

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：11201

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540530

研究課題名(和文)パルスグロープラズマの高密度化と複合表面処理プロセスへの利用

研究課題名(英文)Production of high-density plasma using pulsed glow discharge and its applications for surface treatment

研究代表者

高木 浩一 (TAKAKI, Koichi)

岩手大学・工学部・教授

研究者番号：00216615

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：パルスパワーにより大容量・高密度グロー放電プラズマを、低圧から大気圧まで広い気圧範囲で生成し、材料表面処理などへ活用することを目的として、パルス電源の開発と大容量・高密度グロープラズマの生成や、それをスラスタや、高分子材料の表面処理、DLC高速成膜などに活用した。プラズマ生成用電源では、IGBTスイッチング電源を開発した。得られたグロープラズマは、発散磁場などを利用して空間的に制御を行った。プラズマ密度は $10^{18}m^{-3}$ 以上で、電子温度は1-9eVである。このプラズマで得られたスラストは15mNで、DLC成膜でもSP3/SP2比で0.55などのアモルファスカーボン成膜を実現した。

研究成果の概要(英文)：Repetitive high-power pulsed power generators were developed for production of high-density plasmas in wide gas pressure range from 0.1 Pa to atmospheric gas pressure. The produced high-density plasmas were utilized for plasma thruster, surface treatment of polymeric materials and amorphous carbon thin film deposition on the 3D materials. The repetitive pulsed power generator consisted of four insulated gate bipolar transistors (IGBTs), capacitors and dc high voltage power supply. The high-density plasmas were produced with the developed pulsed power supply and was controlled spatially using unbalanced magnetic field generated with permanent magnet array. The produced plasmas had more than $10^{18}m^{-3}$ in number density, and 1-9 eV in electron temperature. The produced plasma provided 15 mN in thrust force and prepared amorphous carbon thin film on 3D material. The SP3/SP2 ratio of the prepared film was 0.55 analyzed by Raman spectra.

研究分野：高電圧パルスパワー工学

キーワード：高密度プラズマ パルスパワー HiPIMS プラズマスラスタ 材料表面改質

1. 研究開始当初の背景

グロー放電プラズマは、空間的均一性に富む、化学的活性種を多く含む、ガス温度が低いなどの特徴を有しており、材料プロセスなどの応用に広く用いられている。プロセスの高速化にはプラズマの高密度化が必要になる。プラズマの高密度化には、投入電力を増やし、大きな放電電流を得ることなどが必要になる。しかし、放電の大電力・大電流化は、シースなどへの投入電力密度の増加を引き起こし、容易にアーク放電へ転移する。特に気圧が高い場合、陰極シースが短くなり、シースの電力密度は極端に大きくなり、容易にアーク放電へと至る。グロー放電のアーク転移は、プラズマの熱化へとつながり、材料プロセスへの妨げとなる。

アーク転移を引き起こさずに大体積・高密度プラズマを得る手法として、パルス電圧を用いて一定時間の後に消弧するものなどがある。この手法は、①容易に低電圧から大気圧までの広い範囲でプラズマを生成できる、②高密度プラズマの生成および密度や温度制御が容易、③イオンの速度制御がプラズマ生成と並行して行えるなど、材料表面処理などのプロセスへの応用に対して、極めて有利な特徴を有する。パルスパワーによるグロープラズマ生成は、主にレーザ分野で活用されてきた。プロセスへのパルス電圧の利用は、主に基板等へのフラックス制御の観点から行われており、パルスパワーを活用して高密度・大体積グロー放電プラズマを発生・制御し、プロセスに活用する事例は少ない。

2. 研究の目的

研究目的は、パルスパワー技術を活用して、プロセスに必要なグロー放電プラズマ発生に適したパルスパワー電源を開発して、低気圧から大気圧までの広い気圧範囲で、高速な材料表面処理プロセスを実現することとなる。具体的には、低気圧ではフルブリッジ型パルス発生回路を用いて、高気圧では高速ダイオードを半導体オープニングスイッチ(SOS)として活用して、誘導性エネルギー蓄積方式電源を構築し、コンパクトで、安価な電源で、高密度なグロー放電プラズマを、低気圧から大気圧までの、広い気圧範囲において発生・制御する。それを各種プロセスに活用する。本研究目的が達成された場合、医療現場で使用させる高分子材料や、一般の金属材料など、多くの対象物に対して、表面処理や成膜などを高速で行うことができる。

