

# 方形導波管を用いたマイクロ波大気圧ラインプラズマ生成

## Line-Shaped Microwave Plasma System with Rectangular Slotted Waveguide at Atmospheric Pressure

酒井 泰二 技術開発本部基盤技術研究所応用理学研究部 博士(工学)

原 正一 技術開発本部基盤技術研究所応用理学研究部 課長

上松 和夫 技術開発本部 主席技監 工学博士

大気圧下において、2.45 GHz のマイクロ波を用いたライン状プラズマ生成の実証を試みた。プラズマ生成には、マイクロ波導波管にスロットを設け、そのスロットから放射される漏えい波を利用した。スロット部に挿入される誘電体の形状や種類に着目し、試験的に検証することでライン状プラズマ生成を実証した。さらに、生成したマイクロ波プラズマはポリカーボネート(PC)を親水化可能であることが分かった。

Line-shaped plasmas are generated with a slotted waveguide at 2.45 GHz at atmospheric pressure. Dielectric sheets are used to decrease the ignition threshold of plasma. The dependence of the plasma ignition threshold on permittivity was confirmed by measurement. Then, ignition tests were performed in which the experimental conditions were modified based on measurement results until long line-shaped plasma was generated. An experiment in which polycarbonate (PC) was exposed to plasma was performed and water contact angle measurement results confirmed that the generated plasma is effective for surface modification.

## 1. 緒 言

高分子材料の表面改質<sup>(1)~(3)</sup>や半導体基板などのエッチング、CVD (Chemical Vapor Deposition: 化学気相蒸着)などに用いられるプラズマ処理技術において、大面積にわたる処理や、その均一性向上、ワークに対するダメージ低減が従来から要求されている。特に表面改質における処理では大気圧下で処理が可能になると真空ポンプなどの高価な装置が必要なくなり、さまざまな産業分野での適用が期待される。

大気圧下におけるプラズマ処理には、コロナ放電やバリア放電などを用いた手法が提案されており、これらのプラズマ源をライン状に並べ、Roll to Roll (ロール状に巻いた基材を送り出して、基材の表面に処理を行った後、再び別のロールに巻き取り、回収する生産方式)などによって大面積のプラズマ処理が実用化されている。しかし、これらの手法では生成されたプラズマは局在化し、さらに電極がダメージを受け劣化してしまうという問題が生じている。

一方、マイクロ波を用いたプラズマ生成では電極を使用しないため、上述のような電極劣化の問題が生じることはない。また、マイクロ波によって生成されたプラズマは、高密度と低粒子温度という二つの特性を併せもち、処理能

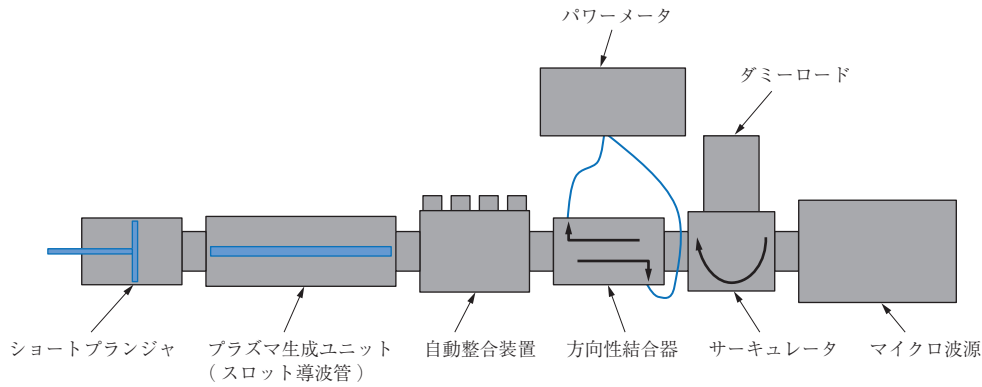
力が高く、被処理物へのダメージが少ないことが期待される<sup>(4)</sup>。このマイクロ波によって生成されたプラズマを用いた大面積処理技術として、マイクロ波を伝搬させる導波管にスロットを設け、生成されるプラズマをライン状にする手法が報告されている<sup>(5)~(7)</sup>。しかし、この報告では、低圧下を条件としたプラズマ生成にとどまっている。

