

博士論文の要旨

専攻名 システム創成科学専攻

氏名(本籍) 北御門 雄大(長崎県) 印

博士論文題名 単層および積層からなる遷移金属窒化物薄膜の表面特性に関する研究

要旨

表面処理技術により合成される窒化物薄膜は、使用環境に応じて目的とする表面特性が付与され、機械加工の現場では耐摩耗膜として利用される。合成技術として化学的蒸着(CVD)法や物理的蒸着(PVD)法が広く利用されており、CVD法では高温成膜となり基材の熱変形等の問題が生じており、低温処理が可能なPVD法が注目されている。PVD法では、アーカイオンプレーティング法やスパッタリング法が用いられており、前者は密着性等に優れるが、膜中に形成されるドロップレットやポーラスにより緻密性や平滑性が失われる。後者は、表面平滑性に優れ緻密な膜となるが、前者に比べ成膜エネルギーが低いため、強度が劣る点が課題となっている。

本論文では、スパッタリング法により優れた機械特性を有する耐摩耗膜の作製を目的とし、多元系遷移金属窒化物薄膜を合成する。また、X線を利用した微細構造解析から、機械特性、耐酸化性を評価し、実際に工具に被覆し切削試験による応用評価を行い、基礎から実用評価まで体系的に表面特性を明らかにする。

本論文は全8章で構成されている。

第1章では、緒論として表面処理技術および遷移金属窒化物の変遷を説明し、問題点を提示するとともに、本論文の目的と構成について記述した。

第2章では、薄膜の評価方法について記述した。エネルギー分散型X線分析(EDX)による元素分析方法、X線回折(XRD)法による結晶構造解析、走査型電子顕微鏡(SEM)による薄膜組織観察など微細構造

の評価方法について記載し、マイクロビッカース硬度試験、ナノインデンテーション法、摺動試験を用いた機械特性評価方法について述べた。また、示差熱分析(DTA)および熱重量分析(TGA)による耐酸化性評価方法について記述し、さらに応用評価である切削試験による工具摩耗の評価方法について説明した。

第3章では、窒化物薄膜の材料となるターゲットの作製方法である放電プラズマ焼結(SPS)法の概要について説明し、成膜手法である高周波マグネトロンスパッタリングの概要および実験方法について記載した。

第4章では、産業界で汎用的に用いられる $Ti_{1-x}Al_xN$ の相変態で得られる特異な特性に注目し、高融点元素であるWを添加した $Ti_{1-x}W_xN$ の単層膜を作製し、W含有率を変化させた際の表面特性の変化について検証した。 $Ti_{1-x}Al_xN$ ではX値に応じて立方晶構造から六方晶の析出が見られるが、 $Ti_{1-x}W_xN$ では $X=0\sim 1.0$ においてNaCl型構造を示し、TiNにWが固溶することで、TiNからWNに変化し、それに伴い、格子定数が $X=0\sim 0.34$ で増加し、 $X\geq 0.47$ で減少した。また、耐摩耗性においては $X=0.47\sim 0.66$ で優れた特性を得たが、高温環境下においては $X=0.34$ が基板へのダメージが少なく、良好な耐酸化性を示した。

第5章では、相変態領域に着目した $CrAlSiN$ の単層膜を開発し、添加元素であるSiが表面特性に与える効果を分析した。微細構造解析では、相変態領域にSiを添加した $CrAlSiN$ は六方晶の析出は見られず、立方晶を形成することが確認され、Siを添加することで微小硬度が上昇し、耐摩耗性の向上に寄与することが明らかとなった。また、Siの添加が酸化の進行を抑制し、耐酸化性を向上させることが示唆され、応用評価において実施した切削試験では、未被覆工具に比べ被覆した工具は切削抵抗を減少させ、さらに $CrAlSiN$ を被覆することで工具の初期摩耗を抑制することが明らかとなった。

博士論文の要旨

専攻名 システム創成科学専攻

氏名 北御門 雄大

第6章では、これまで得られた成果において最も良好な耐摩耗性を有する CrAlSiN を積層化させ、2種の薄膜からなる積層膜を作製し、さらなる機械的特性の向上を図った。薄膜合成において、TiAlSiN および CrAlSiN からなる積層膜および *c*-CrAlSiN および *h*-CrAlN からなる積層膜を作製し、それぞれの単層膜との比較を通じ、積層化が薄膜のトライボロジー特性、微小硬度、耐酸化性、密着性、工具摩耗に与える影響を検証した。CrAlSiN および TiAlSiN からなる単層膜および積層膜はいずれの試料も立方晶構造であることが示され、*h*-CrAlN を含む積層膜では六方晶の析出が見られた。また、積層化することで微小硬度の上昇を導き、耐摩耗性の向上に寄与することが確認された。また、切削試験では積層膜を被覆した工具は工具摩耗を抑制し、CrAlSiN/TiAlSiN 積層膜では工具寿命を延命する効果が期待される。

第7章では、新規性のある窒化物膜を作製するため、大気中で発火の危険性があり研究事例の少ないジルコニウム(Zr)に着目し、第2金属元素としてAlを添加した単層 $Zr_{1-x}Al_xN$ を開発し、Al含有量による相変態領域の模索および微細構造、機械特性、耐酸化性評価に与えるAl添加効果を解明した。焼結では難焼結材である ZrN 粉末を用いてセラミックターゲットを作製した。スパッタリング法により合成された $Zr_{1-x}Al_xN$ は、 $X=0,0.12,0.26,0.43,0.73,1.0$ となり、 $X=0\sim 0.26$ では NaCl 型構造を有し、 $X=0.73\sim 1.0$ では Wurtzite 型構造の析出が見られた。 $X=0.43$ では NaCl 型および Wurtzite 型の混合相であることが示唆された。耐摩耗性評価では、 $X=0.12$ で約 37GPa と最大硬度を示し、良好な耐摩耗性を

得た。耐酸化性における評価では、Al含有量の増加に伴い、不働態被膜の形成による酸化の抑制効果が見られた。

第8章では、以上の結果を総括し纏めた。