

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 5 月 24 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25286079

研究課題名(和文)メートル長高密度大気圧マイクロ波プラズマ生成とその物理過程の解明

研究課題名(英文) Production of meter-scale high density microwave plasma and elucidation of its physical mechanism

研究代表者

豊田 浩孝 (Toyoda, Hirotaka)

名古屋大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：70207653

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,700,000円

研究成果の概要(和文)：大面積のガラスやフィルム表面の処理装置として、長尺で均一かつ高プラズマ密度をもつ大気圧プラズマ生成技術が求められている。本研究はループ型導波管を用いて定在波の存在しないキャビティ構造を実現して長尺のスロット内部へのマイクロ波大気圧プラズマの生成を試みた。そして、本手法によるプラズマ生成の物理機構を明らかにするとともに、分子ガスを用いた安定かつ均一な長尺高密度プラズマの生成に成功した。

研究成果の概要(英文)：High density atmospheric pressure plasma with long scale is required for high-throughput surface treatment device of glass or polymer films. This study challenged to produce high density microwave plasma in a long scale slot using loop-structured cavity resonator without standing wave. Plasma production mechanism in the slot is clarified through this study and stable, uniform, long scale high density microwave plasma using molecular gas is successfully realized.

研究分野：プラズマエレクトロニクス

キーワード：大気圧プラズマ マイクロ波 長尺プラズマ 高密度プラズマ

1. 研究開始当初の背景

大気圧プラズマは“真空システムが不要”、“大気圧環境下でさまざまな処理が可能”等から新しいプロセスプラズマ源として期待されており、大面積のガラスやフィルム表面の処理装置としての期待されている。しかし、フィルムプロセス等では生産性の観点から高速処理が求められており長尺で高密度な大気圧プラズマ生成技術が必須といえる。一方、大気圧プラズマ生成法としては、一般には誘電体バリア放電が用いられており長尺のプラズマ源に関する報告もなされているが、プラズマ密度が高くないため処理速度が低いという課題が残されている現状にある。これに対し高密度プラズマを大気圧にて生成する手法として、導波管にスロットを配しスロット間でプラズマを生成するスロット方式大気圧マイクロ波プラズマがあり、高プラズマ密度が得られるとともに、導波管長さ方向にプラズマを伸ばしやすい、といった特徴がある。しかし、スロット方式大気圧マイクロ波プラズマ源はすべて導波管終端部が短絡されており、導波管内に進行波と反射波の干渉により定在波が発生する。そして、この定在波を利用して、表面電流の大きな箇所スロットを配置することにより、プラズマを生成しているため、プラズマが離散した位置にしか生成できず均一性に課題があった。なお、この課題を解決するため遮断波長近くまで導波管幅を狭くして管内波長を長くすることで長尺プラズマを生成する試みもあるが、プラズマの発生により導波管インピーダンスが変化するため管内波長がプラズマに強く影響され、長尺の安定生成が困難となっている。

本研究代表者は上記の問題の根源には導波管内部における定在波の存在があると考え、定在波の存在しない状態においてマイクロ波大気圧プラズマを生成すれば長尺にわたって均一なプラズマ生成が可能になるという着想を得た。さらに、その方式を実現する方

法として図1のような構造を提案した。すなわち、プラズマ生成部となる狭ギャップのスロットを導波管に沿って長く形成するとともに、マイクロ波サーキュレータを用いてマイクロ波の進行方向を制御し、スロット部分では1方向のマイクロ波のみが伝搬できるような構造である。そして本着想に基づいた装置を設計・制作し0.6m長さにわたって均一なプラズマを生成することに成功した。また、そのようなプラズマを詳細に調査すると、プラズマがスロットに沿って数m/sで高速に移動することで疑似的に均一なプラズマが生成されていることも明らかとなっている。

2. 研究の目的

本装置の応用展開においては、まずプラズマの特性を把握することによってプラズマの制御性を高めることが重要である。特にプラズマの生成機構(スロットに沿ったプラズマの高速移動)は物理的にも興味深い現象であり、その制御は応用上も重要と考えられる。そこで、プラズマの高速移動の機構を明らかにするとともに、均一なプラズマの長尺実現可能限度など実用上重要な点について物理的観点から基礎的に明らかにすることを本研究の目的とした。本装置は非常に特徴的であり本研究で提案する大気圧マイクロ波プラズマ源は従来の大気圧プラズマ源に見られない特徴を有しており、またその中のプラズマ生成・プラズマ挙動はいまだに誰も明らかにしてない新しい現象である。また、本プラズマ源はさまざまな応用分野への展開が期待でき、基礎研究としてだけでなく社会的にも研究の意義は極めて大きい。