3. 研究の方法

上記の背景および目的を踏まえ、プラズマ生成について3項目、応用について2項目の合計5項目について研究を進めた。

プラズマ生成は、電源開発と高密度プラズマ生成について実施した。**項目1；グロー放電発生に最適なパルスパワー電源の開発**では、高速ダイオードをスイッチング素子とし

て用いた電源の開発を進める。グロー放電の発生・制御には、スパイカー、サステナー電圧に加え、電圧を遮断する機構も必要になる。これには、耐圧の高いSiCスイッチング素子の活用を含め、MOSFETなどパワー半導体を利用する。**項目2；大気圧領域でのパルスグロー放電プラズマの生成とアーク転移条件の把握**では、シースで生じる熱的不安定性によって陰極輝点が発生する臨界値を、実験などから明らかにする。この条件をもとに、電圧を遮断する時間を決定する。決定された時間で各スイッチが動作するように、制御系を設定する。**項目3；低中気圧領域でのパルス駆動高密度プラズマの生成とその密度・エネルギーの把握**では、パルス電圧に加え、放電開始に至る粒子供給の仕組みも必要になる。これには、ロッド(カーボン)などに電流を流すことで材料の表面を加熱、粒子や熱電子を供給し、放電を引き起こすシャンティング放電を活用する。

応用については、高分子材料の大気圧表面処理と、金属材料については酸化を防ぐため、低気圧表面処理を実施した。**項目4；材料表面処理に適したパルスグロープラズマ装置の開発**では、メタン(CH₄)ガスを用い医療器具へのDLC(diamond-like-carbon)成膜や酸素の活性種を用いた表面処理(濡れ性の制御)などに適した、パルスグロー放電生成システムの開発を目指す。**項目5；パルス高密度プラズマを用いた高速成膜の実現**では、低気圧でのパルス大電流放電でプラズマを生成し、金属含有カーボン、水素含有カーボンなどの高速成膜に適したパルスプラズマ生成およびその評価を行った。

4. 研究成果

上記の研究方法に従い、研究を行った。得られた成果について、①高速ダイオード用いた電源の開発と大気圧プラズマの生成、②SiCスイッチング素子を用いた高繰り返し大電力パルス電源の開発、③低中気圧領域でのパルス駆動高密度プラズマ(シャンティング放電)の生成とその密度・エネルギーの把握、④材料表面処理に適したパルスグロープラズマ装置の開発では、HiPIMS用電源開発とそれを用いたDLC成膜、⑤パルス高密度プラズマを用いたスラストについて述べる。

(1) 高速ダイオード用いた電源の開発

高速ダイオードを半導体開放スイッチ(SOS)として用い、誘導性エネルギー蓄積方式でパルスパワーを発生させることで、数十ナノ秒の電圧パルスを容易に作るができる。この方法の欠点は、放電負荷が過渡的なストリーマ放電等から準定常のグロー放電へ遷移することで、負荷のインピーダンスが下がり、等価回路上、RC放電回路となり、パルス幅が伸びて、アーク転移へと至る。この問題を回避するため、①負荷インピーダンスに最適な回路パラメータの設定、②過飽和

トランスを用いて一次側・二次側のインピーダンスを変換する、③アレスタなどを用いた出力電圧のテールの遮断を試みた。

図1に、基本的な回路構成を示す。一次側回路は、高電圧直流電源、キャパシタ C_1 、スイッチで、二次側回路は、キャパシタ C_2 、インダクタ L_2 、SOS ダイオードなどで構成されている。一次側と二次側回路は、パルストランス (PT) により結合されている。この回路の典型的な出力波形を図2に示す。充電された C_1 からスイッチを通して一次電流が流れ、PTを介してSOSダイオードに順方向電流を供給する。この際、SOSダイオードの接合面にキャリアが蓄積される。その後、PTの磁束飽和で、一次側と二次側回路が切り離され、SOSダイオードの逆方向電流の遮断により、急峻なサージ電圧が生成される。図3に、アレスタの有無による放電プラズマの時間発展を示す。アレスタを取り付け、テールをカットすることで、アーキングを防いでいる状況が確認できる。

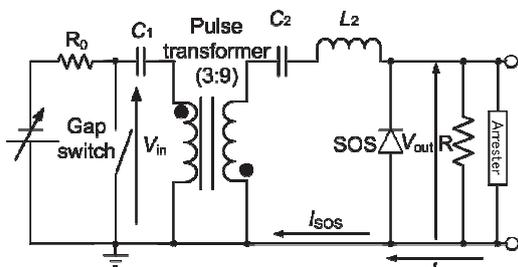


Fig 1. Pulsed power circuit using SOS diode.

