

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 22 日現在

機関番号：32407

研究種目：基盤研究 C

研究期間：2010～2012

課題番号：22560119

研究課題名（和文） WC-Co 合金工具のリユースのためのダイヤモンド膜除去技術の開発

研究課題名（英文） Development of removal technique of diamond films for reuse of WC-Co alloy tools

研究代表者

竹内 貞雄 (TAKEUCHI SADA0)

日本工業大学・工学部・教授

研究者番号：90216846

研究成果の概要（和文）：

本研究では、カーボンファイバーの穴あけ加工に必要とされるダイヤモンドコーテッド工具について、摩耗したダイヤモンド膜を効率的に除去するための大気圧プラズマトーチを開発してダイヤモンド膜の除去の可能性を検討した。その結果、2.54GHz のマイクロ波を用いた高密度大気圧プラズマ(1.2kW)を安定して長時間照射できるトーチを製作した。また、Ar プラズマ中に酸素を添加することで、ダイヤモンド膜を効率良く除去できることを明らかにした。また、多結晶ダイヤモンドの除去に対して、粒界の選択的なエッチングや結晶方位依存性が認められないプラズマ条件を確立した。

研究成果の概要（英文）：

Diamond coated WC-Co alloy tools are used for the drilling of carbon fiber reinforced plastics. To realize the reuse of the tool, it is necessary to establish a technique to remove worn diamond film coated. Then, a technique with high density atmospheric plasma torch system is developed to remove the film. The system can produce output power of 1.2 kW stably for more than 1 hours continuously under 2.54 GHz microwave. It is proved that the system can remove the film efficiently by the addition of oxygen gas to Ar plasma. It was found that the technique can also be applied, by controlling plasma conditions, to the removing of polycrystalline diamond film without selective etching of crystal boundaries and/or crystal orientation dependence.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2012 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・生産工学・加工学

キーワード：切削・研削加工

## 1. 研究開始当初の背景

気相法によりダイヤモンド膜をコーティングした切削インサート、ドリル・エンドミルについては、市販が開始されて 10 年が経過している。しかしながら非鉄金属の加工に限定されるという制約があり、商業的には成功したとは言えない。ところが最近になり新素材を用いた航空機の大量受注、ならびに環境問題への対応等の社会情勢の変化により、ダイヤモンドコーテッド工具の大量生産が不可欠となっている。より具体的には、ボーイング 787 は 700 機以上の受注がありカーボンファイバー (CFPR) 製の主翼、中央翼、胴体前部を我が国の重工 3 社が受注し、CFRP への多量の穴加工にダイヤモンドコーテッドドリルが必要になる。従来の超硬合金ドリルでの 10 穴程度の寿命がダイヤモンドコーテッドドリルでは 240 穴までの加工が実証されている。

事業として経済性を追求する上で、このダイヤモンドコーテッド工具の展開を阻害するのは、基材としてタングステン・コバルト超硬合金しか選択できない点である。しかも、この WC-Co 合金で実際にダイヤモンドコーティング膜の密着性が確認されている化学成分もまた限定的であり、それらを成形後に使用済み工具として廃棄することは、経済的にも環境技術的にも、また戦略的要素利用の面でも許されない。しかし、きわめて高硬度で化学的にも安定なダイヤモンドコーティングを、機械的な研磨・研削で除去するには膨大な時間と手間を必要とし、またそれらを溶液処理 (ウエット環境) で化学的に除去する場合にも、大きな困難を伴う。結晶相をもたない DLC (ダイヤモンド・ライク・カーボン) コーティングに関しては、酸素プラズマあるいはフッ素プラズマを用いたアッシング技術、燃焼法により膜除去が有効であり、すでにいくつかの企業でも使用実績がある (例えば特開 2001-295044)。しかし、ダイヤモンド膜に適用した場合、除去効率が低く実用に向かず、新しい除去技術を開発する必要がある。

