

令和元年6月18日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06806

研究課題名(和文) 切削工具への耐摩耗性膜成膜のための卓上型プラズマCVD装置とプロセスの研究開発

研究課題名(英文) Development of desktop plasma CVD apparatus for wear-resistant film deposition on cutting tools for

研究代表者

清水 禎樹 (Yoshiki, Shimizu)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・研究グループ長

研究者番号：20371049

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：ドリル等の切削工具長寿命化に向けて、その表面に耐摩耗性や潤滑性に優れた膜を成膜するための卓上型プラズマ成膜装置を開発した。本装置では、CVD、スパッタリング(PVD)、両者を組み合わせたPCVDでの成膜が可能である。では、プラズマと原料ガスの混合方法検討、被成膜体への高周波バイアス印加機構を開発し、高効率成膜を実現する基盤技術を築いた。では、直流負バイアスを印加した被成膜体近傍にターゲットを配置し、狭小な反応容器内でスパッタ成膜を実現する基盤技術を開発した。では、多成分系薄膜成膜の実現に向けて、と のハイブリッドプロセスによる成膜を検討し、実用化への可能性を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来の成膜では、成膜装置の仕様を軸としたプロセス検討が主であったのに対し、本研究は被成膜体に適したプロセス検討を起点として、最適な装置を設計・開発した点に特色がある。従来多く見られた装置ありきの検討では、装置仕様に束縛されたプロセス条件の制限により、当該装置での成膜についての議論となるケースが度々生じる一方で、本研究の概念は成膜の本質についての検証を可能にするものであり、薄膜工学への貢献が期待される。また、開発装置は、小型、簡易操作性を重視したことで、成膜プロセスに馴染みのない現場を含め、幅広い現場や分野での応用が期待される。

研究成果の概要(英文)：In order to extend the lifetime of cutting tools for machining such as drills, we have developed a desktop plasma deposition system for depositing films with excellent wear resistance and lubricity on the surface. This equipment enables us to deposit film by (1) CVD, (2) Sputtering (PVD), and (3) Hybrid of those processes (PCVD). In (1), we have studied the mixing method of plasma and source gas and developed the high frequency bias application mechanism to an object for film deposition, and succeeded in building the basic technology to realize film deposition with high efficiency. In (2), a target for sputtering was placed in the vicinity of the object, to which a direct current negative bias was applied. This development enables us to easily deposit film on the object in a small reaction tube. In (3), in order to realize multi-component thin film deposition, film deposition by the hybrid process of (1) and (2) was examined, and the possibility for practical use was found out.

研究分野：プラズマ材料科学

キーワード：プラズマプロセス CVD PVD

1. 研究開始当初の背景

近年、電子デバイスに代表される先進的工業製品の小型化や軽量化が進み、その精密部品作製のための微細・高精度加工の需要が高まっている。その対応に向けて現場では、高速加工および高能率生産が求められる一方で、被加工基材に難切削材を扱うケースも増加しており、ドリルやエンドミルに代表される切削ツールの摩耗劣化がもたらす歩留りの低下が課題とされている。このような背景から、切削ツールの寿命改善が切望されている。

ツールの長寿命化という視点では、耐摩耗性（硬度）と耐欠損性（靱性）とを併せ持つ材料をツール基材とするのが理想的だが、硬度と靱性は相反する特性であり、両特性を併せ持つ材料は存在しない。したがって、窒化チタン（TiN）などの硬質膜コーティングによる工具寿命改善や、ダイヤモンドライクカーボン（DLC）などの潤滑膜コーティングによる摩耗率低減が図られている。

これらの膜の成膜では一般的に、化学的気相成長法（CVD法）や物理的気相成長法（PVD法）の原理に基づくドライプロセスでコーティングされており、そのための様々な種類の装置が開発されている。しかしながら現存する装置の大半は、大掛かりな真空装置や高出力電源で構成される大型・高価なものであり、加工現場自らが装置を導入することが難しく、コーティング専門業者に外注するケースが多く見受けられる。この場合、外注期間は加工生産が中断するという問題が生じる。

以上のような点を鑑みると、現場にてオンデマンド的な成膜が可能なプロセス技術および小型装置の研究開発は、重要な研究課題とされている。

2. 研究の目的

本研究の目的は卓上型プラズマ成膜装置の開発と、ドリルやエンドミルに代表される機械加工ツール表面への成膜プロセス検討である。大掛かりな装置を要せずに発生が可能な大気圧微小プラズマ発生技術を減圧下での成膜プロセスに応用し、簡易かつ高効率での成膜実現に向けて、原料種の選択や供給方法や、被成膜体へのプラズマ重畳効果の検証を中心としたプロセス条件の検討を行う。

