

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 5 日現在

機関番号：17201

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540577

研究課題名(和文)ハイブリッドリングホロー放電の確立と大面積高密度均一プラズマ源への応用

研究課題名(英文) Establishment of hybrid ring-shaped hollow discharge and application to large-diameter high-density plasma source

研究代表者

大津 康德(Ohtsu, Yasunori)

佐賀大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：50233169

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円、(間接経費) 1,170,000円

研究成果の概要(和文)：太陽電池パネルや液晶ディスプレイなどの機器の一部に使用されている機能性薄膜は、高周波容量結合放電プラズマにより広く製造されている。しかしながら、生産性に課題があり、高効率なプラズマ装置が産業界から要求されている。本研究では、従来にない新しい放電方式を提案し、同電力下で高密度かつ均一なプラズマ発生方式を確立した。具体的には、リング状型の溝をプラズマを作る電極に形成し、その表面に、プラズマを容易につくると期待される2次電子放出係数の高い薄膜を塗布することにより、要求される性能を達成させている。今後は、大面積化に展開することにより、実用化が期待される。

研究成果の概要(英文)：Radio frequency(RF) capacitively coupled discharge plasma is widely used for the preparation of functional thin films which play an important role for solar panel and liquid crystal display devices. However, the RF capacitively coupled plasma has a weak point that the productivity of the thin films is very low. Thus, high-density plasma source is required from the microelectronic industry. In this work, a novel plasma production method is proposed and is confirmed. The requirement is attained by the combination between ring-shaped hollow electrode and the coating of high secondary electron emission material to the electrode. In future, this proposal can be attained by developing the scale-up.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学

キーワード：ハイブリッドリングホロー放電 ホロー陰極効果 容量結合放電 2次電子放出係数 多重リング状ホロー電極

1. 研究開始当初の背景

(1)太陽電池パネル、フラットディスプレイパネルなどの大型パネル基板上に機能性薄膜を効率的に作製するためには、高速かつ大面積なプラズマ製膜装置が必要不可欠である。太陽電池パネルの場合、120nm/min以上の製膜速度(プラズマ密度 10^{11}cm^{-3})を実現できる高速製膜技術の開発が急務である。更に、産業界から、(A)プラズマ密度ジャンプやヒステリシスがない安定なプラズマパラメータ制御、(B)設備コストの更なる低減、(C)メンテナンスフリーな装置の開発の3つ技術革新が求められている。

(2)これまで、大面積薄膜合成用高密度プラズマ源として、低インダクタンスのアンテナを多数配置したマルチ低インダクタンスアンテナ型誘導結合プラズマ装置やマイクロ波表面波プラズマ装置が開発されている。しかしながら、これらのプラズマ源には以下の3つの課題が残されている。

プラズマ密度ジャンプとヒステリシスの発生: マルチ低インダクタンスアンテナ型誘導結合プラズマでは、高周波電力を増加させていくと、容量結合放電から誘導結合放電へのモード遷移時にプラズマ密度の急激な上昇が発生する。表面波プラズマでも、同様に、理論及び実験的に、密度ジャンプとヒステリシスが発生することが確認されている。

高コスト設備: マルチ低インダクタンスアンテナ型誘導結合プラズマでは、アンテナをマルチに設置するので、それぞれに整合器やアンプなどが必要となり、従来のシステムに比べて、特殊かつ高価な電源システムとなっている。表面波プラズマでは、大面積化になると、大気圧と真空の圧力差を保つために、マイクロ波を導入する誘電体窓の厚みを大きくしなければならなくなり、高コストとなる。

煩雑なメンテナンス: マルチ低インダクタンスアンテナ型誘導結合プラズマでは、製膜時にアンテナ表面にも薄膜が堆積する。アンテナが3次元形状をしているため、そのメンテナンスは煩雑となる。完全な除去が困難であり、交換が頻繁に必要となる。表面波プラズマでも、スロットアンテナ部分に薄膜が堆積すると、マイクロ波の入射が困難となり、安定なプラズマ生成を実現できなくなる。それを防ぐために、頻繁にメンテナンスを必要とする。

2. 研究の目的

本研究では、研究背景で掲げた3つの課題を解決するために、「高周波容量結合リングホロー放電」と「高エネルギー2次電子放出」を混成した「ハイブリッドリングホロー放電」を実現し、その学理を確立させて、リング状ホロー溝の多重化による大面積高密度均一プラズマ源を開発することを本研究の目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、独自に提案する「ハイブリッドリングホロー放電」を確立することにより、これらの3つの課題を克服し、高速かつ大面積なプラズマを生成する方法を実現する。具体的には、リングホロー陰極作用と高エネルギー2次電子放出作用を混成した「ハイブリッドリングホロー放電」を確立させる。次に、リング状ホローの多重化による高密度プラズマの均一化を目指す。更に、均一高密度プラズマの大面積化と高効率化を目指す。