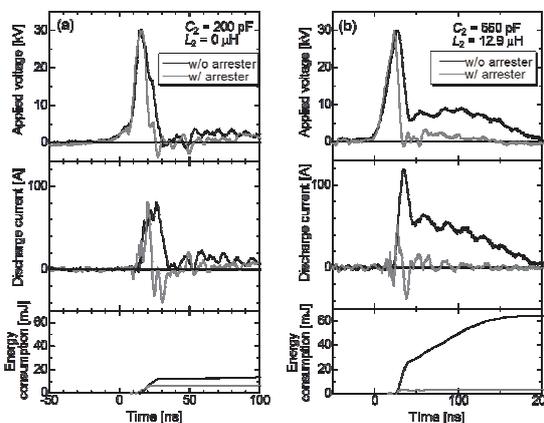


Fig 2. Typical waveforms of output voltage, discharge current and energy consumption.

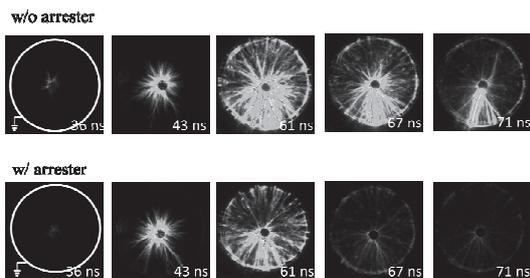


Fig 3. Temporal development of plasma at w/o and w/ arrester.

(2) SiCスイッチング電源の開発
シリコンカーバイド (SiC) 半導体の接合型 FET (JFET) をスイッチング素子として用い、高繰り返し大電力パルス電源の開発を試みた。手順は、素子単体のスイッチング性能評価を行い、次にそれらの動作に適したトリガ回路の開発を行った。最後に、スイッチング素子4アームを作成し、フルブリッジ型のパルスモジュレータを構築して評価した。デバイスチップには、SiCED 社 (独) によって開発された、4.3mm 角のノーマリーオン型の SiC-JFET を用いた。

図4に、基本的な回路構成を示す。各スイッチングアームは水冷ヒートシンクにマウントされた SiC-JFET、絶縁型 dc-dc コンバータで電源供給されるゲートドライブ回路で構成されている。駆動信号は光ファイバを通じて送信される。またスイッチング時の過電圧を抑制するため放電阻止型の RCD (Resistor Capacitor Diode) スナバ回路が備えられている。この回路の典型的な出力波形を図5に示す。負荷として抵抗を接続している。入力直流電圧 800V、繰り返し周波数 1 MHz としており、出力電流波形と FET1 の電圧波形を示している。若干の電圧振動が見られそのために FET のピーク電圧 V_{DSP} は入力電圧よりも高くなっているが、FET の許容最高電圧 (1.2kV) には達していないことが確認できる。

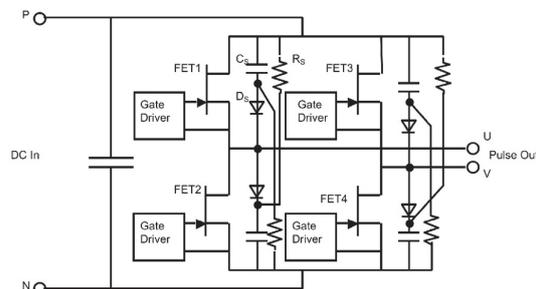


Fig 4. Pulsed power circuit using SiC-JFET.

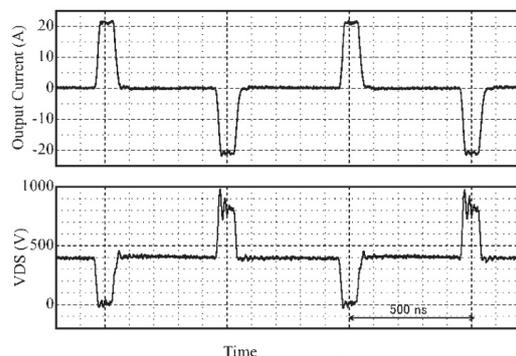


Fig 5. Measured waveform; output current (upper) and FET voltage (lower).

