

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 8 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26600126

研究課題名(和文)コンパクトドリフトチューブ型ナノ粒子検出法の創成

研究課題名(英文)Novel nanoparticle detection method using compact drift tube

研究代表者

白谷 正治 (Shiratani, Masaharu)

九州大学・システム情報科学研究科(研究院・教授)

研究者番号：90206293

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：ナノ粒子のサイズ・密度・帯電量とフラックスの計測を可能にする従来にないコンパクトなドリフトチューブ型ナノ粒子検出法を創成を目的とした本研究では、コンパクトドリフトチューブ型ナノ粒子検出法要素技術の検討を行うと共に、製作した直流電圧印加型コンパクトドリフトチューブによるナノ粒子の動的振る舞い計測を実施した。

コンパクトドリフトチューブで捕捉したナノ粒子は、プラズマ中でナノ粒子が液化している事、捕捉粒子のチューブ内サイズ分散や捕捉角度などから、ナノ粒子輸送の情報を含むことを明らかにした。チューブ内ナノ粒子輸送の解析から帯電量などのナノ粒子物性計測が期待できる。

研究成果の概要(英文)：To measure the size, density, charge and flux of nanoparticle, we have developed a novel nanoparticle detection method using a compact drift tube. In this study, we have fabricate a dc-bias type compact drift tube and measured dynamics of nanoparticles by sampling them at the side wall of the tube.

We have obtained following conclusions: (1) Sampled particles are melted in plasmas, and (2) The information of nanoparticle transport in tube can be obtained from position dependence of size distribution and incident angle of sampled particles. The characteristics of nanoparticles should be involved in these results.

研究分野：プラズマ理工学

キーワード：プラズマ ナノ粒子計測 ドリフトチューブ 水晶振動子 電場 核融合ダスト

1. 研究開始当初の背景

気相中ナノ粒子の電荷やサイズ・密度はプラズマ中でのナノ粒子の振る舞いを決定する重要なファクターであり、微粒子プラズマ分野のみならず、プラズマを用いたナノスケールでのプロセス分野においても重要である。現在までに我々は、気相中ナノ粒子のサイズ・密度のその場計測法を世界で初めて開発したが、測定はレーザー散乱の微小信号を計測するため、ナノ粒子検出は難しく、またナノ粒子の帯電の情報は得られない。また他の一般的なイオン計測法として、ドリフトチューブや質量分析器があるが、ドリフトチューブの場合、イオンの立体構造を同定することができるが、測定器の長さが1m程度必要であり、測定器が大きい。また質量分析器の場合、既知物質の同定と不明物質の構造決定ができるが、ナノ粒子などの大質量イオンの測定は困難である。

また我々は、上記のレーザー計測法を用いてプロセスプラズマ中で発生したナノ粒子の振る舞いを明らかにするとともに、基板へのフラックス量を、水晶振動子型マイクロバランス(QCM)を用いて簡単に計測する方法を開発することに成功している。これに対して、水晶振動子マイクロバランスを用いた計測法を発展させてナノ粒子の輸送の動的振る舞いを利用することで、ナノ粒子のサイズ・密度・帯電量及びフラックスの計測を可能にする従来にないコンパクトなドリフトチューブ型ナノ粒子検出法を創成でき、プラズマ中のナノ粒子の振る舞いに関する新たな学術基盤を構築できると着想し本研究を立案した。

2. 研究の目的

本研究では、水晶振動子マイクロバランスを用いたナノ粒子計測法を発展させてナノ粒子の輸送の動的振る舞いを利用することで、ナノ粒子のサイズ・密度・帯電量とフラックスの計測を可能にする従来にないコンパクトなドリフトチューブ型ナノ粒子検出法を創成して、プラズマ中のナノ粒子の振る舞いに関する新たな学術基盤を構築することを目的とする。

本研究期間で行った研究項目は以下の通り。

コンパクトドリフトチューブ型ナノ粒子検出法の創成の要素技術である、水晶振動子型ナノ粒子計測法についての基礎研究として、QCM法の適用可能性と直流電圧印加基板によるナノ粒子の振る舞いを明らかにした。

