



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Process development for synthesizing core-shell nanoparticles with liquid cores utilizing dusty plasma techniques [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Munaswamy, Murugesh
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第16120号
Issue Date	2024-09-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/93611
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Munaswamy_Murugesh_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博士 (工学)	氏名	Munaswamy Murugesu
審査担当者	主 査 教 授	佐々木 浩一	
	副 査 教 授	富岡 智	
	副 査 教 授	柴山 環樹	

学位論文題名

Process development for synthesizing core-shell nanoparticles with liquid cores utilizing dusty plasma techniques

(液体コアを有するコア・シェルナノ粒子のダストプラズマを用いた合成プロセスの開発)

省エネルギー社会の構築において、未利用熱の有効活用が重要な課題になっており、そのためには、廃熱を一時的に蓄熱し、必要な時にエネルギーとして取り出す方式の開発が重要である。固相から液相への相転移時の潜熱を蓄熱する潜熱蓄熱材を用いた方法はその一つで、廃熱の温度領域に適合する様々な材料が研究されている。また、潜熱蓄熱材のサイズについても、マクロなサイズからミクロなサイズまで、様々な材料が研究されている。

固体材料を廃熱によって加熱して液相に相転移させる場合、潜熱蓄熱材の周囲をそれよりも融点の高い材料でコーティングしたコア・シェル構造にする必要がある。特に、ナノメートルサイズの潜熱蓄熱材を流体に分散させて用いる場合には、流体との混合を避けるためにコーティングが必須である。このとき問題となるのはコア部潜熱蓄熱材が溶融した時に生じる体積膨張で、体積膨張によりシェル部にストレスがかかり、シェル部の破壊が生じない様にする工夫が必要となる。溶融時に体積膨張によるストレスが生じないようにするための汎用性のある方法は、液相状態にあるコア部潜熱蓄熱材にシェル部をコーティングすることであるが、液滴の周囲にシェル部をコーティングすることは一般に容易ではない。

このような中であって著者は、ナノメートルサイズのスズ液滴の周囲に水素化アモルファス炭素膜を堆積させる方法を開発した。この方法の根幹は、ダストプラズマの原理の応用にある。プラズマ中の微粒子は負に帯電する性質がある。一方、プラズマの電位はプラズマの周囲の真空容器や電極の電位より高いので、微粒子はプラズマ中にトラップされ、空間に浮遊した状態になる。著者は、このような原理で空間に浮遊したスズ液滴の周囲にプラズマ CVD により水素化アモルファス炭素膜を堆積させることに成功した。

第 1 章は序論であり、本研究の背景について述べ、本研究の目的および意義を明らかにしている。

第 2 章では、本研究で開発した一連のプロセスフローで使ったプラズマ応用技術について、その原理を概観している。特に、プラズマ中での微粒子の振る舞いに関する既存の研究をレビューし、プラズマ中に存在する微粒子に加わる様々な力の大きさを比較している。

第 3 章では、本研究で用いた実験装置に関して詳しく述べている。本研究の特徴は、スズ微粒子の生成、プラズマ中でのトラップおよび加熱、水素化アモルファス炭素膜の堆積、電極への輸送・回収の一連のプロセスを単一の真空容器を用いた連続処理により実現している点にある。スズ微粒子は真空容器上部に設置したガス圧の高いマグネトロンスパッタリングにより生成した。生成した

微粒子は重力により容器下部の容量結合プラズマ部に輸送され、プラズマ中にトラップされた。トラップされた微粒子をプラズマからのイオン衝撃により加熱・溶融させ、その上で、容量結合プラズマにメタンを添加することにより、スズ液滴の周囲に水素化アモルファス炭素膜を堆積させた。さらに、プラズマ中に置いた円板電極に正の直流電位を印加し、生成したコア・シェル微粒子を電極に輸送した。

第4章では、コア・シェル微粒子の生成に用いたプラズマの診断結果、および、生成されたコア・シェル微粒子の分析結果に関して述べている。透過型電子顕微鏡観察により、生成したコア・シェル微粒子のコア部がほぼ完全な球形をしていることが示され、プラズマ中にトラップされたスズ微粒子が液滴化した上で、シェル部アモルファス炭素膜が堆積されたことが強く示唆されている。さらに、加熱可能なサンプルホルダーを用いた透過型電子顕微鏡観察により、金属スズの融点付近でコア部が溶融することが観察されている。このことは、シェル部アモルファス炭素膜がコア部の酸化を阻止する性能を有していることを示している。また、コア部の溶融時にシェル部の破壊は観察されなかった。

第5章では、第4章で述べた実験結果に関係する考察が述べられている。特に、プラズマ中にトラップされたスズ微粒子の加熱と冷却を理論計算し、実験条件においてスズ微粒子の温度は融点を超えるとの計算結果を示している。

第6章では、本研究の成果を総括し、今後の展望を述べている。

以上述べたように、本論文において著者は、ダストプラズマの原理を用いて、スズナノ液滴の周囲に水素化アモルファス炭素膜を堆積させたコア・シェル微粒子の生成技術を確立した。この成果は、ダストプラズマの新しい応用技術を拓くものであると同時に、繰り返し使用できるナノメートルサイズのコア・シェル型潜熱蓄熱材の製造技術の開発に貢献するものである。よって、著者は北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格があるものと認める。