一般的に高圧下であるほどプラズマ生成に要するマイクロ波の電界強度( $\propto\sqrt{\text{電力}}$ )は大きくなる。そのため、大気圧下でマイクロ波を用いたプラズマ生成を試みる場合、高出力なマイクロ波電源が必要になり、その結果、処理装置の大型化、高コスト化を招くことになる。これを避けるためには、小さい電力での大気圧下におけるマイクロ波によるプラズマ生成が必要になる。

本稿では、大気圧下でのプラズマ生成を目的として、入力電力の低減および電界強度の増加を狙い、ガス流路の工夫や、マイクロ波伝搬用導波管内に配置する誘電体の材質やサイズを対象としたプラズマ生成条件に関する検討を行い、マイクロ波を用いたラインプラズマ生成を試みた。また、生成したプラズマを用い、高分子材料の表面改質の一つである親水化の付与について評価した。

## 2. 実験装置構成

マイクロ波プラズマ生成システムの概要を第1図に示

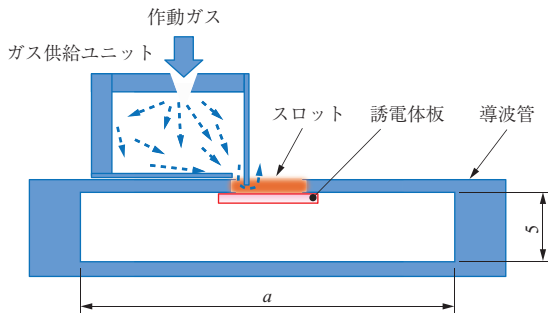


第 1 図 マイクロ波プラズマ生成システム  
 Fig. 1 Schematic illustration of experimental setup employed for generating microwave line plasma

す。最大出力 1 kW の電源から出力された 2.45 GHz のマイクロ波はアイソレータ、自動整合装置およびプラズマ生成ユニットを伝搬し、ショートプランジヤによって反射され、自動整合装置の方へ戻り、定在波を形成する。このときショートプランジヤの位置を調整することで定在波の腹および節の位置を微調整することが可能である。自動整合装置は、プラズマ生成ユニットの導波管寸法の変化や、誘電体の挿入によって生じるインピーダンスの不整合を調整することでマイクロ波の反射を抑制し、プラズマ生成ユニット以降へマイクロ波電力を投入している。プラズマ生成ユニットへの入出力パワーは、方向性結合器に接続された電力計によって計測される。システムを接続する導波管のサイズは、プラズマ生成ユニットを除きすべて標準規格 (WRI-22, WRT-2) を採用した。

### 3. プラズマ生成ユニットの基本指針

導波管内を伝搬するマイクロ波の基本伝搬モードは TE<sub>10</sub> モードである。導波管断面では、TE<sub>10</sub> モードの電界は両端壁面で電界が 0、中央部で最大になる。プラズマ生成ユニットではこの電界が強くなる導波管中央部に第 2 図に示すようなスロット (長さ 410 mm, 幅 3 mm) を設



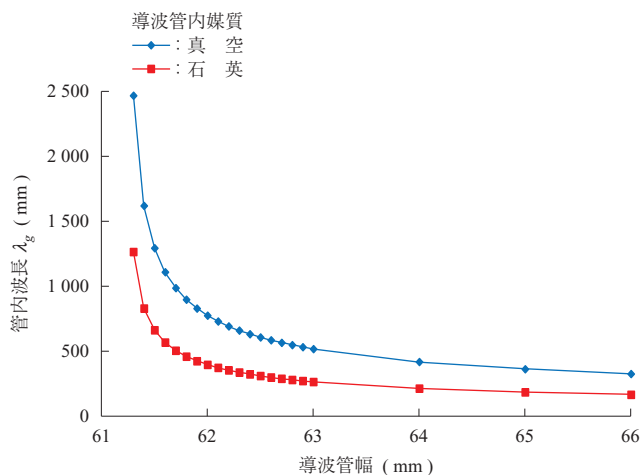
第 2 図 プラズマ生成ユニット断面 (単位: mm)  
 Fig. 2 Cross section of waveguide (unit: mm)

けた。このスロット位置に定在波を発生させて、導波管内を伝搬するマイクロ波電力の一部をプラズマ生成に利用する。導波管に設けられたスロットは誘電体板によって内側からふさがれている。そして、作動ガスがガス供給ユニットによって導波管の外側からスロット部に吹き付けられ、スロットから放射するマイクロ波電力によってプラズマが生成される。このとき、大気圧下でプラズマを生成するため、ガスの吹き出し口をスロット壁に隣接させ、電界強度の大きいスロットの底面が確実にガス流路の一部となるようにした。また導波管内の導波路の高さは、伝搬するマイクロ波の電界強度を強めるため、一般的な導波管の規格よりも高さを低く 5 mm にした。