4. 研究成果

(1)ハイブリッドリングホロー放電実験装置は、図1に示す内径165mm、長さ200mmのアルミニウム製円筒真空容器である。その構

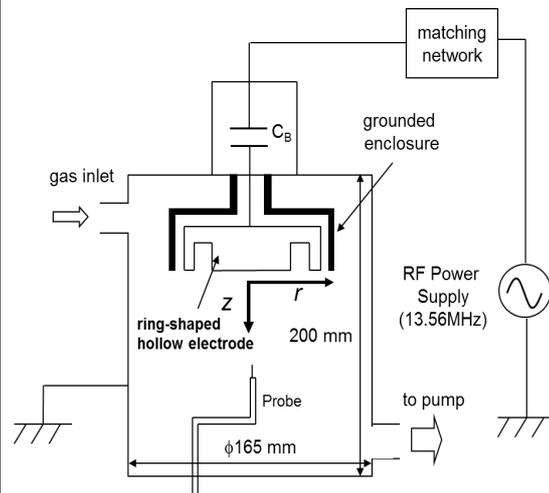


図1 実験装置の概要

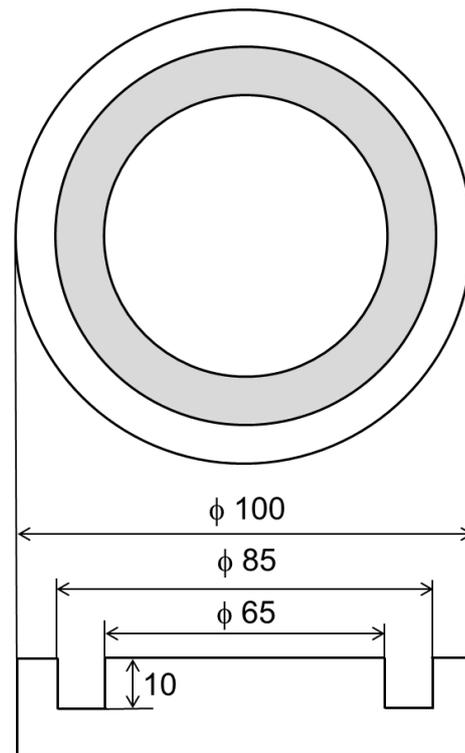


図2 ホロー電極の形状

成は以下の通りである。図1の上部に、図2に示すように、幅10mm、深さ10mmのリング状ホロー電極を施した直径100mm、厚さ20mmのアルミニウム製円板電極を挿入し、ブッキングコンデンサ(800pF)とインピーダンス整合器を介して、高周波電源(購入物品:13.56MHz)が接続されている。ハイブリッドリングホロー電極は、図2のリング状ホロー電極の表面に、スパッタリング法により、酸化マグネシウム薄膜が約200nmの膜厚で製膜されている。リング状ホロー内での安定放電を実現するために、図1に示すように、電極の側面や背面を接地されたカバー電極で覆われている。真空容器には、ターボ分子ポンプ(購入物品)と油回転ポンプが接続されて、 10^{-4} Pa以下に真空排気されている。図3に放電電圧 V_{RF} とアルゴンガス圧力 p との関係を示す。図3中にハイブリッドリングホロー電極をMgO電極とし、通常の金属電極としてアルミニウムを使用し、その電極をAl電極とした。高周波電力は20W一定とし、放電電圧は、100:1の高電圧プローブとオシロスコープにより計測し、peak-to-peak値を示している。ガス圧力を5.3から53.2Paまで増加させると、放電電圧は単調に減少している。MgO電極、Al電極ともほぼ同様な値を示している。この現象は、加熱機構がオーム加熱と仮定したプラズマ吸収パワーにより、放電電圧が電子衝突周波数(ガス圧力に比例)に反比例することに起因している。この結果より、ハイブリッドリングホロー放電は安定放電していることが確認される。

(2)MgO電極とAl電極を用いたとき、それぞれにおける電子温度 T_e とアルゴンガス圧 p との関係を図4に示す。測定位置は、 $r=37.5$ mmのホロー直下で、電極表面から $z=12$ mmである。MgO電極の場合、電子温度はガス圧力が5.3から10.6Paの範囲では1.8eVとほぼ一定である。その後2.4eVまで上昇し、その後、42.6Paで最小値をとっている。Al電極の場合もMgO電極と同様に電子温度とガス圧力との関係を示している。MgO電極の方がAl電極に比べてやや低い値を示している。