(3) パルス駆動高密度プラズマの生成
これまで開発したパルス電源をベースに、表面処理用高密度パルスプラズマの生成を試みた。手法として、これまでアーク放電で用いてきたカーボンロッドを用いたシャン

ティング放電への印加電圧を、コンデンサ放電方式からパルス制御方式に変えることで、アーク転移を起こさずに、グロー放電プラズマとして発生させることが可能かについて、実験を通して評価した。

図6に、プラズマ生成システムの構成を示す。シャuntingプラズマの生成では、最初にカーボンロッドをジュール加熱で、表面の一部を酸化させて、ロッド周辺の気圧をパッシェンミニマムに近づける必要がある。加えて、プラズマ生成に必要な電圧と電荷の供給が必要になる。これは、コンデンサとサイリスタで行った。加えて、成膜などのプロセスに用いるためには、イオンを加速するための電圧（バイアス電圧）も必要となる。これには、IGBT でスイッチング電源を構成して

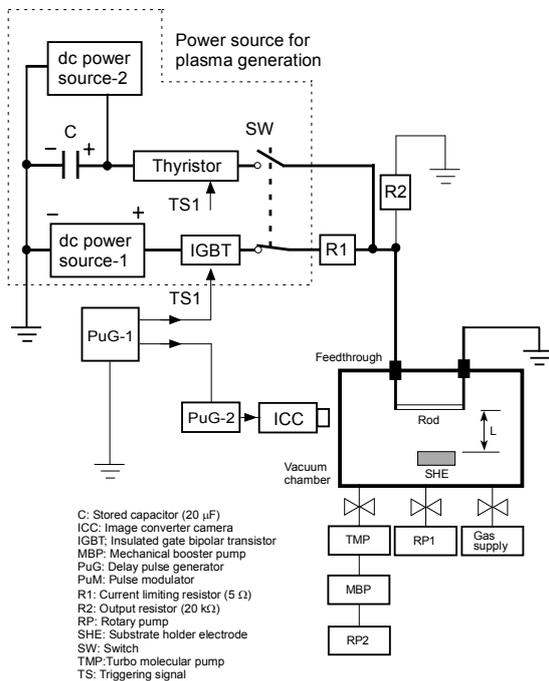


Fig 6. Shunting plasma generation circuit.

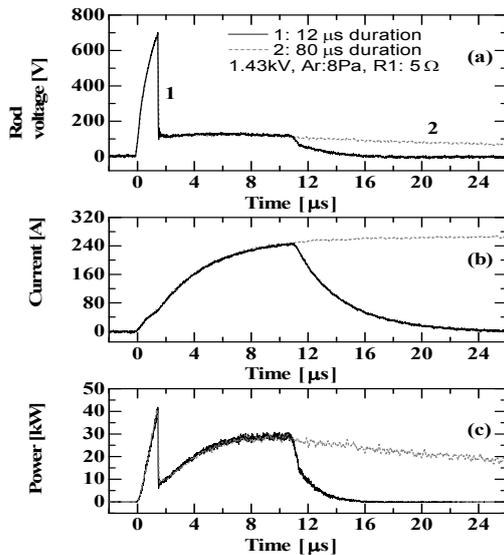


Fig 7. Waveforms of voltage (a), current (b) and consumed power (c) in the rod and the glow plasma at 12 μs and 80 μs pulse width of the applied voltage.

用いた。この回路を用いて、パルス幅 80 μs および 12 μs としたときの典型的な出力（電圧・電流・電力）の時間変化を図7に示す。プラズマ電流が途中で遮断されている様子が見える。また、このときのプラズマの様子を図8に、成膜の様子を図9に示す。短パルス化によりアーク転移が防げること、またその結果、シリコン基板の上のデブリ（ドロップレット）の付着が抑制されることがわかる。

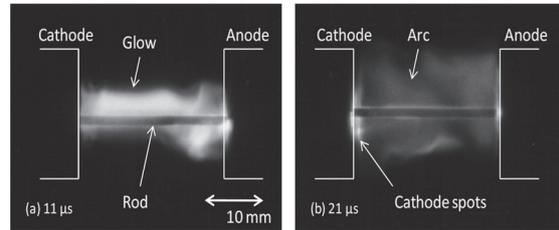


Fig 8. Image converter camera (ICC) images of a shunting plasma in the glow (a) and arc stages (b).