## 2. 研究の目的

大量生産が開始されるカーボンファイバーの加工等に不可欠とされるダイヤモンドコーテッド工具 (ドリル・エンドミル) は、基材に超硬合金を用いている。超硬合金は高価であるというコスト面での制限だけでなく、戦略元素であるタングステン、コバルトを含む。本提案技術は、基材の超硬合金にダメージを与えずに効率的にダイヤモンド膜の除去を行う大気圧プラズマ処理技術を確立するもので、再生コーティングにより基材のリユースを実現し生産コストの低減のみならず戦略元素の有効利用を実現するものである。

## 3. 研究の方法

### (1) 大気圧プラズマトーチの試作と構造の最適化

大気圧プラズマは、すでに表面改質に応用されているが、その用途は、Si 膜の合成や、表面のクリーニングによる接着力の向上であり、化学的に安定なダイヤモンド膜の除去に適用できる高いエネルギー密度の大気圧プラズマは開発されていない。本研究では、ダイヤモンドの合成に用いる 2.54GHz, 1.2kW の容量結合型マイクロ波電源を用いてマイクロ波励起による高密度大気圧プラズマを安定して維持できるプラズマトーチを試作する。

### (2) 反応性ガスの添加による活性種の生成

比較的安定したプラズマを形成できる Ar プラズマをベースに用いる。具体的には 2 重のガラス管構造として、内側のガラス管内に Ar ガスを流してプラズマジェットを形成する。外側のガラス管に反応性ガスである酸素、水素、あるいは両者の混合ガスを流して中央部に形成した Ar プラズマジェットに供給ガスを巻き込ませることで活性種を形成させる。なお、得られた各種プラズマについて発光スペクトルを測定することで生成した活性種を特定する。

### (3) ダイヤモンド膜のエッチング

気相法で合成した多結晶ダイヤモンド膜に各種活性種を有するプラズマジェットを照射して、ダイヤモンド膜の表面性状の変化を観察する。

## 4. 研究成果

### (1) 製作した大気圧プラズマトーチの概要

図 1 に大気圧プラズマ装置の外観を示す。大気圧プラズマの励起には 2.45GHz のマイクロ波を用いる。マイクロ波電源よりマイクロ波を発生させ、導波管により大気圧プラズマトーチ部まで誘導する。チューニングダイヤルにより入射波電力、反射波電力の調整を行う。誘導されたマイクロ波により製作したトーチを用いて大気圧プラズマを発生させる。

図 2 に大気圧プラズマトーチの構造と概略を示す。導波管で誘導されたマイクロ波中に石英パイプを導入する。同パイプにはアルゴン (Ar) ガスを供給しパイプ下部の黒鉛製のアンテナにより大気圧下でプラズマを生成させる。さらにその外側のパイプには反応ガスとして酸素 ( $O_2$ ) ガス、水素 ( $H_2$ ) ガスを供給できる 2 重構造となっている。すなわち、プラズマの維持が容易な Ar プラズマ中に反応ガスを供給することで化学活性度の高い反応性大気圧プラズマジェットを生成できる。

