

令和 元年 6 月 10 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04242

研究課題名(和文) 分子形態を制御したカーボンオニオンナノ砥粒による超精密ポリシングの高度化

研究課題名(英文) Development of ultra-precision polishing using carbon onion abrasives with controlled molecular shape

研究代表者

平田 敦 (Hirata, Atsushi)

東京工業大学・工学院・教授

研究者番号：50242277

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 10,400,000円

研究成果の概要(和文)：ナノカーボン粒子であるカーボンオニオンの形態を分子レベルで制御することで、ナノスケール砥粒としての超精密ポリシング機能の高度化を目指した。2500℃以上に加熱できる炉を作製し、これを用いた熱処理により球形、多角形、中空多角形のカーボンオニオン粒子を生成した。高荷重での研磨では分子形態による機能の違いは見られなかったが、低荷重では多角形で研磨速度が高いことがわかった。また、圧縮下でのカーボンオニオン粒子の挙動を分子動力学法により解析した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

カーボンオニオンはシリコン、石英、炭化ケイ素などに対して研磨能力を示し、最終面粗さが最大高さで数オングストロームにまで達することが明らかになった。また、スクラッチを残さずにポリシング面が原子数個分のレベルにまで平滑化されることもわかった。そして、分子形態を制御し、それに適した研磨条件を設定することで、研磨速度や最終面粗さなどの点でより高度化したポリシングが可能であること、カーボンオニオン粒子ひとつの圧縮挙動をシミュレーションできることを示した。

研究成果の概要(英文)：Development of the function of carbon onions as a nanoscale abrasive has been aimed by controlling its molecular shape. A furnace that can raise temperatures over 2,500 degree C was prepared, and spherical, polyhedral, and hollow polyhedral carbon onion nanoparticles were produced by heat treatment using the furnace. Although polishing experiments revealed that no obvious difference is found at higher load, polyhedral carbon onion achieves higher polishing rates at lower load. Moreover, molecular dynamics simulation was carried out to examine the behavior of carbon onion nanoparticles under compression.

研究分野：表面工学

キーワード：精密研磨 ナノ材料 機械工作・生産工学 材料加工・処理

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

カーボンオニオン(右図参照)はグラフェンシートから成るナノカーボン粒子であるが、グラファイトの平面層状構造とは異なり、グラフェンが球殻状に閉じた閉殻構造をしている。そのためカーボンオニオンの粒子としての機械的強度はカーボン原子の強固な結合に支配され、ダイヤモンドと同程度に高いと推測された。また、これらナノカーボン粒子間に働く力はグラフェンシート間にはたらく弱いファンデルワールス力が支配的になるため、ナノ粒子を砥粒として用いる際に問題となる凝集力が小さくなり、単一粒子に近い形での作用が期待された。そのため、相手材料の表面除去において加工単位を極めて小さくできると考えられた。さらにナノ粒子の擦過作用は極めてマイルドであることが推測され、ダメージフリーを目指したナノスケール砥粒として適用できる可能性が極めて高かった。



研究代表者らの実験的研究により、カーボンオニオンがシリコン、石英、炭化ケイ素などに対して研磨能力を示し、最終面粗さが最大高さで数オングストロームにまで達することが明らかになっていた。そのため、研磨メカニズムと密接に関連するカーボンオニオン粒子の形態、機械的性質について明かにすることで、さらなる高度化が期待できた。

2. 研究の目的

グラフェンが閉殻構造をなすナノカーボン粒子であるカーボンオニオンについて、分子レベルでの形態を制御して、ナノスケール砥粒としての超精密ポリシング機能の高度化を図り、その新たな学術創出を目的とする。物理的作用により原子レベルの平坦性とダメージフリーの加工面を実現し、低環境負荷、グリーンプロセスに寄与するナノ粒子援用ポリシング技術開発の基礎とする成果を得ることを目的とした。

3. 研究の方法

最高温度 2500°C 以上を実現する雰囲気調整型高周波加熱装置を製作し、分子形態・構造・粒径が多様なカーボンオニオンを多量に生成する技術を開発した。そして、カーボンオニオンスラリーにより各種材料のポリシング実験を行い、超精密ポリシング機能を検証・整理した。一方、基礎的なポリシングメカニズムについて検討するため、カーボンオニオン単一独立粒子の機械的特性を評価する走査型プローブ顕微鏡法とナノインデンテーション法を複合した圧縮試験法を開発するための一助として、分子動力学による解析を行うとともに、ポリシング面性状を評価した。研究は、同一研究室に所属の研究代表・分担・協力者により分担して推進した。

・分子形態・構造・粒径が多様なカーボンオニオンの多量生成技術の確立(研究代表者)