コンパクトドリフトチューブを製作し、これを用いてナノ粒子の動的振る舞い計測を実施した。

3. 研究の方法

実験では、水素プラズマとグラファイトターゲット間の相互作用で発生したナノ粒子

を、QCM法を用いて計測した(図1)。この方法では、水晶振動子式の膜厚計を3つ同時に並べた。1つめ(Ch1)には堆積物全ての質量を共振周波数の変化から計測し、2つめ(Ch2)では、クラスタ除去フィルタを膜厚計に設置し微粒子を選択的に除去して、化学的活性種の堆積量を計測して、2つの堆積量の差から微粒子の堆積量を推定できる。また3つめ(Ch3)では、フィルタに板を設置して、膜厚計に堆積がないようにして、外的環境による影響を補償した。センサ上への堆積物の質量は(1)式で与えられる Sauerbrey 式を用いて、共振周波数の変化から求めることができる。

$$\Delta f_m = -C_f \Delta m \quad (1)$$

ここで $\Delta f_m$ は堆積による共振周波数の変化、 $C_f$ はセンサ感度係数、 $\Delta m$ は堆積質量の変化である。

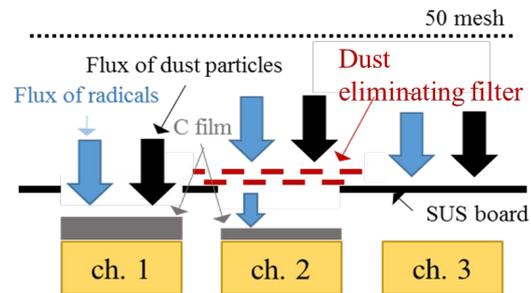


図1. QCM法の概要図。

直流電圧印加基板によるナノ粒子の振舞い解析実験は、核融合科学研究所の大型ヘリカル装置(LHD)実験第17サイクルの全期間に渡って行った。LHDのダイバータと第一壁はそれぞれグラファイトとステンレス(材質:SS316)で構成されている。第一壁電位に対して-70Vと0Vの直流バイアス電圧を印加したSi基板とステンレスミラー(材質:SS304)を、LHDの70ポートに設置した(図2)。基板及びミラーにはそれぞれ-70Vを印加し、それ以外は第一壁電位とした。各基板がプラズマに曝露される面積は6x10mm<sup>2</sup>である。基板の反射率測定は分光器(日本分光, V-570)を用いて行った。基板上に堆積した炭素膜の表面ラフネス(二乗平均粗さ)は原子間力顕微鏡(AFM: atomic force microscope, Artisan Technology Group, MMAFM-2)を用いて解析した。また膜構造評価のため、ラマン分光器(日本分光, NRS-3100)を用いて1580cm<sup>-1</sup>付近の

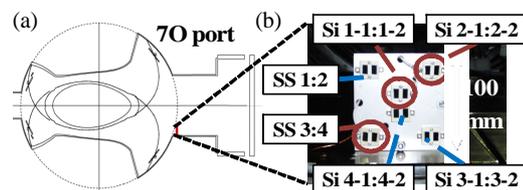


図2. (a) LHD断面図, (b) 基板ホルダー (Si: Si基板, SS: ステンレスミラー)。

グラファイト構造由来の G バンドと  $1350\text{cm}^{-1}$  付近の欠陥由来の D バンドのピーク強度比 G/D を計測した[1]。

#### 4. 研究成果

まず、ダイバータシミュレータである高密度ヘリコン水素プラズマ装置[2-4]においてナノ粒子除去フィルタのナノ粒子除去率評価及び堆積のその場計測を行った。高密度ヘリコン水素プラズマ中で、プラズマと壁相互作用で発生したナノ粒子及びラジカルをナノ粒子除去フィルタ上面及び背面に堆積した。堆積膜の TEM 観察より各面のナノ粒子面密度を求めたところ、体積換算したナノ粒子除去率は 94.2 %であることを明らかにした(図3)。この結果は、本実験で用いるプラズマにおいても水晶振動子式ナノ粒子計測法を適用可能であることを示している。