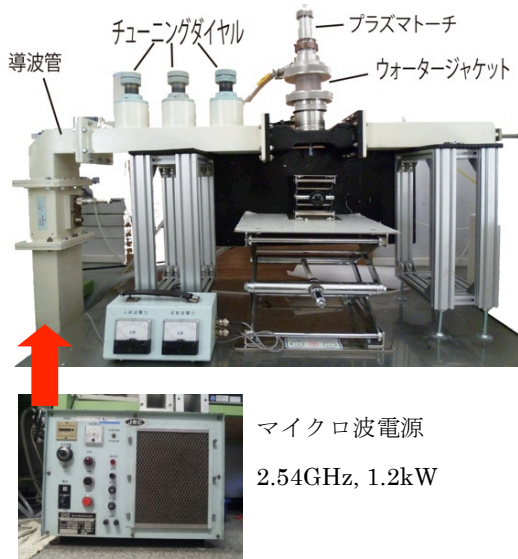


図1 製作した大気圧プラズマ装置の概観

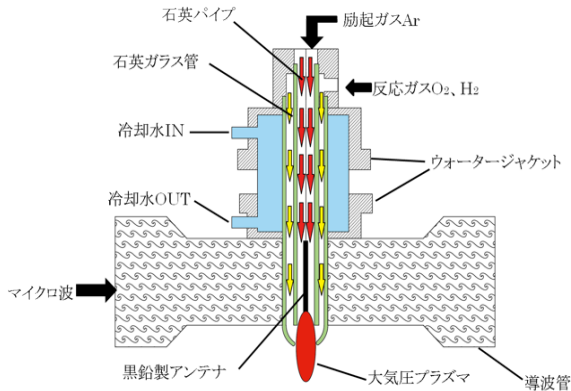
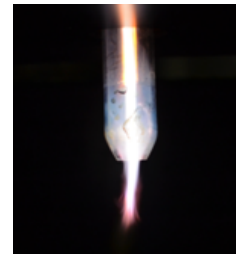


図2 大気圧プラズマトーチの構造

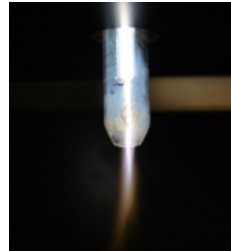
(2) 反応性ガスを添加した大気圧プラズマの観察結果

図3に生成した各種プラズマの観察結果を示す。(a) Ar プラズマは内側の石英ガラス管で発生させたジェットである。(b) Ar+O<sub>2</sub> は二重管の外周より酸素を供給した場合であり、ベースとなった(Ar)に比較してプラズマが白く輝いている。(c) Ar+H<sub>2</sub> は水素を添加したときの観察結果である。赤く発光していることがわかる。これらのことより、Ar プラズマの外周に供給した添加ガスはプラズマ中に取り込まれてなんらかの活性種を生成していることがわかる。

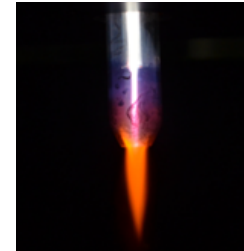
図4にそれぞれの発光スペクトルの観察結果を示す。(a) Ar プラズマと(b) Ar+O<sub>2</sub> プラズマのスペクトルに際立った違いは認められなかった。これは Ar のみのプラズマを生成した際に、大気中の酸素も励起してしまい



(a) Ar



(b) Ar+O<sub>2</sub>



(c) Ar+H<sub>2</sub>

図3 各種大気圧プラズマジェットの観察結果

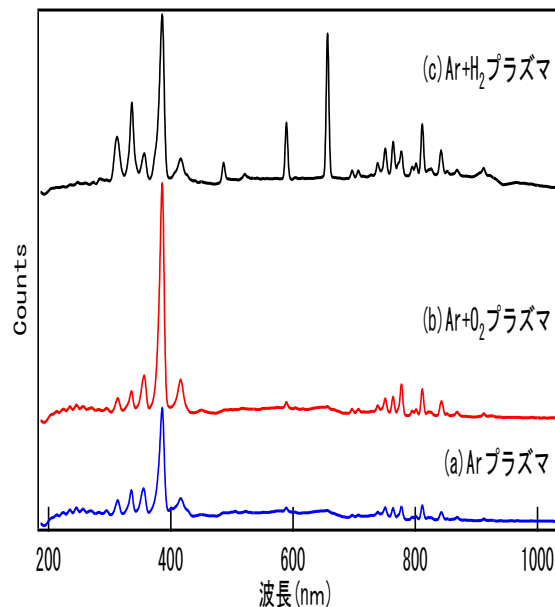


図4 各種プラズマの発光スペクトル

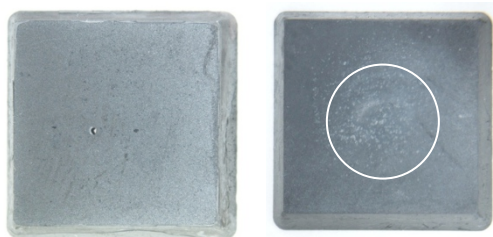
純粋な Ar プラズマを生成できなかったためである。詳細に観察すると(b) Ar+O<sub>2</sub> プラズマでは 777nm に酸素由来のピークが増大している。777nm 付近の波長では赤に近い色の発光をするが、多少オレンジがかった白色の発光を示した。これは大気圧下でのプラズマ生成であるために空気中の様々な物質を励起しているために赤に近い発光をしなかったと考えられる。また(c) Ar+H<sub>2</sub> プラズマでは 656nm の水素由来のピークが増大している。656nm 付近の波長は橙色に近い発光をするこ

