

令和元年6月19日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03893

研究課題名(和文) 分子ガスを用いた大気圧長尺マイクロ波プラズマによる幅広ラジカル生成とその応用展開

研究課題名(英文) Wide range radical production by atmospheric pressure microwave plasma with molecular gas and applications

研究代表者

豊田 浩孝 (Toyoda, Hirotaka)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：70207653

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：マイクロ波帯の電磁波を利用したプラズマ生成は、産業分野での応用が広がっている。本研究は、マイクロ波進行方向を制御することにより、メートル長の長尺スロット内においてメートル長の分子ガス長尺プラズマを生成することを目的とする。その結果、50cm長の100%分子ガスプラズマ生成に成功した。この成果により、さまざまな大面積表面の化学修飾プロセスの実現が可能となる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、従来より非常に困難であった大面積大気圧プラズマ処理技術を実現するものであり、本研究の成果により、高密度マイクロ波プラズマを用いて分子ガスプラズマ処理の実現を可能とする道筋が描かれた。この成果は今後の様々な電子デバイス製造プロセス分野などでの製造プロセスに革新をもたらす重要な成果と考えている。

研究成果の概要(英文)：Microwave plasmas have been used in various industrial areas. In this study, meter-length microwave atmospheric pressure plasma inside meter-length slot was studied, especially focusing on the discharge using molecular gases. Through this study, 50cm pure N₂ plasma was successfully produced. This result strongly suggests application of this plasma source for various surface modification in large area.

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 マイクロ波プラズマ プラズマ加工

1. 研究開始当初の背景

マイクロ波帯の電磁波を利用したプラズマ生成は、減圧プラズマから大気圧プラズマまで様々な圧力領域での研究が進められており、また産業分野での応用も広がっている。本研究代表者は、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とすることにより、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ている。

2. 研究の目的

一次元長尺高密度大気圧プラズマという特徴から、本装置は幅広の高密度大気圧ラジカル源として利用可能であり、さまざまな応用への可能性が高まっている。しかしながら、現段階では100%分子ガスにおいてはプラズマ長が20cm程度であり、十分ではない。そこで、本研究では本プラズマ源のさまざまなプロセスへの応用展開をめざして分子ガス長尺プラズマ生成とラジカル計測、さらにその応用を目的として研究をおこなった。

3. 研究の方法

上記目的1)については、分子ガスを用いた放電を維持するためには、プラズマ生成部のスロット電界の強度を向上させる必要がある。そこで、電磁界シミュレーションを用いて導波管構造の検討をおこない、分子ガスでも適用可能な導波管の最適化をおこなった。そのうえで、導波管を製作し、プラズマの発光空間分布およびプラズマ密度空間分布計測などを通してプラズマ分布を評価した。

上記目的2)については、小型のマイクロ波プラズマ装置を用いた成膜実験を試みた。残念ながら、大気圧環境でのSiO₂膜形成には至らなかったが、比較的低真空(15Torr)でのSiO₂実験をおこない、膜特性の評価をおこなった。

上記目的3)については、ラジカルの空間分布計測をおこない、その均一性の評価をおこなった。

4. 研究成果

4-1 導波管構造の最適化

スロット励起マイクロ波プラズマは、導波管内壁面を流れる電流を横切るようにスロットを配置し、スロット内を流れる変位電流により発生する強電界を用いてプラズマを生成する。そのためスロットを横切る表面電流の電流密度を高めることで、より強い電界が発生し効率的なプラズマ生成が可能となる。本研究では、導波管断面を非対称構造とする方を提案し、シミュレーションにより最適化をおこなうとともに、それを基にプラズマ生成をおこなったところ、N₂ガスにおいて50cm長のプラズマ生成に成功した。また、SiO₂成膜をTEOSガスを用いて試みたところ、低真空環境下ではあるが、100nm/s以上の高速プラズマCVDができ、240という高基板温度条件下においても約40nm/sと比較的高速に成膜できることを確認した。

また、ArガスにO₂を添加し、真空紫外吸収分光装置を用いてラジカルの空間分布計測を試みた。本測定より長尺方向に対してほぼ均一のラジカル密度が得られていることが確認された。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