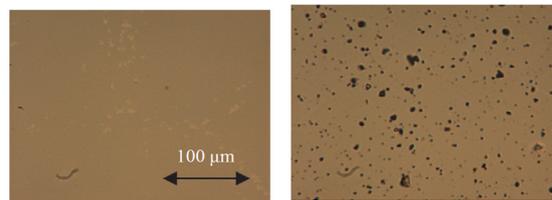


Fig 9. SEM images of deposited DLC film surfaces prepared by a shunting glow (a) and a shunting arc (b), respectively.

(4) HiPIMS 電源開発と DLC 成膜

HiPIMS (High Power Impulse Magnetron Sputtering) 法は、マグネトロンスパッタ法に、パルス電力を用いて $10^7 \text{W}/\text{m}^2$ 程度の瞬間的な大電力を投入し、ターゲットのスパッタ率を上げて、ガスイオンに対する固体由来のイオン比をあげて、高度なプロセスを行う技術である。これまで開発した電源を用いて、HiPIMS の高密度プラズマ生成およびそれを用いたプロセスを試みた。

図10に、基本的な回路構成を示す。直径 6 インチ、厚さ 10 mm からなる円形平板状カーボンターゲットをターゲットホルダに固定し真空容器上面に永久磁石を拡散磁場配

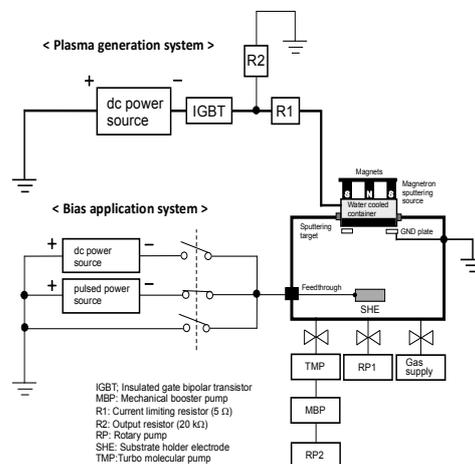


Fig 10. HiPIMS plasma generation circuit.

位で配置する。ターゲットホルダ内に冷却水循環装置を用いて 20 °C の冷却水を循環させターゲットを冷却する。ターゲットに制限抵抗 10 Ω を接続し、負極性パルス高電圧電源を用いて -1200 ~ -2100 V の電圧を印加することでプラズマを発生させる。このシステムで生成したプラズマの様子を **図 11** に示す。プラズマは発散磁場配位で生成される磁場によりトラップされて、レーストラックと呼ばれる円周上に生成される。この発散磁場配位によってプラズマ分布も変化する。この様子を、プラズマからの発光の系方向分布として、**図 12** に示す。 n は中心に置かれた磁石の個数で、この値が小さいほど、発散磁場配位 (非平衡性) が強いことを示す。 n が小さいほど、プラズマの発生場所が中心に近づくことがわかる。外側にはチャンバ壁があり、これはアース電位となる。アーク放電発生条件からも、発散磁場配位が強いほど、アークキングが起こりにくいことが明らかとなっている。これは、プラズマの分布が内側へシフトして、アース電位からの距離が上がることに関係して生じることなどがわかる。

この HiPIMS システムを用いて DLC 成膜を行った。ラマンスペクトルより、SP2 由来の G-peak のスペクトルと、SP3 由来の D-peak が混在して存在していることがわかった。このスペクトル比 ID/IG は 0.55 程度となった。この SP3 由来含有率を明らかにするため、XPS 解析を行った結果を、**図 13** に示す。SP3 含有量は 25 から 40% と、従来のものと比較しても、約 1.5 倍である。高硬度の成膜となっていることがわかる。

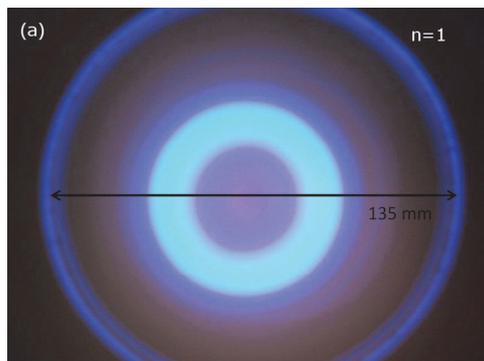


Fig 11. Still photos of plasma for $n = 1$ at 7 μ s.