3. 研究の方法

本研究の実施にあたって、実験装置を独自に設計し立ち上げをおこなった。そして、まずスロット内部に生成するプラズマの均一性に重要な役割を果たすスロット内部でのプラズマの移動について高速度カメラおよび時分解ICCD分光システムを用いたプラズマの時分解計測を行い、プラズマの移動機構について検討をおこなった。また、プラズマの均一性向上のため、スロット内部電界強度計算を援用してスロット設計の最適化を進めるとともに、高速移動するプラズマではなく、長尺スロット内で完全につながった均一かつ安定なプラズマ生成をこころみだ。

4. 研究成果

まず、プラズマ移動の物理現象を明らかにするための高速ビデオカメラを用いた計測により、さまざまなスロット幅やパルスマイクロ波のパルス時間を変化させながらプラズマの動きがどのように変化するかを詳細に調査した。その結果、マイクロ波電力やマイクロ波パルスデューティー比がプラズマ移動速度に大きく影響することが明らかとなった。さらに、移動するプラズマの発光強

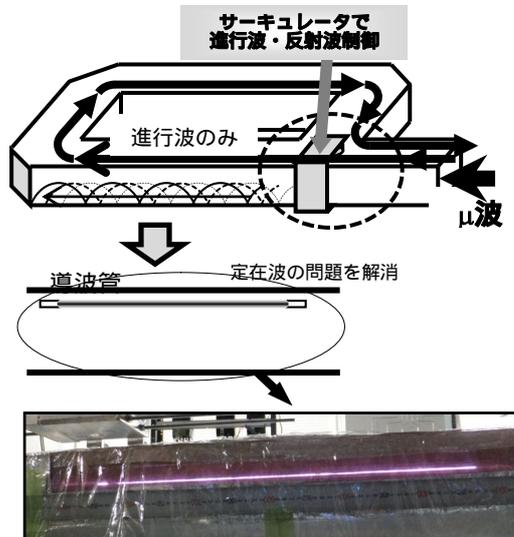


図1 進行波マイクロ波プラズマ装置

度の分布を詳細に調べたところ、プラズマ内に発光強度の分布があることがわかり、これがプラズマ内におけるマイクロ波電界強度の偏りに起因することを示した。そして、発光強度からプラズマ内における電離レートを推測し、これと拡散シミュレーションを組み合わせたシミュレーションを行うことにより、プラズマの移動についての検討をおこなった。図2がそのモデル図である。

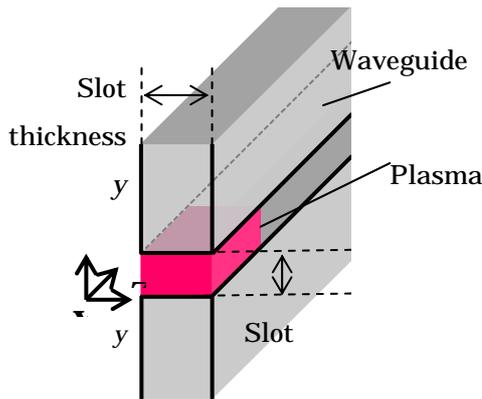


図2 プラズマ移動モデル図

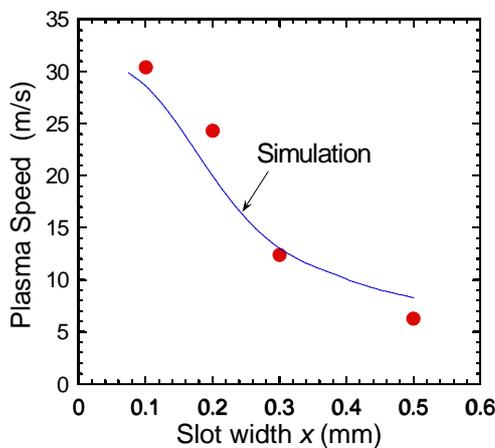


図3 プラズマ移動速度の  
スロット幅依存性

このモデルをもとにシミュレーションを実施しその移動速度を評価し実験結果との比較をおこなった(図3)。その結果、スロット幅に対する依存性は、今回構築したモデルをもとによく説明できることが示された。さらにパルス幅などのパラメータに対する変化も本モデルから説明できることから、本研究代表者の推測した通りラインプラズマにおけるプラズマ移動は電磁界の偏りとプラズマの拡散に起因したものであることが明らかになった。

つぎに、これまでの研究で得られたプラズマが直線的に均一なプラズマでありつつも、実際には孤立したプラズマの移動によって時間平均的にプラズマ均一性が得られていた点をさらに改良し、時間空間的に均一なプ