- 1) 豊田浩孝、鈴木陽香, 大気圧マイクロ波放電による高密度長尺ラインプラズマ、応用物理, **88 (2019) 101-104.**
- 2) **Kensuke Sasai, Kazuki Keyamura, Haruka Suzuki, and Hiroataka Toyoda, Production of atmospheric pressure microwave plasma with dielectric half-mirror resonator and its application to polymer surface treatment, Japanese Journal of Applied Physics, 57 (2018), pp.066201-1-4.**
- 3) **Hikaru Senba, Haruka Suzuki and Hiroataka Toyoda, Atmospheric pressure water-vapor plasma in an air-shielded environment by water flow, Japanese Journal of Applied Physics, 58 (2018) pp. SAAC05-1-5.**
- 4) Haruka Suzuki and Hiroataka Toyoda, **An approach to line-shaped nitrogen plasma production at atmospheric pressure by slot-excited microwave discharge, Japanese Journal of Applied Physics, 56 (2017) 116001-1-4.**

〔学会発表〕(計 46 件)

- 1) 豊田 浩孝, 長尺大気圧マイクロ波プラズマ生成と表面処理の応用, 表面技術協会 第 139 回講演大会, (招待講演)(2019).
- 2) 鈴木陽香, 豊田浩孝, スロット励起マイクロ波プラズマを用いた水蒸気プラズマ処理プロセス, 第 28 回 日本 MRS 年次大会, (招待講演)(2018).
- 3) 鈴木陽香, 新規大気圧マイクロ波プラズマ源の開発と応用, 高機能トライボ表面プロセス部会 第 12 回例会「トライボロジーと表面技術」, (招待講演)(2018).
- 4) 鈴木陽香, 豊田浩孝, 大気圧下でのメートル級マイクロ波プラズマの生成と応用, プラズマ核融合学会 第 35 回年会, (招待講演)(2018).
- 5) BAE Hansin, 小池洋右, 小間浩嗣, 鈴木陽香, 豊田浩孝, 大気圧マイクロ波ラインプラズマにおける酸素原子の紫外吸収分光計測, プラズマ核融合学会 第 35 回年会 (2018).
- 6) Shota Ishikawa, Haruka Suzuki, Tsuyoshi Honda and Hiroataka Toyoda, High speed photoresist removal using slot-excited atmospheric-pressure microwave O₂/CF₄ plasma, The 40th International Symposium on Dry Process (2018).
- 7) Hiroataka Toyoda, Yoshiki Baba, Haruka Suzuki, Observation of cross sectional plasma structure in a gap of an atmospheric pressure microwave discharge, 71st Annual Gaseous Electronics Conference, (2018).
- 8) Ivan Ganachev, Haruka Suzuki, and Hiroataka Toyoda, Scaling of Microwave Absorption in Atmospheric Pressure Microwave Line Plasma, The Eighteenth Biennial IEEE Conference on Electromagnetic Field Computation (2018).
- 9) H. Toyoda, Meter-scale atmospheric pressure microwave line plasma and its applications Xth INTERNATIONAL WORKSHOP on MICROWAVE DISCHARGES: Fundamentals and Applications, (招待講演)(2018).
- 10) H. Toyoda, H. Suzuki, Y. Koike, H. Koma, Y. Baba, J.H. Qiu, M.H. Chu, A. Sugiyama, Long-scale atmospheric-pressure microwave plasma-production mechanism and its application-, JAPAN-RUB Workshop on Plasma Science, (招待講演)(2018).