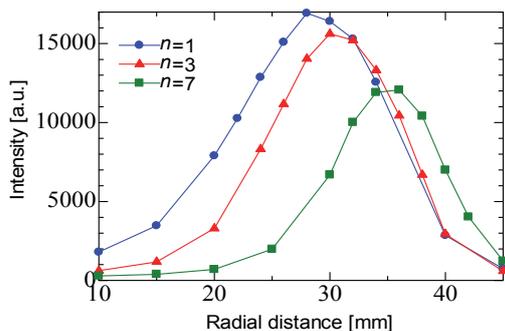


Fig 12. Spatial distribution of light emission at 7 μ s.

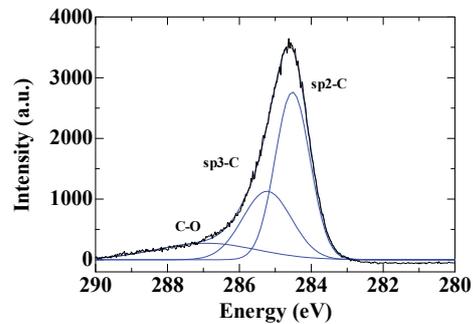


Fig 13. Observed XPS spectrum with curve fitting using Gaussian curves.

(5) パルス高密度プラズマスラスタ

ヘリコンプラズマに磁気ノズルを適用した際の自発的なダブルレイヤーまたは両極性電場の形成に付随して、静電イオン加速現象が起こることが報告されており、プラズマ生成部の高エネルギー電子がこの電場を乗り越えて加速されたイオンを中和していることが観測されている。電極および中和器が不要な無電極ヘリコンプラズマスラスタの開発によって長寿命電気推進機が実現できる。これまで磁場強度の増大に伴い磁気ノズル中の径方向拡散を抑制することでノズル内部のプラズマ密度と磁気ノズルに起因する推力が増大し、理論限界値に近づいていく。ここでは、パルス電源を用いて磁場強度を増大し、ノズルからのプラズマ損失が少ない理想的な磁気ノズルを有する強磁場ヘリコンプラズマ源を開発した。

磁場発生には小型のソレノイドコイルを採用し、IGBT 素子を用いたパルス電流発生電源を作成し、最大 5kG の磁場の印加を可能にしている。**図 14** に、ヘリコンプラズマ生成装置の概観と、計算により求めた磁場の軸方向分布を示す。ソレノイドコイルへ電流を 5 A 流した際、300Gauss 程度の磁場が発生している様子が確認できる。**図 15** に、プ

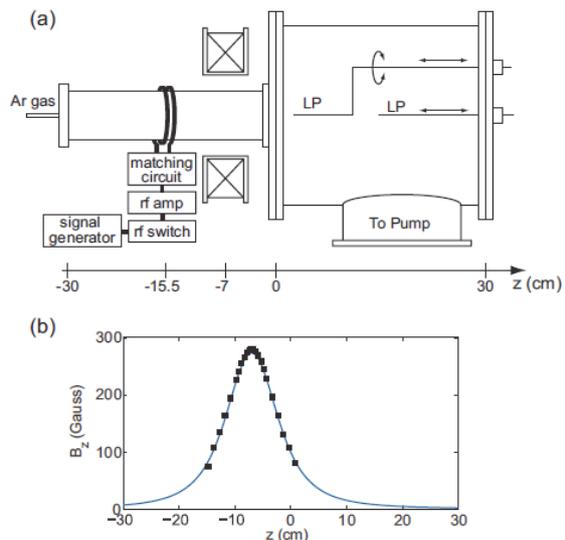


Fig 14. (a) Schematic diagram of the experimental setup. (b) Calculated axial profile of the magnetic field B_z on the axis for a 5 A solenoid current (solid line), together with the measured one (filled squares) for a 5 A dc solenoid current.