カーボンオニオンの生成法には、

- ・不活性雰囲気での熱処理法
- ・カーボンイオン注入法
- ・電子線照射法
- ・アーク放電法
- ・プラズマ CVD 法

が提案されている。そのうち数グラム単位以上での多量生成、生成物の形態制御・均質性などの観点では熱処理法が最も有望であり、この方法を選択した。熱処理法では、ナノダイヤモンド、カーボンブラックを原料として用い、原料粒子の加熱温度によってカーボンオニオンの分子形態がコア/シェル構造、球形、多角形、中空多角形構造などに変わることが知られていた。特に、中空多角形構造のカーボンオニオンを生成するには 2500°C 以上の高温が必要となるため、最高温度 2500°C 以上の不活性雰囲気中での加熱を実現するため、最高出力 15kW の高周波電源を用いた雰囲気調整炉を製作した。高周波電源は設備備品として購入した。また、安定して目標の高温を得るために、黒鉛るつぼの形状・寸法を規定するとともに、カーボンフェルトを用いた断熱構造に工夫を施した。

・カーボンオニオンの超精密ポリシング機能の基礎的特性の検討(研究代表者+研究協力者)

カーボンオニオンの生成

ナノダイヤモンド、さまざまな一次粒径のカーボンブラックを原料としてカーボンオニオンを生成する。この際、最高加熱温度を調整してカーボンオニオンの分子形態・構造を

変化させた。

カーボンオニオンスラリーの作製

生成したカーボンオニオンを純水中に超音波加振により分散させ、そのスラリーを作製する。カーボンオニオンの濃度が重要なパラメータとなる。このとき、カーボンオニオンの純粋中への分散性を評価した。

ポリシング実験

SiC、石英を主な工作物として、不織布やウレタンのパッドにスラリーを滴下してポリシング実験を行った。ポリシング実験には主に申請者所有の装置を用いた。

ポリシング面性状の詳細な観察・分析

・幾何学的形状

原子間力顕微鏡による幾何学的形状観察を行い、表面粗さ、スクラッチ生成の程度を評価し、カーボンオニオンの分子形態・構造との関係について考察した。

ポリシング速度の測定および高速化

実用上の立場から、表面粗さの時間変化を測定し、ポリシング速度について明らかにするとともに、高速化について検討した。

・走査型プローブ顕微鏡法/ナノインデンテーション法を複合した圧縮試験法によるカーボンオニオン単一独立粒子の機械的特性評価（研究分担者+研究協力者）

機械的な擦過作用を原理としたポリシングメカニズムを解明するには、砥粒と工作物の物理的相互作用が密接に関係するため、砥粒の硬さ、弾性挙動、破壊挙動など基礎的な機械的特性を把握する必要がある。そこで、カーボンオニオンの単一独立粒子に対して走査型プローブ顕微鏡法とナノインデンテーション法を複合した圧縮試験法を開発している。その一助として、分子動力学法によるカーボンオニオン粒子の圧縮挙動の解析を行った。

4. 研究成果

・平成 28 年度

グラフェンが閉殻構造をなすナノカーボン粒子であるカーボンオニオンについて、分子レベルでの形態を制御して、ナノスケール砥粒としての超精密ポリシング機能の高度化を図り、その新たな学術創出を目的とし、物理的作用により原子レベルの平坦性とダメージフリーの加工面を実現し、低環境負荷、グリーンプロセスに寄与するナノ粒子援用ポリシング技術開発の基礎とする成果を得ることを目指している。

平成 28 年度のひとつ目の課題として、分子形態・構造・粒径が多様なカーボンオニオンの多量生成技術の確立を検討した。カーボンオニオンの生成法として不活性雰囲気での熱処理法を選択した。熱処理法では、ナノダイヤモンド、カーボンブラックを原料として用いるが、原料粒子の加熱温度によってカーボンオニオンの分子形態がコア/シェル構造、球形、多角形、中空構造などに变化し、特に中空多角形構造のカーボンオニオンを生成するには 2500°C 以上の高温が必要となることから、最高温度 2500°C 以上の不活性雰囲気中での加熱を実現するため、最高出力 15kW の高周波電源を用いた雰囲気調整炉を製作した。高周波電源は設備備品として購入した。安定して目標の高温を得るための黒鉛るつぼの形状・寸法の規定、カーボンフェルトを用いた断熱構造の工夫を進めている。

ふたつ目の課題として、研究代表者ら所有の自公転平行平板型超精密研磨盤により実験的にカーボンオニオンの超精密ポリシング機能の基礎的特性の検討を行った。その結果、純水を用いたカーボンオニオンでは、濃度上昇とともに到達面あらさを維持したまま研磨速度が増加すること、硬質かつナノ粒子を保持しやすいパッドが高研磨効率に適すること、微細粒径のカーボンオニオンほど研磨速度が高いことを明らかにした。

・平成 29 年度

カーボンオニオンの超精密ポリシング作用の基礎的特性の検討を続けた。砥粒の突き出し量や切り込み深さが研磨速度に影響を及ぼすことから、ポリッシャの材質や砥粒の粒径、研磨圧力を最適化することにより研磨速度の向上を試みた。その結果、硬質かつ微細粒子を保持しやすいポリッシャがカーボンオニオンを用いた超精密研磨の研磨速度向上に適していることが分かった。さらに、砥粒径が微細であるほど研磨速度が速いことをあらためて明らかにした。また、研磨圧力によらず超精密研磨が可能であるが、研磨速度はほとんど変化しないことが分かった。次に、単位時間あたりの擦過距離を増やすために研磨機の回転速度を上昇させ研磨速度向上を試みた。その結果、回転速度によらず超精密研磨が可能であるが研磨速度はほとんど変化しなかった。また、超音波加振を援用する研磨機を作製し研磨を行ったが、研磨速度の増加を確認するには至らなかった。

