

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 14 日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23740408

研究課題名(和文) プラズマ揺らぎとナノ界面特性揺らぎの相互作用ダイナミクス

研究課題名(英文) Interaction dynamics of plasma fluctuations and nano interface properties

研究代表者

鎌滝 晋礼 (KAMATAKI, KUNIHIRO)

九州大学・基幹教育院・助教

研究者番号：60582658

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円、(間接経費) 1,080,000円

研究成果の概要(和文)：今日のプラズマを用いたナノテクの画期的進展により、ULSI、高密度メモリーや太陽電池等のナノサイズデバイス創成が可能となっている。しかし、それらの製造過程で、プラズマの揺らぎとナノ界面の特性の揺らぎが重大な問題となっている。そこで本研究は、このプラズマ揺らぎとナノ界面特性揺らぎの関係を体系的に明らかにすることを目的とした。本研究実績の一つとして、ナノ粒子量の揺らぎを計測し、ナノ粒子量の時空間構造を明らかにし、プラズマ気相中の揺らぎとナノ粒子成長の関係を明らかにした。これらの研究成果は、プラズマ中の揺らぎをコントロールし、ナノ粒子成長の特徴を可視化し、産業界にインパクトを与えるものである。

研究成果の概要(英文)：Studies focused on reducing the dimensions of semiconductor structures<sup>1)</sup> to the nanometer regime have led to a fascinating class of novel materials that exhibit quantum confinement characteristics. For faster development of fabrication methods for nanomaterials, the effects of plasma fluctuations on the growth of nanoparticles in reactive plasmas must be taken into account because plasma fluctuations affect nanoparticles in dust plasmas. Therefore, I have investigated the effects of plasma fluctuations on the nano-interface properties. Nanoparticles grow more slowly for plasma fluctuations, which causes the density of nanoparticles to increase and their size to decrease. By the developed in-situ method, I have for the first time been able to determine the size distribution of nano-particles generated in a reactive plasma without ex-situ measurements.

研究分野：プラズマ科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学

キーワード：プラズマ 時空間構造 ナノ粒子成長 相互作用 揺らぎ 構造解析 二次電池 高速度カメラ

1. 研究開始当初の背景

今日のプラズマを用いたナノテクノロジーの世界的進展により ULSI、高密度メモリー、MPU、バイオセンサーやソーラーセル等のナノサイズデバイス創成が可能である。

しかし、半導体技術ロードマップ (ITRS 2009 年版) [<http://www.itrs.net/>]の LSI チップサイズの年次推計を見ると、かつてのムーアの法則(3年で4倍の集積度の実現)には乗らず、目標値の更新(例えば2010年45nmの目標値(2007年版 ITRS)は2009年版 ITRSでも据置)は鈍化している。その理由は、(例えば)ULSIの加工寸法は、近い将来10nm±5%の集積加工が要求されており(その加工揺らぎは水素原子数個のレベル)、その揺らぎはプラズマとナノ界面の相互作用長(又はそれ以下)によって決定されており[化学工業61(2010)371-375]、その制御が困難だからである。従来方法の入射電力やガス流等のパラメータ調整ではこの加工揺らぎを制御できない。更なるナノテクノロジーの進展には、製造過程における揺らぎの制御が必須であり、上記課題解決の礎となるプラズマ揺らぎとナノ界面特性揺らぎの相互作用ダイナミクスを理解する必要がある。

2. 研究の目的

本研究の目的は、上記課題解決の礎となるプラズマ揺らぎとナノ界面特性揺らぎの相互作用ダイナミクスを解明することである。

従来研究において、反応性プラズマの密度揺らぎは $10^{-3}$ オーダーと微小である為、研究対象としてその効果を見逃してきた。そのため、プラズマ揺らぎに起因するナノ界面への相互作用(影響)を定量的評価した研究はこれまでになく、本研究は大変意義がある。

3. 研究の方法

本研究の進め方として、時間平均現象の理解を行い、次に、時間発展現象の理解を行うことで、

- ①プラズマ揺らぎと気相中ナノ粒子特性の相互作用とダイナミクスの解明、
  - ②プラズマ揺らぎと気相-固相間ナノ粒子輸送の定量的評価、
  - ③プラズマ揺らぎと固相中ナノ粒子特性の相互作用の定量的評価を行った。
- ここでいうダイナミクスの理解とは、時間変化する物理量間の相関関係を見ることを指している。

本研究の手法として、特徴ある点を挙げると、

(1) プラズマ揺らぎを外部制御できる点(周波数領域0.1kHz~30kHz, sin波、振幅領域は入射電力に対する0-100%)。その結果、プラズマ揺らぎとナノ界面特性の因果関係の解明ができ、プラズマ揺らぎによるナノ粒子成長に関する新規物理現象の発見ができる。

(2) プラズマ揺らぎの効果を効率的に調べる(コンビナトリアル技法)点。その結果、局所的また大域的なプラズマ揺らぎとナノ界面特性の相関関係の解明ができる。意義としては、プラズマ揺らぎとナノ界面の相互作用に関しての新しい学理を構築、実験データ解析を支援できる。