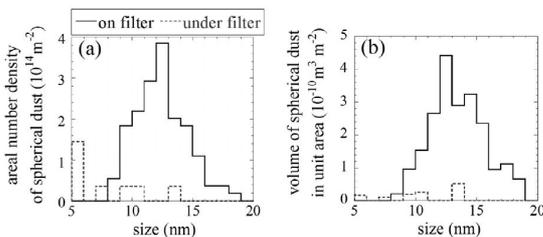


図3. クラスタ除去フィルタの(a)プラズマ対向と(b)背面に堆積したナノ粒子堆積面密度のサイズ分布。

次に、電場によるナノ粒子の振る舞いを明らかにするため、低抵抗シリコン基板に直流バイアスを印加し、ナノ粒子堆積状況と光学特性の相関を調べた。負バイアスを印加した場合の反射率が接地した基盤よりも高い事を、また AFM を用いた表面粗さの減少とともに反射率が増加することを明らかにした。G/D比はすべての Si 基板でほぼ一定であった。以上より、実験後の Si 基板の反射率は基板上炭素膜のラフネスに依存していると考えられる。この結果は、本実験で用いるプラズマから基板へと輸送されるナノ粒子は負帯電していることを示唆している。これらの結果は、ドリフトチューブによるナノ粒子輸送制御が可能であることを示している。

得られた知見を基に、コンパクトドリフトチューブを試作した。模式図を図4に示す。試作したコンパクトドリフトチューブは、間隔 5 mm で平行に配置した二つの平板電極 (SS304、W/D/H : 58/9.6/100 mm) で構成されている。この装置をダイバータシミュレータである高密度ヘリコン水素プラズマ装置[2-4]内に、ドリフトチューブ入口をターゲット中心からの距離  $r = 80\text{ mm}$  の位置となるように設置した。一方の平板電極を壁電位とし、他方にバイアス電圧を印加した。バイアス電圧は  $V_{\text{bias}} = +10\text{ V}$ 、 $+30\text{ V}$  とした。入力電力 1100 W、パルス幅 0.25 秒、パルス周期

1.0 秒で発生した水素ヘリコンプラズマとグラファイトターゲット(IG-430U)との相互作用で発生したナノ粒子を、電極内側  $r = 90$ 、 $100$ 、 $110$ 、 $130\text{ mm}$  に設置した低抵抗 Si 基板 ( $0.01\text{-}0.02\ \Omega\cdot\text{cm}$ ) 上に捕集した。総放電時間は各実験 18000 秒とした。ナノ粒子の形状とサイズは SEM(Scanning Electron Microscope)を用いて観察した。

基板には、従来観測された球状、フレーク状[2-7]に加えて、滴状(Comet shape)のナノ粒子が多数捕集された。これは熔融した球状ナノ粒子が衝突時に変形後に固化したものだと考えられる。EDX(Energy dispersive X-ray)による組成分析によると、これらのナノ粒子の主成分は炭素であった。ターゲットであるグラファイトの融点は約 4000 K と非常に高いため、滴状ナノ粒子は低融点の炭化水素  $\text{C}_x\text{H}_y$  であると考えられる。このことは、ナノ粒子に多量の水素が含まれていることを意味している。

$V_{\text{bias}} = +30\text{ V}$  実験における正電極上のナノ粒子サイズ分布を調べた。この時球状ナノ粒子は滴状ナノ粒子の一種として分類した。ターゲット中心からの距離  $r$  の増加と共に、滴状ナノ粒子の総フラックスは単調に減少している。また  $r$  の増加に伴い、サイズ分布は狭まり、ピークサイズは減少している。 $V_{\text{bias}} = +10\text{ V}$  実験でも同じ傾向が得られた。大きい滴状ナノ粒子ほど入口近で捕集されている。

正電極への滴状およびフレーク状ナノ粒子の合計フラックスは、負電極に比べ、 $V_{\text{bias}} = +10\text{ V}$  では最大 3.70 倍、 $+30\text{ V}$  では最大 6.45 倍多い。ナノ粒子の多くが負に帯電していることが示唆される。 $V_{\text{bias}} = +10\text{ V}$ 、 $+30\text{ V}$  の場合、正電極への総フラックスの  $r$  依存性を比較したところ、 $V_{\text{bias}} = +30\text{ V}$  電極への滴状ナノ粒子の総フラックスは  $+10\text{ V}$  に比べて 1.01~2.16 倍大きい。また  $r = 100\text{ mm}$  から  $r = 130\text{ mm}$  にかけてフラックスの差が大きくなっている。これは印加電場の増加により、より多くの負帯電滴状ナノ粒子を捕集出来る