ラズマを生成することを試みた。具体的には、スロット幅や電力の調整により、プラズマサイズの変化を詳細に調査することでプラズマの長尺化への指針を明らかにした。その結果、高電力かつ高パルスデューティー比の条件に近づけることによって移動型プラズマが変化し、時間的に変化することのない空間的に連続で均一な安定したプラズマを得ることができることを明らかにした。

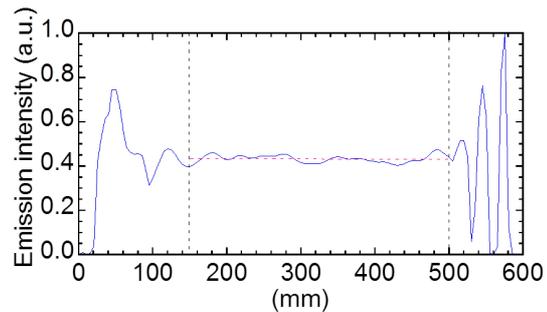


図4 発光強度の空間分布

その際のスロットに沿った発光強度の空間分布測定結果を図4に示す。スロット両端部において発光強度の乱れがみえるのは、スロット端におけるマイクロ波の乱れに起因するものである。両端の乱れを除けばスロットに沿って40cm近い均一なプラズマが生成できていることがわかる。このように、安定かつ均一なプラズマを40cm程度の長尺で形成できることを明らかにした。

上述の研究成果は主にArまたはHeといった希ガスを用いた大気圧プラズマ生成を実施した結果である。しかしながら、本装置の応用展開を考えた場合、実用的には希ガスではなくN<sub>2</sub>、O<sub>2</sub>等の単純分子ガスを含む分子ガスを利用したプラズマ生成が望ましい。そこで、次のステップとして、プラズマ装置のさらなる高性能化をめざし、分子ガスを用いたプラズマ生成を試みた。その結果、導波管構造を改良することにより希ガスを添加しない100%分子ガスを用いた条件においても安定なプラズマを生成することに成功した。またこれまでパルスマイクロ波を用いた放電をおこなっていたのに対して、CWマイクロ波によるプラズマ生成もおこない、安定なプラズマ生成を確認している。さらに分子ガスプラズマにおいてガス温度計測などをおこない、従来の希ガスプラズマより温度は高くなるものの、1500K程度のガス温度であり、プラズマが熱プラズマ化していないことも確認している。一般に、非熱平衡大気圧プラズマはプラズマの熱化を避けるためにパルス放電をおこなう方法が多く用いられているが、本プラズマはそのようなことをおこなうことなく安定にプラズマを生成できることを示しており、実用的な観点だけでなく、プラズマの生成メカニズムの観点からも非常に興味深い結果を与えることができた。

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3件)

H. Suzuki, S. Nakano, H. Itoh, M. Sekine, M. Hori and H. Toyoda, Characteristics of an atmospheric-pressure line plasma excited by 2.45 GHz microwave travelling wave, Japanese Journal Applied Physics, Vol. 55, (2015) 01AH09-1-6  
DOI:10.7567/JJAP.55.01AH09

H. Suzuki, S. Nakano, H. Itoh, M. Sekine, M. Hori and H. Toyoda, New line plasma source excited by 2.45 GHz microwave at atmospheric pressure, Applied Physics Express, Vol. 8, No. 3, (2015) 036001-1-4

H. Itoh, Y. Kubota, Y. Kashiwagi, K. Takeda, K. Ishikawa, H. Kondo, M. Sekine, H. Toyoda and M. Hori, A Development of Atmospheric Pressure Plasma Equipment and Its Applications for Treatment of Ag Films Formed from Nano-Particle Ink, Journal of Physics : Conference Series, Vol. 441 (2013) 012019  
DOI:10.1088/1742-6596/441/1/012019

[学会発表](計20件)

山本 匡毅、鈴木 陽香、豊田 浩孝、スロット内生成マイクロ波プラズマを用いた高速プラズマCVD、第63回応用物理学会春季学術講演会、2016年3月19日、東京工業大学(東京都・目黒区)

鈴木 陽香、中野 優、伊藤 仁、関根 誠、堀 勝、豊田 浩孝、大気圧マイクロ波放電による長尺ラインプラズマの生成と基礎特性、第32回プラズマ・核融合学会 年会、2015年11月26日、名古屋大学(愛知県・名古屋市)

H. Suzuki, S. Nakano, H. Itoh, M. Sekine, M. Hori, H. Toyoda, Application of Atmospheric-Pressure Microwave Line Plasma for Low Temperature Process, ICRP-9/GEC-68/SPP-33, 2015年10月14日, Honolulu (USA)

山本 匡毅、鈴木 陽香、豊田 浩孝、スロット内生成マイクロ波プラズマの基礎的検討、平成27年度電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会、2015年9月29日、名古屋工業大学(愛知県・名

古屋市)

