じるセルフバイアス電圧を観測することにより解析することを可能にしている。核形成時間の圧力、電力、ガス温度依存性から、核形成のメカニズムが論じられた。申請者は、アセチレンの分子振動励起に着目し、この振動励起と核形成が深く関係することから、アセチレンの重合による核形成機構を提唱した。プラズマに粒径が既知である微粒子を導入した実験においては、微粒子の空間分布を微粒子に働く力の釣り合いにより説明している。ここでは、特にパルス放電プラズマを用いて、電子温度とイオン密度のプラズマパラメータを変化させて、微粒子に働く力を積極的に変化させ、微粒子の空間分布を説明し、落下条件を見いだしている。

本論文は、プラズマ内の微粒子の形成及び挙動に関する調査について報告し、それらの機構について論じるものである。申請者が得た結果から見る将来の展望は、ここでの理解を産業応用へと展開することであり、研究の成果は、新たな技術の創成を期待するに値するものである。

本論文は、ピア・レビューにより掲載の可否が判断される論文誌に掲載された、また投稿中の論文、下記4報をもとに作成されたものである。

【学位論文の基礎となった論文】

- (1) [Jiashu Lin](#), Sagi Orazbayev, Marie Hénault, Thomas Lecas, Kazuo Takahashi and Laïfa Boufendi: Effects of gas temperature, pressure, and discharge power on nucleation time of

nano-particles in low pressure C₂H₂/Ar RF plasmas. *Journal of Applied Physics* 122 (2017) 163302.

- (2) Jiashu Lin, Kuri Hashimoto, Rui Togashi, Almasbek Utegenov, Marie Hénault, Kazuo Takahashi, Laïfa Boufendi, and Tlekkabul Ramazanov: Transport control of dust particles by pulse-time modulated RF in dusty plasmas. *Journal of Applied Physics* 126 (2019) 043302.
- (3) Jiashu Lin, Kuri Hashimoto, Rui Togashi, Marie Hénault, Kazuo Takahashi, Laïfa Boufendi: Segmentation of dust particles and spatial distribution of ion density in dusty plasmas. *Japanese Journal of Applied Physics* (投稿中).

【参考論文】

Kazuo Takahashi , Jiashu Lin, Marie Hénault, and Laïfa Boufendi: Measurements of Ion Density and Electron Temperature Around Voids in Dusty Plasmas. *IEEE Transaction on Plasma Science* 46 (2018) 704-708.