方形導波管内の TE<sub>10</sub> モードの波長は (1) 式で表される。プラズマは、電界強度が大きい定在波の腹を中心に生成され、電界強度が小さい節の付近では着火しない。したがって、生成されるプラズマの長さは管内波長  $\lambda_g$  の半波長 (定在波の波長) より短くなる。(1) 式から導出される導波管内媒質が真空 (比誘電率: 1) および石英 (比誘電率: 3.8) の場合の、2.45 GHz のマイクロ波の管内波長  $\lambda_g$  を第 3 図に示す。(1) 式および第 3 図から導波管内の媒質の比誘電率が大きいほど管内波長が短くなることから、所定の導波管幅において、より長いプラズマ領域を得るためには、導波管内に挿入する誘電体の材質を比誘電率の低いものにする必要がある。

$$\lambda_g = \frac{\lambda}{\sqrt{\epsilon_r \mu_r} \sqrt{1 - (\lambda/2a)^2}} \dots\dots\dots (1)$$

- $\lambda_g$  : 導波管内の管内波長
- $\lambda$  : 真空中の波長
- $a$  : 導波管の導波路幅
- $\epsilon_r$  : 導波管内媒質の比誘電率
- $\mu_r$  : 導波管内媒質の比透磁率



第 3 図 2.45 GHz の管内波長

Fig. 3 Calculated wavelength ( $\lambda_g$ ) in the waveguide at 2.45 GHz

## 4. ラインプラズマ生成試験

### 4.1 ラインプラズマ生成実証試験

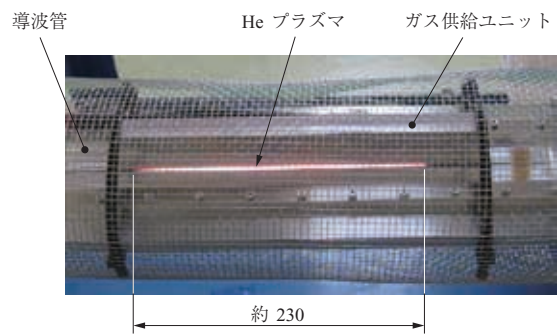
前述の設計指針を踏まえ、はじめに He（ヘリウム）ガスを用いたラインプラズマ生成の実証試験を行った。導波管内の定在波が真空中の管内波長により近くなるように、管内に配置する誘電体として、その影響を避けるために比誘電率の小さな石英を選択した。また管内波長は誘電体の比誘電率だけでなく、導波管断面積に占める誘電体の割合にも左右され、可能な限り誘電体の割合を少なくすることで、何も挿入しない状態に近づけることが可能になる。

このことから、石英の断面積を極力小さくし、寸法を長さ 410 mm、幅 5 mm、厚さ 0.5 mm とした。また、導波管の幅は 410 mm のスロットより定在波長が長くなるよう 61.25 mm とした。プラズマ生成試験は、最初にマイクロ波源の電源投入後、自動整合装置の調整によって反射波が低減されたのを確認した後に He ガスを投入する手順で行った。

第 4 図に生成した He プラズマを示す。この実証試験の結果、750 W の入力電力でプラズマが着火し、約 230 mm の He ラインプラズマの生成に成功した。第 4 図に示されるラインプラズマは両端付近の発光が弱くなっている。これは前述のように定在波の電界強度は正弦波分布となっているため、定在波の腹から離れるほど電界強度が弱まるためである。

### 4.2 誘電体の厚みおよび比誘電率と導波管内電界強度

前述のラインプラズマの生成試験では、導波管内のマイクロ波電磁界への影響を避けるため、厚さ 0.5 mm の石英を用いた。その条件では、プラズマ着火に要する電界強



第 4 図 He ラインプラズマ (単位: mm)

Fig. 4 He line-plasma (unit: mm)

度は大きく、1 kW の電源出力では He ガスによるプラズマ生成が限界である。産業への応用を考慮すると、目的に応じたさまざまな作動ガスでプラズマ生成できることが望ましい。しかし、それらは He ガスよりも着火に要する電界強度が大きく、スロット部にはより大きな電界強度が求められる。