- 11) Hiroataka Toyoda , Meter-scale atmospheric-pressure microwave plasma for molecular gas processes , 19th International Congress on Plasma Physics ,(招待講演)(2018).
- 12) 小池 洋右, 田村 宥人, 鈴木 陽香, 豊田 浩孝, 大気圧長尺マイクロ波プラズマにおける電力吸収の空間分布, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会講演, (2018).
- 13) Yosuke Koike, Haruka Suzuki, Yuto Tamura, Yoshiki Baba and Hiroataka Toyoda, Space-Resolved Measurement of Microwave Power along Waveguide in Atmospheric Pressure Microwave Line Plasma, ISPlasma2018 / IC-PLANTS2018 (2018).
- 14) Haruka Suzuki, Yosuke Koike, Yuto Tamura, Yoshiki Baba and Hiroataka Toyoda, Power Absorption Mechanism of Atmospheric-Pressure Microwave Line Plasma, ISPlasma2018 / IC-PLANTS2018 (2018).
- 15) 鈴木 陽香, 大面積かつ高速表面処理のための大気圧プラズマ装置開発, 最先端プラズマプロセス: 未来への挑戦 -産官学連携による新たなイノベーション- (招待講演) (2018).
- 16) Hiroataka Toyoda, Development of Microwave Plasma Sources and its Application to Materials Processing, 27th Annual Meeting of MRS-Japan 2017, (2017).
- 17) 石川 翔太, 鈴木 陽香, 豊田 浩孝, 大気圧マイクロ波プラズマ CVD による SiO₂ 膜形成及び膜評価, Plasma Conference 2017 (2017).
- 18) 小池 洋右, 田村 宥人, 鈴木 陽香, 豊田 浩孝, 電磁界シミュレーションを用いた大気圧マイクロ波ラインプラズマの均一性向上の検討, Plasma Conference 2017 (2017).
- 19) H. Suzuki, Y. Koike, Y. Tamura, Y. Baba, and H. Toyoda, Power Absorption Mechanism of Atmospheric Microwave Line Plasma, Dry Process Sympo. 2017, (2017).
- 20) HIROTAKA TOYODA, HARUKA SUZUKI, YUTO TAMURA, YOSUKE KOIKE, YOSHIKI BABA, Power absorption of atmospheric-pressure microwave-line-plasma, Gaseous Electronics Conf. 2017, (2017).
- 21) Hiroataka Toyoda, Production of long-scale atmospheric pressure microwave plasma, AAPPs-DPP2017 (招待講演) (2017).
- 22) 石川 翔太, 鈴木 陽香, 豊田 浩孝, スロット励起大気圧マイクロ波プラズマ CVD による SiO₂ 薄膜形成, 平成 29 年度電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会 (2017).
- 23) 田村 宥人, 小池 洋右, 鈴木 陽香, 豊田 浩孝, 大気圧マイクロ波ラインプラズマにおける電力吸収機構, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, (2017)
- 24) 鈴木 陽香, 小池 洋右, 田村 宥人, 馬場 賀己, 豊田 浩孝, スロット励起大気圧マイクロ波プラズマの電力消費に関する電磁界シミュレーション, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, (2017).
- 25) H. Suzuki, Y. Tamura, Y. Inomata, and H. Toyoda, Meter -scale microwave plasma production with various discharge gases for large-area surface treatment under atmospheric pressure, IUMRS-ICAM 2017 (招待講演) (2017).
- 26) S. Ishikawa, M. Yamamoto, H. Suzuki, and H. Toyoda, Improvement of SiO₂ film properties synthesized by plasma-enhanced chemical vapor deposition using