3. 研究の方法

本研究開発の基盤となるプラズマ成膜装置の基本構成を図1に示す。この基本構成を基に、目的の達成に向けた装置開発と成膜プロセス検証を行った。

プラズマ発生部（図1-A）には、大気圧微小プラズマジェットを用いた。直径が最大で4mm程度の細管内にアルゴンまたは反応性ガス/アルゴン混合ガスを供給し、細管周囲に設置した電極に交流高電圧（8kHz, 10kVp-p）を印加してプラズマジェットを発生させた。放電の基礎的原理として知られるパッシェンの法則によれば、このような微小空間におけるプラズマ発生は大気圧程度の圧力範囲における発生が有利とされているが、数Pa程度の雰囲気圧であっても安定発生することを準備段階で確認した。また、大気圧付近での発生と比較して、減圧下では電子温度が上昇し、CVD法での原料高効率分解に繋がることを期待し、本装置開発に応用した。

成膜を行う反応容器には、内径約15~25mmのガラス管を用いた（図1-C）。この反応容器は、微小プラズマ接続ポート（図1-B）、ポンプおよび圧力ゲージ等との接続ポートを備えた被成膜体固定ジグ（図1-D）と、Oリング等を介して容易に密閉接続できる機構とし、プラズマ源や被成膜体の交換が容易な仕様とした。

周辺機器は、卓上設置が可能な小型のプラズマ励起用交流高電圧源、ダイヤフラムポンプ、マスフローコントローラーなどで構成され、これら周辺機器を含めてトータルで卓上設置が可能な成膜装置とした。

以上のような装置構成を基本として、装置内に配置したツール表面への効果的な成膜を実現するための原料供給方法、バイアス電圧印加方法等を検討した。

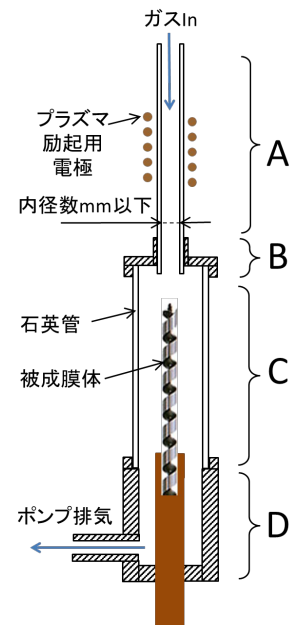


図1 本研究開発の基盤となる成膜装置基本構成の概略図

4. 研究成果

(1) 液体原料からの成膜技術の開発

開発した装置構成の概略図を図2に示す。本装置は、薄膜の原料成分を含む液体試薬を原料に用いる成膜装置であり、図1に示した基本構成を改良・開発した装置である。液体試薬を気化プラズマ中に供給し、分解を経て成膜させる。液体試薬の気化ではマントルヒーターを用いる。気化成分の供給では、当初はプラズマ発生源中への供給（図2a-）を検討したが、供給

原料が放電管内壁に堆積し、微小プラズマの発生が経時的に不安定となる問題が生じたため、プラズマ発生源とは異なる新たな供給ポート（図2 a- ）を設けた。供給ポートの設置位置については、プラズマ発生源 と直交する位置（図2 a- ）への設置も検討したが、プラズマ源と対向する での供給が、原料成分をプラズマと効率よく混合・分解できることを確認し、最終的に の配置とした。図2 bに実際の放電の様子を示す。反応管の下流に設置したポンプ(図2 a,)により、被成膜体を覆うようにプラズマを引き込み（図2 a, ）被成膜体表面への成膜を可能とした。