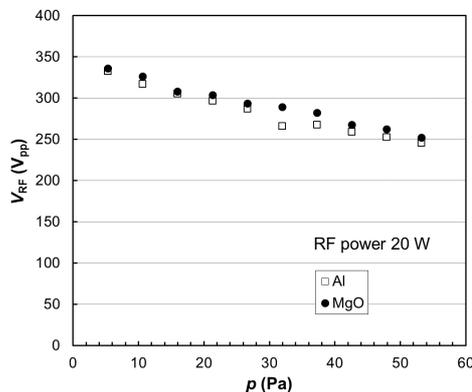


図3 放電電圧 V_{RF} とガス圧力 p との関係

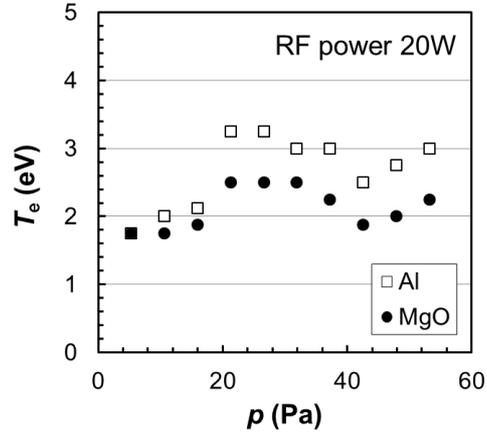


図4 電子温度 T_e とガス圧力 p との関係

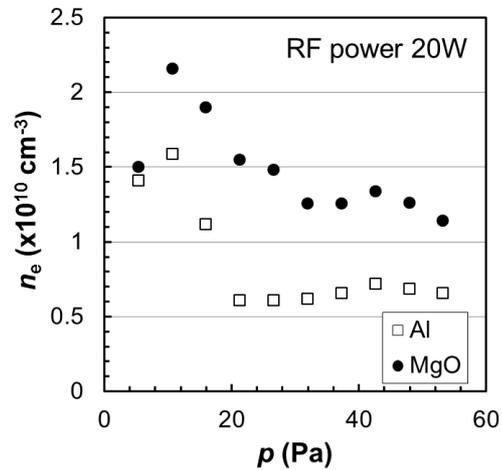


図5 プラズマ密度 n_e とガス圧力 p との関係

図5に、プラズマ密度 n_e とガス圧力 p との関係を示す。MgO電極の場合、プラズマ密度は10.6Paで $2.2 \times 10^{10} \text{cm}^{-3}$ の最大値を示している。一方、Al電極では、10.6Paで $1.3 \times 10^{10} \text{cm}^{-3}$ の最大値を示している。その後、圧力の増加と共に減少している。10.6Paでプラズマ密度が最大値を取る理由は、以前著者が報告したリングホロー放電条件に起因するものと考えられる。MgO電極のプラズマ密度は、5.3Pa以外の圧力領域において、Al電極に比べて高くなっている。この増加は、2次電子放出係数が高いMgO電極から放出された2次電子によるマルチステップ電離によるものと考えられる。従って、本研究で提案するハイブリッドリングホロー放電は、ホロー放電と2次電子放出作用とのハイブリッド効果により、従来のホロー放電より高密度化を実現させることが確認できた。

(3)プラズマ密度の空間分布に対するリング溝数の影響を検討した。図6に、4つのリング溝を形成した際のイオン飽和電流の空

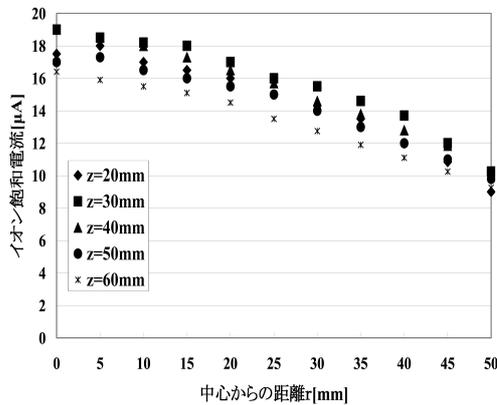


図6 イオン飽和電流の半径方向分布

間分布を示す。測定位置は、電極から $z=20$, 30 , 40 , 50 , 60 mm 離れた位置の結果を示す。実験条件は、アルゴンガス圧力 6.7 Pa、高周波電力 50 W 一定とした。イオン飽和電流はプラズマ密度に比例する。それは、空間分布の均一性を議論する際に容易に計測できる。均一性は、イオン飽和電流の最大値と最小値の差の半分とそれらの和の半分との比を百分率で定義した。4重リング溝におけるプラズマ密度の均一性は、 $z=20$ mm で 24.8% 、 $z=30$ mm で 22.6% 、 $z=40$ mm で 23.2% 、 $z=50$ mm で 22.3% 、 $z=60$ mm で 23.1% である。電極近傍では均一性が悪いが、 $z=30$ mm 以降ではやや良くなっている。しかし、 $z=30$ mm 以降ではほとんど変化していない。4重リング溝でも、要求される 10% 以下の均一性を達成できなかった。即ち、溝数を増やすことにより、均一性が必ずしも改善されないことが分かった。その配置を検討する必要があることが明らかとなった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 6 件)