- slot-type microwave plasma with $O_2/TEOS$, IUMRS-ICAM 2017, (2017).
- 27) 鈴木 陽香, 高速表面処理に向けた新しい大気圧プラズマ源の開発, プラズマ材料科学 153 委員会 30 周年記念講演会 (招待講演) (2017).
 - 28) H. Suzuki, Y. Tamura, Y. Inomata, and H. Toyoda, Optical measurement of meter-scale microwave line plasma under atmospheric pressure, Int. Conf. Phenomena on Ionized Gas 2017 (2017).
 - 29) H. Suzuki and H. Toyoda, Microwave plasma production inside the micro-gap with meter-gap with meter -scale length, Int. Workshop on Microwave Plasma 2017 (招待講演) (2017).
 - 30) H. Suzuki and H. Toyoda, Development of atmospheric pressure microwave plasma source for large-area surface treatment, The 22th KJ workshop, (2017).
 - 31) 鈴木陽香, 田村宥人, 猪俣弥雄起, 関根誠, 堀勝, 豊田浩孝, マイクロ波励起メートル級大気圧プラズマの生成とその特性, 第64回応用物理学会春季学術講演会 (2017).
 - 32) 田村 宥人, 猪俣 弥雄起, 鈴木 陽香, 豊田 浩孝, マイクロ波励起長尺大気圧プラズマにおけるプラズマ維持機構の検討, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会 (2017).
 - 33) Masaki Yamamoto, Shota Ishikawa, Haruka Suzuki, and Hiroataka Toyoda, Film quality improvement in slot-type microwave plasma CVD of SiO_2 , 9th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials/10th International Conference on Plasma Nano-Technology & Science, (2017).
 - 34) Haruka Suzuki, Yuto Tamura, Yaoki Inomata, Hitoshi Itoh, Makoto Sekine, Masaru Hori, and Hiroataka Toyoda, Long-scale N_2 line plasma production under atmospheric pressure, 9th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials/10th International Conference on Plasma Nano-Technology & Science, (2017).
 - 35) Hiroataka Toyoda, Introduction to Plasma Production - from Breakdown to Plasma Sustainment, 9th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials/10th International Conference on Plasma Nano-Technology & Science (招待講演), (2017).
 - 36) 鈴木 陽香, 田村 宥人, 猪俣 弥雄起, 伊藤 仁, 関根 誠, 堀 勝, 豊田 浩孝, 改良導波管および連続発振マイクロ波電力によるメートル級長尺大気圧ラインプラズマの効率的生成, 第 34 回プラズマプロセッシング研究会 / 第 29 回プラズマ材料科学シンポジウム (2017).
 - 37) 田村 宥人, 鈴木 陽香, 猪俣 弥雄起, 伊藤 仁, 関根 誠, 堀 勝, 豊田 浩孝, 長尺ラインプラズマ生成のための改良型導波管の電磁界シミュレーション, 第34回プラズマプロセッシング研究会 / 第 29 回プラズマ材料科学シンポジウム (2017).
 - 38) 豊田 浩孝, 大気圧高密度マイクロ波プラズマの生成とその応用, 2016 年真空・表面科学合同講演会 (招待講演), (2016).
 - 39) Haruka Suzuki, Masaki Yamamoto, and Hiroataka Toyoda, Plasma -enhanced chemical vapor deposition of SiO_2 films by slot type microwave plasma with $O_2/TEOS$, The

38th International Symposium on Dry Process (2016).

- 40) HARUKA SUZUKI, YUTO TAMURA, HITOSHI ITOH, MAKOTO SEKINE, MASARU HORI, HIROTAKA TOYODA, 100% N2 atmospheric-pressure microwave-line-plasma production with a modified waveguide structure, 69th Annual Gaseous Electronics Conference (2016).
- 41) HIROTAKA TOYODA, MASAKI YAMAMOTO, HARUKA SUZUKI, High speed deposition of SiO₂ film by slot-type microwave CVD system, 69th Annual Gaseous Electronics Conference (2016).
- 42) Hiroataka Toyoda, Development of microwave plasma sources and its applications, The 6th International Conference on Microelectronics and Plasma Technology (招待講演), (2016).
- 43) 山本 匡毅、鈴木 陽香、豊田 浩孝, 02/TEOS スロット型マイクロ波プラズマ CVD による SiO₂ 膜形成, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, (2016).
- 44) 鈴木陽香, 田村 宥人, 伊藤 仁, 関根 誠, 堀 勝, 豊田浩孝, 改良型導波管構造によるマイクロ波励起純窒素大気圧ラインプラズマの生成, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, (2016).
- 45) 田村 宥人, 鈴木 陽香, 伊藤 仁, 関根 誠, 堀 勝, 豊田 浩孝, 窒素ガスを用いたマイクロ波大気圧ラインプラズマの生成, 平成 28 年度電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会, (2016).
- 46) H. Suzuki, H. Ito, M. Sekine, M.Hori and H. Toyoda, High-speed camera observation of plasma behavior in atmospheric pressure microwave line plasma, 7th Int. Workshop on Plasma Spectroscopy, (2016).

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名: 鈴木陽香

ローマ字氏名: **SUZUKI Haruka**

所属研究機関名: 名古屋大学

部局名: 工学研究科

職名: 助教

研究者番号(8桁): **80779356**

(2) 研究協力者

研究協力者氏名: 田村 宥人, 山本 匡毅, 猪俣 弥雄起, 小池 洋右, 馬場 賀己, 石川 翔太

ローマ字氏名: Tamura Yuto, Yamamoto Masaki, Inomata Yaoki, Koike Yusuke, Baba Hi roki, Ishikawa Shota