H. Suzuki, S. Nakano, H. Itoh, M. Sekine, M. Hori, H. Toyoda, Low Temperature Treatment using Atmospheric-Pressure Microwave Line Plasma, 第76回応用物理学会秋季学術講演会、2015年9月15日、名古屋国際会議場(愛知県・名古屋市)

H. Suzuki, S. Nakano, H. Itoh, M. Sekine, M. Hori, H. Toyoda, Gas Temperature Measurement in Atmospheric-Pressure Microwave Line Plasmas, ISPlasma2015/IC-PLANTS2015, 2015年3月30日, Nagoya University (Aichi・Nagoya)

鈴木 陽香、中野 優、伊藤 仁、関根 誠、堀 勝、豊田 浩孝、大気圧マイクロ波ラインプラズマにおけるプラズマ挙動シミュレーション、第62回応用物理学会春季学術講演会、2015年3月12日、東海大学(神奈川県・平塚市)

中野 優、鈴木 陽香、伊藤 仁、関根 誠、堀 勝、豊田 浩孝、狭ギャップスロットアンテナを用いた大気圧ラインプラズマ生成、Plasma Conference 2014、2014年11月19日、Toki Messe (Niigata・Niigata)

H. Toyoda, Plasma Science for Future Nanotechnology, The GRDC Symposium 2014, 2014年11月11日, Seoul (Korea)

H. Toyoda, H. Suzuki, S. Nakano, H. Itoh, M. Sekine and M. Hori, Pseudo-continuous meter-scale microwave plasma production under atmospheric pressure, 67th Annual Gaseous Electronics Conference, 2014年11月7日, Raleigh (USA)

豊田 浩孝、プラズマ技術とその産業応用、プラズマ技術講演会 第51回プラズマが拓くものづくり研究会、2014年10月23日、ポートメッセなごや(愛知県・名古屋市)

H. Suzuki, S. Nakano, H. Itoh, M. Sekine, M. Hori, H. Toyoda, Plasma movement mechanism in pseudo-continuous meter-scale atmospheric-pressure line plasma, 第75回応用物理学会秋季学術講演会、2014年9月17日、北海道大学(北海道・札幌市)

S. Nakano, H. Suzuki, H. Itoh, M.

Sekine, M. Hori, H. Toyoda, Spatiotemporal Resolved Investigations of Atmospheric Pressure Line Plasma, ISPlasma2014/IC-PLANTS2014, 2014年3月3日, Meijo University (Aichi・Nagoya)

S. Kondo, K. Sasai, N. Takada AND H. Toyoda, Design of Meter-Scale Compact Microwave Antenna Structure by Electromagnetic Simulation, ISPlasma2014/IC-PLANTS2014, 2014年3月3日, Meijo University (Aichi・Nagoya)

H. Suzuki, S. Nakano, H. Itoh, M. Sekine, M. Hori, H. Toyoda, Production of High-Uniform Microwave Line Plasma at Atmospheric Pressure, ISPlasma2014/IC-PLANTS2014, 2014年3月3日, Meijo University (Aichi・Nagoya)

H. Suzuki, S. Nakano, H. Itoh, M. Sekine, M. Hori, H. Toyoda, Meter-Scale Production of Atmospheric Pressure Microwave Plasma by Travelling Wave, ICRP-8/SPP-3, 2014年2月6日, Fukuoka Convention Center (Fukuoka・Fukuoka)

N. Takada, S. Kondo, S. Nakano, K. Sasai and H. Toyoda, Production of high-density meter-length plasma with metal-covered slot antenna, ICRP-8/SPP-3, 2014年2月5日, Fukuoka Convention Center (Fukuoka・Fukuoka)

H. Toyoda, Meter-Scale Atmospheric-Pressure Microwave Plasma Using Sub-Millimeter-Gap Slot, 66th Annual Gaseous Electronics Conference, 2013年10月3日, New Jersey (USA)

H. Suzuki, S. Nakano, H. Itoh, M. Sekine, M. Hori, H. Toyoda, Electromagnetic Simulation of Long-Slotted Waveguide Antenna for Production of Meter-Scale Plasma under Atmospheric Pressure, 66th Annual Gaseous Electronics Conference, 2013年10月1日, New Jersey (USA)

H. Suzuki, T. Takaba, N. Takada and H. Toyoda, Absorption Spectroscopy of Atomic Metal in Atmospheric-pressure Plasma with Electrolyte Solution Electrode, Korea - Japan Workshop on

Advanced Plasma Processes and Diagnostics & The Workshop for NU-SKKU Joint Institute for Plasma-Nano Materials, 2013年5月25日, Suwon (Korea)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

豊田 浩孝 (TOYODA, Hirotaka)

名古屋大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：70207653