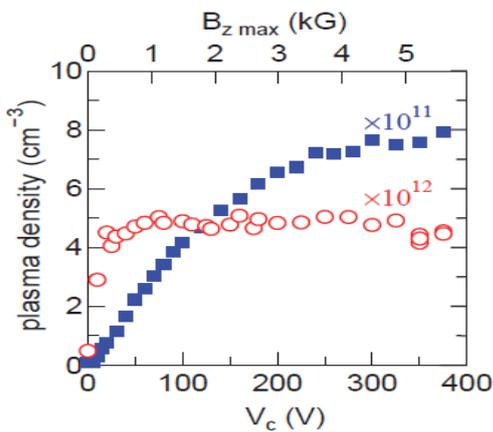


Fig 15. Plasma densities as a function of V_c at $z = -7$ cm (open circles) and 20 cm (filled squares).

ラズマ生成部(○) とプラズマ源から 20cm 下流に相当する磁気ノズル中(■)で計測したプラズマ密度の磁場強度依存性を示す。磁場強度を上げた際に生成部密度は一定に保ちつつ、磁気ノズル中の密度のみが上昇している。更に 3.5 kG 以上の磁場強度では下流部の密度が飽和することが観測された。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 1 件)

- ① K. Takaki, K. Takahashi et al. Temporal and spatial ion distributions of carbon shunting arc, *Jpn. J. Appl. Phys.* 54, 01AA04(5pp), 2015.1. <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.01AA04>
- ② K. Takahashi, H. Higashiyama, K. Takaki, A. Ando, Testing a sheath-compensated Langmuir probe in geometrically and magnetically expanding plasmas, *Jpn. J. Appl. Phys.* 54, 01AB01(5pp), 2015.1. <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.01AB01>
- ③ T. Konishi, K. Takaki, K. Yukimura, Spatial Distribution of a High-Power Impulse Magnetron Sputtering Glow Plasma by a Controlled Unbalanced Magnetic Field, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 42(10), 2786-2787, 2014.10. 10. doi:1109/TPS.2014.2326194
- ④ K. Yukimura, K. Takaki et al. Carbon Ion Production Using a High-Power Impulse Magnetron Sputtering Glow Plasma, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 41(10), 3012-3020, 2013.10. 10. doi:1109/TPS.2013.2280916
- ⑤ K. Takahashi, K. Takaki et al. Development of a compact magnetically expanding plasma source with a strong magnetic field *Plasma Sources Sci. Technol.*, 22, 055002 (5pp), 2013.8. doi:10.1088/0963-0252/22/5/055002
- ⑥ K. Takaki et al. Characteristics of amorphous carbon films prepared by hybrid RF (195 kHz) plasma triggered by shunting arc discharge, *Surf. Coat. Technol.*, 229, 26-30, 2013.8. <http://dx.doi.org/10.1016/j.surfcoat.2>

012.07.075

- ⑦ S. Mukaigawa, K. Takaki et al. Surface-charge measurements in microgap dielectric barrier discharge using bismuth silicon oxide crystals, *Journal of Physics: Conference Series*, 441, 012012-1-8, 2013.3. doi:10.1088/1742-6596/441/1/012012
- ⑧ K. Takaki et al. A New Approach to High-Power Pulsed Glow Plasma Generation: Shunting Glow Plasma *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 40(7), 1801-1808, 2012.7. DOI: 10.1109/TPS.2012.2191624
- ⑨ K. Okamura, K. Takaki et al. Characterization of SiC JFET in novel packaging for 1 MHz Operation, *Materials Science Forum*, 717-720, 1029-1032, 2012.5. www.scientific.net

[学会発表] (計 2 1 件)

- ① K. Takaki, I. Yagi, T. Go, Ozone Synthesis Using Streamer Discharge by Inductive Energy Storage Pulsed Power Generator with Fast Recovery Diodes, 9th International Symposium on Applied Plasma Science (ISAPS'13), IV-3, (Invited), Sakarya, Turkey, 2013.9.26.

[図書] (計 2 件)

- ① 神原信志(監修), 高木浩一他, NTS 出版, 大気圧プラズマ反応工学ハンドブック, 2013, 403-414
- ② R. Sethi (Ed.), K. Takaki et al. Nova Science Pub Inc. Air Pollution: Sources, Prevention and Health Effects, 2013, 251-278

[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

<http://thunder-fujiwara.elc.iwate-u.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

高木 浩一 (TAKAKI, Koichi)
岩手大学・工学部・教授
研究者番号：00216615

(2)研究分担者

向川 政治 (MUKAIGAWA, Seiji)
岩手大学・工学部・准教授
研究者番号：60333754

高橋 和貴 (TAKAHASHI, Kazunori)
東北大学・工学(系)研究科・准教授
研究者番号：80451491