Y.Ohtsu, M.Shigyo, M.Akiyama, T.Tabaru, Production of radio frequency magnetron plasma by monopole arrangement of magnets for target uniform utilization, Vacuum, 101 (2014), 403-407. (査読有)

Y.Ohtsu, J.Eguchi, Y.Yahata, radio-frequency magnetized ring-shaped hollow cathode discharge plasma for low-pressure plasma processing, Vacuum, 101 (2014)46-52. (査読有)

Y.Ohtsu, Y.Yahata, J.Kagami, Y.Kawashimo, T.Takeuchi, Production of high-density radio frequency plasma source by ring-shaped hollow-cathode discharge at various trench-shapes, IEEE Trans. Plasma Sci., Special Issue on Ion sources, 41 (2013),1856-1862. (査読有)

Y.Ohtsu and Y.Kawasaki, Criteria of radio-frequency ring-shaped hollow cathode discharge using H_2 and Ar gases for plasma processing, J.Appl.Phys., 113, (2013), 033302-1-5. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4776220>

(査読有)

Y.Ohtsu and K.Kihara, Production of low electron temperature plasma and coating of carbon-related water repellent films on plastic plate, IEEE Trans. Plasma Sci., Special Issue on Carbon-Related Materials Processing by Plasma Technologies, 40(2012)1809-1814, 10.1109/TPS.2012.2194513 (査読有)

Y.Ohtsu, Y.Yahata, J.Kagami, Y.Kawashimo, T.Takeuchi, Influence of trench shape of ring-shaped hollow electrode on high-density capacitive coupled plasma, Proc. Plasma Conference 2011, 22P027-0, 1-2 (査読無)

〔学会発表〕(計 8 件)

N.Matsumoto, Y.Ohtsu, Characteristics of capacitively coupled collisional plasma with RF ring-shaped hollow cathode, ICRP-8/SPP-31, 2014.2.6, 福岡国際会議場

松本直樹、大津康徳、リング状ホロー電極を用いた容量結合型衝突プラズマの特性、2013年(平成25年度)応用物理学会九州支部学術講演会、2013.12.1、長崎大学

Y.Ohtsu, Production of high-density RF plasma using ring-shaped hollow cathode for material processing, 5th International Workshop on Plasma Sciencetech for All Something (PLASA-5), 2013.6.21-22, 東京工業大学

大津康徳、川崎裕次郎、武田賢治、アルゴン・水素混合ガスを用いた高周波リング状ホロー放電プラズマ特性、電気学会プラズマ研究会、2012.12.10-13、東京大学

松本直樹、大津康徳、ホロー効果を用いたプラズマプロセス装置におけるプラズマ密度のガス圧力依存性、IEEE主催2012年度第2回学生研究発表会、2012.11.27、佐賀大学

Y.Ohtsu and M.Z.Hassan, Wood surface treatment by atmospheric RF capacitively coupled plasma jet, Proc. The 7th Asia-Pacific International Symposium on the Basics and Applications of Plasma Technology, 2012.4.14-15, Taiwan

Y.Ohtsu, Numerical simulation of rf capacitively coupled plasma with

ring-shaped hollow cathode, 2nd AISC International Symposium, 2012.3.1-2, 神戸
Y.Ohtsu, High-density RF plasma by hollow cathode for plasma processing, 4st International Workshop on Plasma Sciencetech for All Something (Plasas-4), 2011.10.9, 中国北京

〔図書〕(計 2 件)

矢嶋、大津、他「エレクトロニクス・エネルギー分野における超撥水・超親水化技術」、(株)技術情報協会、(2012),118-127.

Y.Ohtsu, Preparation of Zirconium Oxide Thin Film by Plasma Coating Method and its Hydrophobic Nature in Zirconium Characteristics, Technology and Performance, Nova Science Publisher, Inc. New York, (2012),1-26.

〔産業財産権〕

出願状況(計 1 件)

名称：プラズマ処理装置

発明者：大津康徳、加々見丈二、川下安司、竹内達也

権利者：国立大学法人佐賀大学、神港精機(株)

種類：特許

番号：2012-140903

出願年月日：2012年6月22日

国内外の別：国内

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.ee.saga-u.ac.jp/plasma/index.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

大津 康徳(OHTSU, Yasunori)

佐賀大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号：50233169

(2)研究分担者

なし