導波管内に配置される誘電体厚みとその比誘電率が電界強度にどのように寄与するか把握するため、第 5 図に示す平行金属平板と誘電体板で構成される簡易モデルを用いて、誘電体を配置する前後の電界強度比を算出した。ここでは平行金属平板を導波管並行の上下壁と仮定している。(2) 式および第 6 図に、誘電体を配置する前後で金属平板間の電位差が変化しないと仮定したときの電界強度比を示す。この関係から比誘電率が大きく、厚みのある誘電体ほど、金属平板と誘電体の間で大きい電界強度を得ることが期待される。

$$\frac{E}{E_i} = \frac{\epsilon_r b}{\epsilon_r b - (1 - \epsilon_r) d} \quad \dots \dots \dots (2)$$

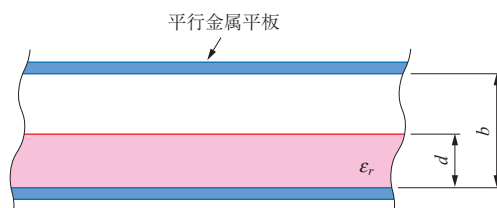
$E$  : 誘電体配置時の電界強度

$E_i$  : 誘電体非配置時の電界強度

$\epsilon_r$  : 誘電体の比誘電率

$b$  : 導波管の高さ

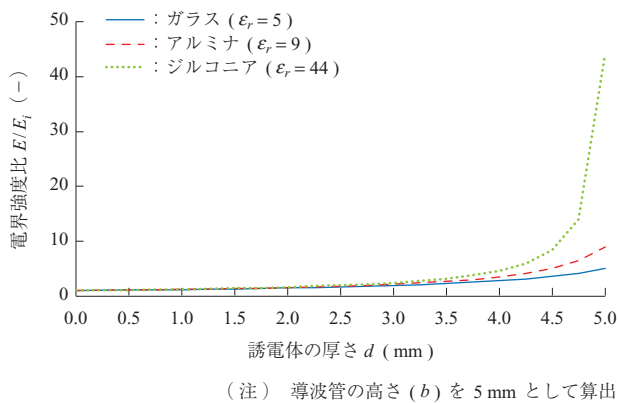
$d$  : 誘電体の厚さ



(注)  $b$  : 導波管の高さ  
 $d$  : 誘電体の厚さ  
 $\epsilon_r$  : 誘電体の比誘電率

第 5 図 簡易計算モデル

Fig. 5 One dimensional calculation model



第 6 図 誘電体の厚さと電界強度  
Fig. 6 Dependence of electrical field intensity on thickness

### 4.3 誘電体の種類と着火しきい値

(2) 式から得られる電界強度と誘電体の関係は、簡易モデルから導かれたものであり、誘電体を導波管に挿入したことによる高次モードの発生や、それに伴う損失の増加など、高周波特有の影響は考慮されていない。したがって、誘電体の導波管内挿入に伴う電界強度の増加を検証するには詳細な数値解析を実施するか、実験的な検討が必要になる。

本稿では、プラズマ生成ユニット内に配置される誘電体とプラズマ着火しきい値の関係を明確にするため、第 1 表に示す比誘電率の異なる 5 種類の誘電体を用いたプラズマ着火試験を実施した。計測結果を第 7 図に示す。なお、誘電体の寸法は、形状による影響を避けるため、すべて長さ 400 mm、幅 10 mm、厚さ 1 mm とした。

第 7 図が示す結果から、誘電体の比誘電率が大きいほどプラズマ着火に必要な入力電力を低減することが確認できる。

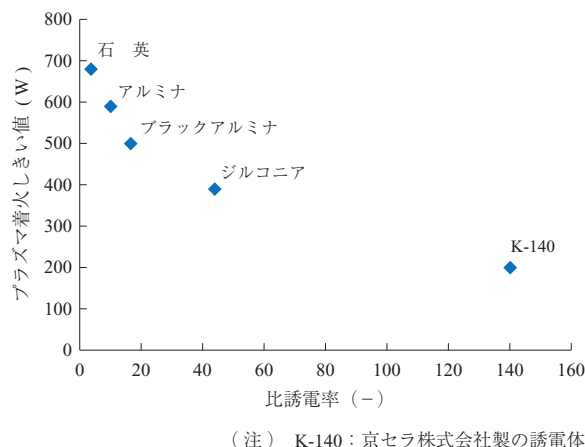
### 4.4 Ar (アルゴン) ガスラインプラズマ生成実証試験

(2) 式および第 7 図の結果から、誘電体の厚さを 5 mm とし、He よりも着火しきい値の高い Ar ガスプラズマの生成を試みた。誘電体には、比誘電率の異なる三つの材質、石英ガラス (長さ 410 mm、幅 30 mm、厚さ