砥粒の切り込み深さの増加により研磨速度を向上させるために、砥粒のキャリアとなる硬質粒子を添加したスラリーによる研磨を行った。砥粒となる原料粒径 5nm のカーボンオニオンに対し、粒径 200nm のシリカや原料粒径 18nm のカーボンオニオンを複合することで切り込み深さの増加を試みた。その結果、どちらのキャリア粒子を用いた場合でも、用いない場合に対し研磨速度の大きな違いはみられなかった。

さらに走査型プローブ顕微鏡法/ナノインデンテーション法を複合した圧縮試験法によるカーボンオニオン単一独立粒子の機械的特性評価を行うとともに、関連して分子動力学法にもとづいたモデル化に着手した。予備的な検討として、C60 フラーレンをダイヤモンド平面間で圧縮する過程を模擬した解析を行うとともに、多角形状のカーボンオニオン粒子のモデル化をした。

・平成 30 年度

カーボンオニオンの超精密ポリシング作用の基礎的特性の検討を続けた。生成温度に起因するカーボンオニオンの分子形状の差異が砥粒としての研磨特性にどのような影響を与えるのかを明らかにすることを目的とした。一次粒径がそれぞれ 5nm, 18nm のナノダイヤモンドとカーボンブラックを原料とし、2000 (球形), 2400 (多角形), 2800 (中空多角形)の計 6 種類のカーボンオニオンを生成した。ナノダイヤモンドから生成した 3 種類のカーボンオニオンを用いて石英ガラス, 単結晶 SiC, 単結晶シリコンに対して、カーボンブラックから生成した 3 種類のカーボンオニオンを用いて石英ガラスに対して研磨実験を行った。研磨特性を研磨速度・最終到達面粗さで評価した結果、10N の荷重では分子形状の差による研磨特性の大きな違いは見られず、5N では多角形のカーボンオニオンで最も研磨速度が高くなった。これは、高荷重ほど研磨中に圧縮状態にある粒子の変形が影響して、研磨特性が分子形状に依存しないと推察される。

また、走査型プローブ顕微鏡法/ナノインデンテーション法を複合した試験法によるカーボンオニオン単一独立粒子の圧縮挙動を評価するため、分子動力学法によるモデリング、解析も進めた。表面を酸素終端したダイヤモンド平板により上下からカーボンオニオンを挟み込むモデルとし、圧縮による変形の解析を行った。カーボンオニオン粒子モデルには経験的ポテンシャルとして Brenner ポテンシャルと LJ ポテンシャルの複合を用いた。以上の条件で計算した結果、カーボンオニオンの変形過程と荷重変位線図を得た。そして、実測と計算でスケールが大幅に異なるため、荷重変位線図において粒径で規格化することで比較を行った結果、実測値と計算値で大きな差はないことを明らかにした。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 7 件)

1. 齋藤雄介, 青野祐子, 平田敦: カーボンオニオンを用いた超精密研磨の研磨速度向上, 2017 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集, (2017) 637-638.
2. 室伏梨穂, 青野祐子, 平田敦: ナノインデンテーション装置によるナノ粒子圧縮試験における圧子形状の影響, 2017 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集, (2017) 87-88.
3. 平田敦, 齋藤雄介, 青野祐子: カーボンオニオンによる超精密研磨における加工速度の向上, 第 31 回ダイヤモンドシンポジウム講演要旨集, (2017) 120-121.
4. A. Hirata, Y. Saito, Y. Aono: Examination of ultra-precision polishing rate using carbon onion as nanoscale abrasive, 11th Conference on New Diamond and Nano Carbons, (2017) Abstract #154.
5. 太田立志, 青野祐子, 平田敦: 圧縮荷重下におけるカーボンオニオン粒子の分子動力学解析, 第 32 回ダイヤモンドシンポジウム講演要旨集, (2018) 106-107.
6. 佐野龍樹, 青野祐子, 平田敦: カーボンオニオンの砥粒性能に与える分子形状の影響, 2019 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集, (2019) 117-118.
7. 太田立志, 青野祐子, 平田敦: 経験的分子動力学法を用いた圧縮環境下におけるカーボンオニオン粒子の変形挙動解析, 2019 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集, (2019) 558-559.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年:

国内外の別:

取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：青野 祐子
ローマ字氏名：Yuko Aono
所属研究機関名：東京工業大学
部局名：工学院
職名：准教授
研究者番号（8桁）：20610033

(2)研究協力者

研究協力者氏名：齋藤 雄介
ローマ字氏名：Yusuke Saito

研究協力者氏名：室伏 梨穂
ローマ字氏名：Riho Murofushi

研究協力者氏名：太田 立志
ローマ字氏名：Ryuji Ota

研究協力者氏名：佐野 龍樹
ローマ字氏名：Ryuki Sano

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。