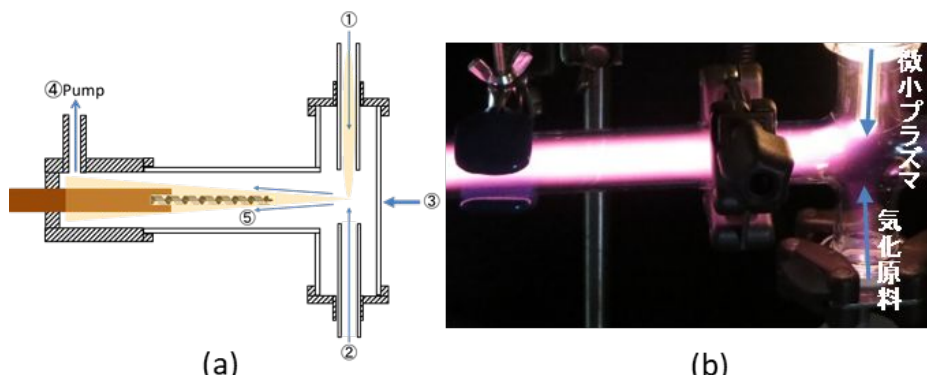


図2 気化した液体試薬を原料に用いるプラズマ成膜（CVD）装置）
 (a) 概略図、(b)プラズマ発生・成膜プロセスの様子

(2) 被成膜体へのバイアス印加技術の開発

図2の装置での成膜効率を高める目的で、被成膜体への高周波(RF)バイアス印加機構を開発した。被成膜体へのバイアス印加は、被成膜体近傍における活性種（成膜に寄与する原料イオン成分）濃度および被成膜体への堆積効率の双方を高め、成膜速度や密着強度の向上をもたらすことが期待される。本研究では、反応管内部に固定された被成膜体へのRFバイアス印加が可能なフィードスルー型電極を開発し、被成膜体周囲での高周波プラズマ発生を可能にした。図3に放電の様子を示す。上方から供給される微小プラズマに加え、被成膜体周囲でのプラズマ発生が確認された。また、微小プラズマを発生させず、RFバイアス印加のみで被成膜体周囲でのプラズマ発生が可能であることを確認した。このような 微小プラズマ+RFバイアス、RFバイアスのみ、の成膜条件比較では、成膜速度については が速いことを確認し、当該装置による高速成膜実現に向けての知見が得られた。



図3 被成膜体へのRFバイアス印加による成膜プロセス

(3) スパッタリングによる成膜技術の開発

上記(1)(2)の成膜技術が、液体試薬の蒸気を原料に用いた成膜技術(CVD法)であるのに対し、同様の狭小な成膜スペースにおけるスパッタリング法を基盤とした成膜技術(PVD法)を新たに開発した。図4に装置の概略図を示す。ロッド状被成膜体の近傍に配置したターゲットに直接RFを印加し、周囲に発生させたプラズマでスパッタリングさせた。ロッド状被成膜体には直流負バイアス電圧を印加し、スパッタリングで生成した成膜成分の高効率堆積を可能にした。

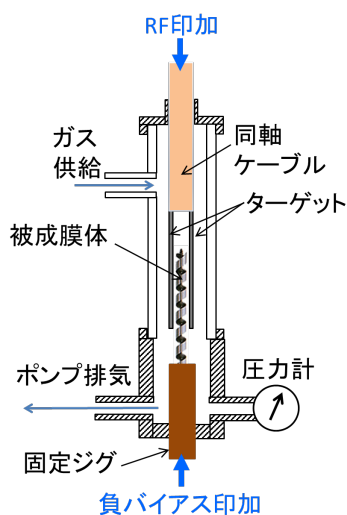


図4 本研究で開発した狭小空間におけるスパッタリング成膜技術の概略図

(4) 多成分系薄膜成膜技術のプロセス検討

上記のような卓上型プラズマを用い、多成分系薄膜を成膜させる基礎的な検討を行った。主に(3)のスパッタリング法で検討し、例えば窒化チタンを成膜では、ターゲット材料にチタン、雰囲気ガスに窒素/アルゴン混合ガスを用いるPCVD法での成膜を検討した。得られた薄膜はスパッタリング起因のチタンが主成分であったが、窒素の含有も確認され、本手法による多成分系薄膜成膜の可能性を見出すことができた。

また、スパッタリングのみでの多成分系薄膜成膜につ

いても基礎的な検討を行った。被成膜体近傍に、異なる二種の金属ターゲットを配置し、同時にスパッタリングを行った結果、両成分を含有した薄膜の堆積が確認された。また、薄膜における両成分の含有量制御の試みから、二種のターゲット材料の面積比を変化させてスパッタリングを行ない、異なる組成比の膜が得られることを確認した。

5．主な発表論文等

〔学会発表〕(計2件)

Development of co-sputtering method using open-air micro-plasma jet and its application to synthesis of binary compound materials、清水禎樹、伯田幸也、2017 MRS fall meeting and exhibit (国際学会)

A simple method to synthesize nanoparticles via metal target etching using an atmospheric plasma jet and its application to fabrication of functional nanocomposite film、清水禎樹、石川善恵、畠山一翔、伯田幸也、第28回日本MRS年次大会 国際シンポジウム(招待講演)(国際学会)

6．研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：中野禅

ローマ字氏名：Shizuka Nakano

所属研究機関名：国立研究開発法人産業技術総合研究所

部局名：製造技術研究部門

職名：研究グループ長

研究者番号(8桁)：50357646

(2)研究協力者

研究協力者氏名：伯田幸也

ローマ字氏名：Yukiya Hakuta

研究協力者氏名：伊藤剛仁

ローマ字氏名：Tsuyohito Ito

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。