第 1 表 導波管内部に挿入した誘電体

Table 1 Dielectric sheets used to measure the dependence of plasma ignition on permittivity

誘電体名称	比誘電率	販売元	型番
石英	3.8	-	-
アルミナ	10.2	アスザック株式会社	AR-99.6
ブラックアルミナ	16.7	アスザック株式会社	AR(B)
ジルコニア	44	アスザック株式会社	AZI
K-140	140	京セラ株式会社	K-140

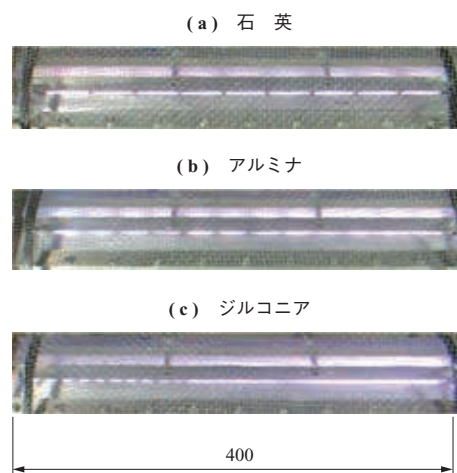


第 7 図 比誘電率と He プラズマ着火しきい値  
Fig. 7 Permittivity dependence of He microwave plasma ignition threshold

5 mm)、アルミナおよびジルコニア (長さ 410 mm、幅 10 mm、厚さ 5 mm) を採用した。

試験の結果、幅の寸法は異なるがいずれの誘電体を用いた場合も Ar プラズマの着火に成功した。第 8 図に生成した Ar プラズマを示す。プラズマ生成領域全体では 4.1 節で示した 0.5 mm 厚の石英をスロット部に配置したときの He ラインプラズマよりも長い約 400 mm の破線状のラインプラズマが生成された。生成されたプラズマが破線状になったのは誘電体が厚みを持ち、比誘電率が大きいことに起因して伝搬するマイクロ波の波長が短くなるためである。

これに対しては、(1) 式の関係から、導波管の幅 a を狭めて管内波長を伸ばすことでプラズマ長を制御することが可能と考える。また、第 2 表にそれぞれの誘電率を用いた場合の Ar プラズマの着火に要した入力電力を示す。



第 8 図 Ar ラインプラズマ (単位: mm)  
Fig. 8 Ar line plasma (unit: mm)



第 2 表 誘電体と Ar プラズマ着火しきい値の関係  
Table 2 Ignition threshold of Ar plasma

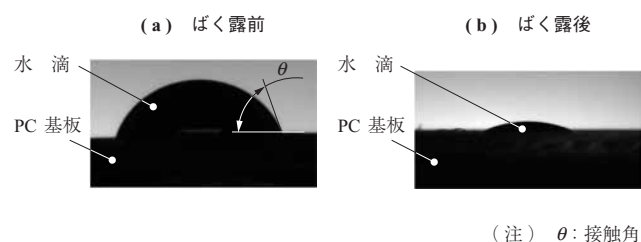
	石 英	アルミナ	ジルコニア
着火しきい値 (W)	850	350	170

比誘電率が大きいほど着火しきい値が低下している。また、Ar ガスは He よりも着火しきい値が高いが、誘電体厚みを 5 mm にしたことで、前述の第 7 図に示すしきい値よりも低い入力電力で着火している。また、アルミナや特にジルコニアの場合、入力側（第 8 図右側）が強く光っている。これは、前述のように導波管内の誘電体の比誘電率が大きいほど波長が短くなることで、管内での壁面での反射が増え、管内を伝搬する電波の進行する距離が増加し、その結果として伝搬損失が増加するためと考えられる。