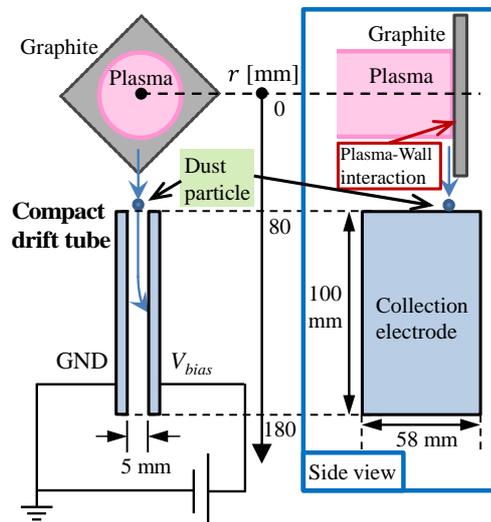


図4. コンパクトドリフトチューブ。

ことを示している。

また滴状ナノ粒子は捕集面上で角度を持って堆積しており、これらサイズ分布や堆積方向、形状からナノ粒子輸送の動的振る舞いを評価可能であることを明らかにした。

以上の結果は、直流電圧印可型コンパクトドリフトチューブによりナノ粒子輸送等に関する情報が得られることを示している。

#### 参考文献

- [1] A. Das, B. Chakraborty, and AK. Sood, *Bull. Mater. Sci.* 31(2008) S727.
- [2] S. Iwashita, et al., *Fusion Eng. Des.* **88** (2013) 28.
- [3] S. Iwashita, et al., *J. Plasma Fusion Res. Ser.* **8** (2009) 308.
- [4] K. Koga, et al., *IEEE Trans. Plasma Sci.* **32** (2004) 405.
- [5] K. Koga, et al., *J. Nucl. Mater.* 438 (2013) 727.
- [6] K. Koga, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* 52 (2013) 11NA08.
- [7] M. Tateishi, et al., *J. Nucl. Mater.* 463 (2015) 865.

#### 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3件)

M. Tateishi, K. Koga, D. Yamashita, K. Kamataki, H. Seo, N. Itagaki, M. Shiratani, N. Ashikawa, S. Masuzaki, K. Nishimura and A. Sagara, the LHD Experimental Group, Contribution of H<sub>2</sub> plasma etching to radial profile of amount of dust particles in a divertor simulator, *J. Phys. : Conf. Series*, Vol. 518, 2014, 12009.

M. Tateishi, K. Koga, R. Katayama, D. Yamashita, K. Kamataki, H. Seo, N. Itagaki, M. Shiratani, N. Ashikawa, S. Masuzaki, K. Nishimura, A. Sagara, and the LHD Experiment Group, Real-time mass measurement of dust particles deposited on vessel wall in a divertor simulator using quartz crystal microbalances, *J. Nucl. Mater.* Vol. 463, 2015, 865.

R. Katayama, K. Koga, D. Yamashita, K. Kamataki, H. Seo, N. Itagaki, M. Shiratani, N. Ashikawa, M. Tokitani, S. Masuzaki, K. Nishimura, A. Sagara, and LHD Experimental Group, Deposition rate and etching rate due to neutral radicals and dust particles measured using QCMs together with a dust eliminating filter, *Proc. 68th GEC/9th ICRP/33rd SPP*, Vol. 60, 2015, LW1.101.

〔学会発表〕(計12件)

M. Tateishi, K. Koga, D. Yamashita, K. Kamataki, H. Seo, N. Itagaki, M. Shiratani,

N. Ashikawa, S. Masuzaki, K. Nishimura, A. Sagara, and the LHD Experimental Group, Dust collection with dc-biased substrates in large helical device, Dust collection with dc-biased substrates in large helical device, 21th International Conference on Plasma Surface Interactions, 2014年05月27日, Ishikawa Ongakudo, Kanazawa.

R. Katayama, M. Tateishi, K. Koga, D. Yamashita, K. Kamataki, H. Seo, N. Itagaki, M. Shiratani, N. Ashikawa, S. Masuzaki, K. Nishimura, A. Sagara, LHD Experimental Group, Effects of Dust Deposition on Optical Characteristics of Mirrors Installed on First Wall in LHD, 15th Workshop on Fine Particle Plasmas, 2014年10月17日, National Institute for Fusion Science, Toki.

M. Tateishi, R. Katayama, K. Koga, D. Yamashita, K. Kamataki, H. Seo, N. Itagaki, M. Shiratani, N. Ashikawa, S. Masuzaki, K. Nishimura, A. Sagara, LHD Experimental Group, Development of an in-situ Detection Method of Dust Particles Deposited on Vessel Wall Using Quartz Crystal Microbalances, 15th Workshop on Fine Particle Plasmas, 2014年10月16日, National Institute for Fusion Science, Toki.