とから、656nm のピークが増大しているのは水素によるものであると推察される。スペクトル測定結果より O<sub>2</sub> ガス、H<sub>2</sub> ガスが Ar プラズマに取り込まれていることが確認できた。すなわち製作した大気圧プラズマトーチにより化学的活性度の高い反応性大気圧プラズマジェットを生成出来ることが明らかとなった。

### (3) ダイヤモンド膜のエッチング結果

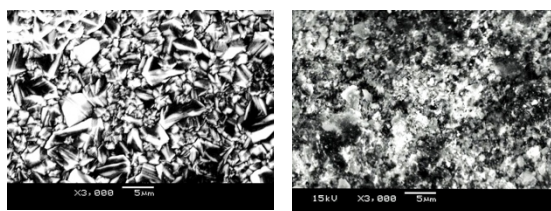
エッチングに用いたダイヤモンド膜は熱フィラメント CVD 法により超合金基板上に約 15 μm の厚さで合成した。エッチングに用いた大気圧プラズマの生成条件は、Ar 流量 3 l/min, 酸素流量 1 l/min, 陽極電流 1A で、トーチ先端からダイヤモンド膜までの距離は 10 mm である。

図 5 にエッチング前後のダイヤモンド基板の観察結果を示す。(a) はエッチング前で、(b) が 20min プラズマを照射した後の概観を示す。図中の白丸(φ8mm 程度)の領域がエッチングされた部分であり肉眼でも表面性状が変化していることがわかる。



(a) エッチング前 (b) エッチング後

図 5 ダイヤモンド膜のエッチング結果



(a) エッチング前 (b) エッチング後

図 6 ダイヤモンド膜のエッチング結果

図 6 に大気圧プラズマによるエッチング面の観察結果を示す。(a) エッチング前の試料表面はダイヤモンド膜特有の自形面が確認でき多結晶構造であることがわかる。これに対し (b) エッチング後ではダイヤモンド結晶の稜線部が丸みを帯びて全体的に平滑化されていることがわかる。詳細に観察するとエッチング効果に結晶方位依存性は認められない。さらに、多結晶構造において最も脆弱な結晶粒界についても選択的なエッチングの痕跡は認められない。

これらのことより、試作した大気圧プラズ

マトーチにより、ダイヤモンド膜を均一に除去できることを確認した。

## 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 2 件)

- ① 竹内 貞雄、横澤 毅、ダイヤモンド膜の機械工具への期待と展開、材料試験技術、査読無し、57 巻 1 号、2012、18-25
- ② 竹内 貞雄、横澤 毅、ドライプレス金型用ダイヤモンド膜の開発と応用、表面技術、査読無し、第 62 巻 3 号、2010、8-12

〔学会発表〕(計 4 件)

- ① 竹内 貞雄、松永 健志、金橋 寛明、マイクロ波を用いた大気圧プラズマトーチによるダイヤモンド膜のエッチング、表面技術協会第 127 回講演大会、2013 年 3 月 18 日、日本工業大学
- ② 竹内 貞雄、一ノ瀬 修、ポロンドープダイヤモンド膜の摩擦摩耗特性評価、ニューダイヤモンドフォーラム第 26 回シンポジウム、2012 年 11 月 20 日、青山学院大学
- ③ 竹内 貞雄、横澤 毅、耐摩耗性を向上させたダイヤモンド膜の機械的応用、材料試験技術協会 第 250 回材料試験技術シンポジウム(招待講演)2012 年 1 月 25 日、東京都立産業技術研究センター
- ④ 鈴木 航、竹内貞雄、ダイヤモンド膜の付着力評価装置の開発、表面技術協会第 122 回講演大会、2010 年 9 月 6 日、東北大学

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

竹内 貞雄 (TAKEUCHI SADA O )  
日本工業大学・工学部・教授  
研究者番号：90216846

### (2) 研究分担者

なし ( )

### (3) 連携研究者

なし ( )