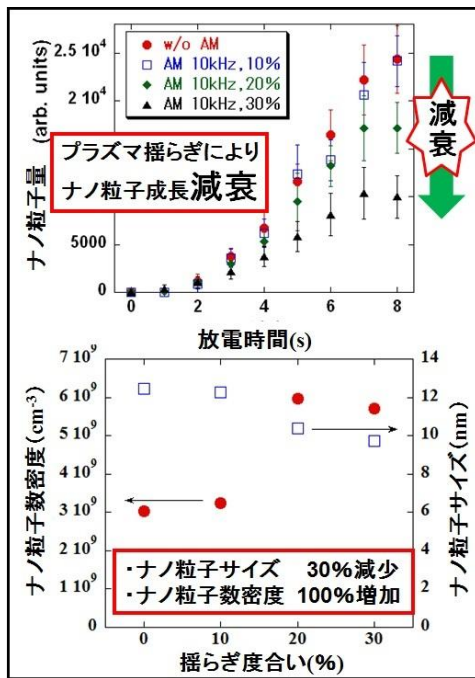
4. 研究成果

(1) ナノ粒子量の揺らぎ計測を、高時空間分解能をもつ高速度カメラを用いて行い、気相中のナノ粒子成長の時空間構造がわかる解析手法を新たに確立した。

(2) ナノ粒子量の揺らぎを計測し、ナノ粒子量の時空間構造を明らかにし、プラズマ気相中の揺らぎとナノ粒子成長の関係を明らかにした。これらの研究成果は、プラズマ中の揺らぎをコントロールし、ナノ粒子成長の特徴を可視化できたことが大きな特徴である。

(3) 具体的には、気相プラズマ中の揺らぎを大きくすると、ナノ粒子の成長は鈍化するが、ナノ粒子サイズが更に小さく、ナノ粒子の数密度は大きくなった。

(4) これまでは、局所的な測定がメインであったが、上記の確立した新しい時空間構造解析により、大域的な現象の把握が可能となった。その結果、気相プラズマ中のナノ粒子の成長は、大域的空間において制御され、ナノ粒子のサイズのばらつき度が飛躍的に改善されていることを確認した。



図：気相プラズマ揺らぎによる、ナノ粒子成長の減衰とナノ粒子サイズと密度の変化

- (5) また、従来、気相中のナノ粒子の分布は、電極から電極の端にかけて、密度が減少傾向にあり、均一的に基盤にナノ粒子を堆積することに問題があったが、気相プラズマ中の揺らぎを制御することで、空間的ナノ粒子密度も均一化することに成功した。これらの結果は、産業プラズマの分野におけるインパクトは大きいと考えられる。
- (6) また、同様に、高速度カメラを用いることで、大域的な空間における、プラズマ揺らぎとナノ粒子輸送の関係も明らかにした。プラズマ揺らぎ度合いが大きい程、ナノ粒子は大きな速度をもって、輸送されることがわかった。
- (7) そして、プラズマ揺らぎと固相中ナノ粒子特性の関係を明らかにするために、二次電池の電極を作成し、二次電池電極特性を計測した。電池容量、サイクル特性共にプラズマ技術作成したナノ粒子含有電極の方が、従来の方法よりも比較し、優れた成果を出した。

##### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

- (1) K. Kamataki, Y. Morita, M. Shiratani, K.

Koga, G.Uchida and N. Itagaki, In situ analysis of size dispersion of nano-particles in reactive plasmas using two dimensional laser light scattering method, Journal of Instrumentation (JINST), 査読有, Vol. 7 (2012) C04017-1-7.

DOI: 10.1088/1748-0221/7/04/C04017

[学会発表] (計 6 件)

- (1) KUNIHIRO KAMATAKI, YASUHIKO MORITA, KAZUNORI KOGA, GIICHIRO UCHIDA, NAHO ITAGAKI, HYUNWOONG SEO AND MASAHARU SHIRATANI, Spatio-Temporal Structure of Growth of Nano-Particles with/without Amplitude Modulation in Reactive Plasmas, ISPlasma2013, Nagoya, Japan, Jan. 2013.
- (2) KAMATAKI Kunihiro, MORITA Yasuhiko, KOGAKazunori, UCHIDA Giichiro, ITAGAKI Naho, YAMASHITA Daisuke and SHIRATANI Masaharu, Observation of Spatio-Temporal Structure of Growth of Nano-Particles in Reactive Plasmas with Discharge Power Modulation, 第 29 回プラズマ核融合学会年会, 福岡, 日本, Nov. 2012.
- (3) 鎌滝晋礼, 森田康彦, 古閑一憲, 内田儀一郎, 板垣菜穂, Hyunwoong Seo, 白谷正治, プラズマプロセスにおける揺らぎのダイナミクス, 第 28 回九州・山口プラズマ研究会, 大分, 日本, Nov. 2012.
- (4) K. Kamataki, M. Shiratani, T. Ishihara, H. Nagano, Y. Morita, K. Kuwahara, G. Uchida, H. Seo, N. Itagaki and K. Koga, High Capacity Li Ion Battery Anodes Using Silicon Carbide Nanoparticles Produced by Double Multi-Hollow Discharge Plasma CVD, IUMRS-International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM 2012), Yokohama, Japan, Sep. 2012.
- (5) (招待講演) K. Kamataki, Impacts of Plasma Fluctuations in Reactive Plasmas, BIT's 1st Annual World Congress of Nano-S&T, Dalian, China, Dec. 2011.
- (6) K. Kamataki, H. Miyata, K. Koga, G. Uchida, N. Itagaki, D. Yamashita, H. Matsuzaki, M. Shiratani, Impacts of Plasma Fluctuations on Growth of Nano-Particles in Reactive Plasmas, the

XXX International Conference on  
Phenomena in Ionized Gases(ICPIG)  
Conference, Belfast, England, Aug. 2011.

6. 研究組織

(1)研究代表者

鎌滝 晋礼 (KAMATAKI Kunihiro)

九州大学・基幹教育院・助教

研究者番号：60582658