立石瑞樹, 片山龍, 古閑一憲, 山下大輔, 鎌滝晋礼, 徐鉉雄, 板垣奈穂, 白谷正治, 芦川直子, 増崎貴, 西村清彦, 相良明男, LHD 実験グループ, 水素プラズマとグラファイト壁相互作用により発生したダストのその場測定, 2014年11月19日, 朱鷹メッセ, 新潟.

片山龍, 立石瑞樹, 古閑一憲, 山下大輔, 鎌滝晋礼, 徐鉉雄, 板垣奈穂, 白谷正治, 芦川直子, 増崎貴, 西村清彦, 相良明男, LHD 実験グループ, 基板の光学特性に対するダスト堆積の影響, Plasma Conference 2014, 2014年11月19日, 朱鷹メッセ, 新潟.

片山龍, 立石瑞樹, 古閑一憲, 山下大輔, 鎌滝晋礼, 徐鉉雄, 板垣奈穂, 白谷正治, 芦川直子, 時谷政行, 増崎貴, 西村清彦, 相良明男, LHD 実験グループ, LHD 内バイアス基板への長期ダスト堆積実験, プラズマ・核融合学会九州・沖縄・山口支部 第18回支部大会, 2014年12月20日, 九州大学.

立石瑞樹, 片山龍, 古閑一憲, 山下大輔, 鎌滝晋礼, 徐鉉雄, 板垣奈穂, 白谷正治, 芦川直子, 時谷政行, 増崎貴, 西村清彦, 相良明男, LHD 実験グループ, プラズマ・壁相互作用により発生したダストの容器壁堆積のその場検出, プラズマ・核融合学会九州・沖縄・山口支部 第18回支部大会, 2014年12月20日, 九州大学.

白谷正治, 片山龍, 古閑一憲, 山下大輔, 徐鉉雄, 板垣奈穂, 増崎貴, 芦川直子, 時谷政行, 西村清彦, 相良明男, LHD 実

験グループ、コンパクトドリフトチューブを用いたプラズマ生成ダスト捕集、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、2016 年 03 月 22 日、東京工業大学。

片山龍、古閑一憲、山下大輔、徐鉉雄、板垣奈穂、白谷正治、増崎貴、芦川直子、時谷政行、西村清彦、相良明男、LHD 実験グループ、ダイバータシミュレータ内でのコンパクトドリフトチューブを用いたダスト捕集実験、プラズマ・核融合学会九州・沖縄・山口支部 第 19 回支部大会、2015 年 12 月 20 日、熊本大学。

片山龍、古閑一憲、山下大輔、徐鉉雄、板垣奈穂、白谷正治、芦川直子、時谷政行、増崎貴、西村清彦、相良明男、LHD 実験グループ、核融合炉内ダスト計測用コンパクトドリフトチューブの試作、第 32 回プラズマ・核融合学会 年会、2015 年 11 月 24 日、名古屋大学。

R. Katayama, K. Koga, D. Yamashita, K. Kamataki, H. Seo, N. Itagaki, M. Shiratani, N. Ashikawa, M. Tokitani, S. Masuzaki, K. Nishimura, A. Sagara, LHD Experimental Group, Deposition rate and etching rate due to neutral radicals and dust particles measured using QCMs together with a dust eliminating filter, ICRP9/GEC68/SPP33 (国際学会), 2015 年 10 月 14 日, Hawaii Convention Center, USA.

片山龍、古閑一憲、山下大輔、Hyunwoong Seo、板垣奈穂、白谷正治、芦川直子、時谷政行、増崎貴、西村清彦、相良明男、LHD 実験グループ、プラズマ・壁相互作用により発生したダスト堆積とプラズマ発光との相関、平成 27 年度 (第 68 回) 電気・情報関係学会九州支部連合大会、2015 年 09 月 26 日、福岡大学。

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

プラズマ工学研究室

<http://plasma.ed.kyushu-u.ac.jp/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

白谷 正治 (SHIRATANI, Masaharu)

九州大学・大学院システム情報科学研究  
院・教授

研究者番号：90206293

### (2) 研究分担者

### (3) 連携研究者