### 5. 表面処理効果の確認

産業応用への適用可能性を検討するため、生成したマイクロ波プラズマによる高分子材料の表面改質の効果について試験的に検証した。本稿では、表面改質の一例として、ラベル印刷の前処理などにも用いられるプラスチック材の親水化を対象とした。表面処理を施す試験体には、厚さ 2 mm のポリカーボネート (PC) 基板を使用した。PC の親水化<sup>(8)</sup>は、ラジカル化した酸素によって基板に OH 基が付加されることに起因すると考えられる。そのため、作動ガスとして O<sub>2</sub> を 1% 混合した Ar ガスを用いてプラズマ生成し、基板表面に吹き付けた。表面改質による親水化の効果は、水滴の接触角を計測し評価した。

第 9 図にプラズマばく露による PC 基板の親水化のようすを示す。PC 基板表面に滴下した水滴の接触角は、処理前は約 80 度であったのに対し、処理後では約 30 度であった。このことによりマイクロ波によって生成されたプラズマによって親水性を付与できることを確認した。



第 9 図 表面改質による親水化  
Fig. 9 Efficient surface modification

## 6. 結 言

大気圧下におけるマイクロ波を用いたラインプラズマの生成を目的として、作動ガス流路の工夫や導波管内部に挿入する誘電体の材質や寸法に着目し検討を行った。その結果、厚さ 0.5 mm のガラス板を用いることで約 230 mm の He ラインプラズマの生成に成功した。さらに、比誘電率とプラズマ着火しきい値の関係を明らかにし、厚さ 5 mm の誘電体を用いることでプラズマ着火しきい値の大きい Ar ガスを用いた場合でも約 400 mm のマルチラインプラズマの生成に成功した。また、O<sub>2</sub> 混合ガスを用いたプラズマでは PC 基板表面に親水性をもたせることに成功し、産業応用への可能性を見いだした。

また、本検討ではプラズマの安定生成や長時間運用、表面改質処理速度や均一性など実用面での詳細な課題について検討をしていない。これらについてはシステムの改善を行い、今後も検討を進めていく。

### — 謝 辞 —

本研究の遂行に当たり、東海大学情報理工学部、進藤春雄教授から、多くのご助言とご協力をいただきました。ここに記し、深く感謝いたします。

### 参 考 文 献

- (1) M. Nagatsu, A. Ito, N. Toyoda and H. Sugai : Characteristics of Ultrahigh-Frequency Surface-Wave Plasmas Excited at 915 MHz Japanese Journal of Applied Physics Vol. 38 (1999. 6) pp. 679 - 682
- (2) D. Korzec, M. Mildner, F. Hillemann and J. Engemann : 70 cm radio frequency hollow cathode plasma source for modification of foils and membranes Surface & Coatings Technology Vol. 97 No. 1 - 3 (1997. 12) pp. 759 - 767
- (3) M. Kaiser, K. -M. Baumgärtner, A. Schulz, M. Walker and E. Räuchle : Linearly extended plasma source for large-scale applications Surface & Coatings Technology Vol. 116 - 119 (1999. 9) pp. 552 - 557
- (4) M. Umeno and S. Adhikary : Diamond-Like Carbon Thin Films by Microwave Surface-Wave Plasma CVD Aimed for the Application of Photovoltaic

- Solar Cells    Diamond and Related Materials  
Vol. 14 No. 11 - 12 ( 2005. 9 )    pp. 1 973 -  
1 979
- ( 5 ) T. Fukasawa, S. Fujii and H. Shindo : Long Line-  
Shaped Microwave Plasma Generation Employing a  
Narrow Rectangular Waveguide    Japanese Journal  
of Applied Physics    Vol. 44 ( 2005. 4 )    pp. 1 945  
- 1 950
- ( 6 ) H. Shindo, Y. Kimura and M. Suzuki : Proceedings  
Gas Discharges    17th International Conference  
Cardiff, U. K. ( 2008 )    p. 417
- ( 7 ) Y. Kimura, H. Kawaguchi, S. Kagami, M.  
Furukawa and H. Shindo : A New Method of Line  
Plasma Production by Microwave in a Narrowed  
Rectangular Waveguide    Applied Physics Express  
Vol. 2 No. 12 ( 2009 )
- ( 8 ) J. Lai, B. Sunderland, J. Xue, S. Yan, W. Zhao,  
M. Folkard, B. D. Michael and Y. Wang : Study on  
hydrophilicity of polymer surfaces improved by plasma  
treatment    Applied Surface Science    Vol. 252  
No. 10 ( 2006. 3 )    pp. 3 375 - 3 379