

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 25 日現在

機関番号：14303

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K21120

研究課題名(和文)超高速繰り返し押し付け試験法の開発とそれによるDLC膜破壊メカニズムの解明

研究課題名(英文)High-Speed Cyclic Indentation Test and Fracture Mechanisms of DLC coatings

研究代表者

中村 守正(Nakamura, Morimasa)

京都工芸繊維大学・機械工学系・准教授

研究者番号：00464230

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：ダイヤモンドライクカーボン(DLC)膜のような硬質皮膜の新たな強度評価法として、球圧子を繰り返し押し付ける強度試験法を考案し装置を製作した。試験法の妥当性確認のため、熱処理、ラッピングを施した鉄鋼基板上にUBMスパッタ法を用いて形成したDLC膜を実験に供した。面圧約2.6GPa、毎分120回で10000回以上の繰り返し押し付けにより、DLC膜がはく離し基板が露出した。生じたDLC膜の圧痕に対するラマン分光分析により、膜の変質を確認した。また、短時間で10の7乗回もの押し付けが可能な超高速試験法を考案するとともに装置を製作した。この試験法によっても、DLC膜のはく離を確認した。

研究成果の概要(英文)：As a new strength evaluation method for hard coatings such as Diamond-like Carbon (DLC), the cyclic indentation test method using ball indenter has been developed. And its test rig has also been fabricated. DLC coatings, which were prepared with UBM sputtering, were used in order to find validity of this test. Over 10000 times of indentations made DLC coating fracture on substrates under approximately 2.6 GPa of contact pressure and 120 per minute. Changing DLC coatings characteristics after the tests were found to be clear by Raman spectroscopy analysis for the indentation tracks. On the other hand, the other test rig for 10 raised to the power of 7 times indentations within short time has also been developed and fabricated. DLC fracture was also found using it.

研究分野：機械工学

キーワード：DLC膜 強度 評価 破壊

1. 研究開始当初の背景

近年の産業技術の発展に伴い、機械要素部品に用いられる材料はもはや単独(金属、プラスチックに関わらず)では長時間の高面圧環境といった過酷な条件では使用できなくなってきている。機械要素の中でも動力伝達に重要な歯車装置においては省エネ・環境問題を背景として摩擦による動力損失の低減することが要求されている。解決策の一つとして潤滑油の低粘度化が挙げられるが、そのためには、歯車の表面強度を向上させる必要がある、その手法の考案が課題となっている(①)。

低摩擦性、耐摩耗性といった、要求される機能が材料表面に集中する場合は、材料の表面のみを改質する方法が採用されている。特に、材料の表面に硬質膜を形成する被覆処理は、材料単独では得られない機能を付与するため盛んに行われている(②)。中でも、ドライコーティング処理で形成される硬質膜である、窒化チタン(TiN)や窒化クロム(CrN)、ダイヤモンドライクカーボン(DLC)膜等は良く知られており、それぞれ既に切削工具等に実用化されている。

これらの中でも機械要素部品に適用するのに必要な低摩擦特性、耐摩耗性が高いことで注目されているのがDLC膜である。DLC膜は高い硬さによる耐摩耗性と低摩擦特性を併せ持ち、さらに広範な力学特性を有することを特長とする炭素系のアモルファス膜であり(③)、ここ数年、様々な分野での実用化が進んでいる。しかしながら、高面圧環境下で使用されるしゅう動面への応用は進んでいない。この理由としては、DLC膜が基材との密着性に乏しくかつ脆く割れやすいことが挙げられ、外力が作用して基材が変形するとDLC膜は容易にはく離したり割れたりする。さらに、はく離や割れといった破壊のメカニズムは適用対象の機械要素や部品によって異なり、複雑な現象を伴って破壊に至ることから、詳細は明らかになっていない。

このような背景から、歯車に対するDLC膜の適用可能性について検討し、DLC膜の損傷の進展について歯車運転試験を通じて調べたところ、試験開始後早期に歯面からDLC膜が消失していることがわかった(④)。すなわち、相手歯面との接触により、DLC膜に繰り返し法線力が作用することで、はく離、割れに至ることを明らかにした。ただし、そのメカニズムは明らかにできておらず、これを明らかにしておくことは歯車をはじめとする機械要素部品に適したDLC膜を開発する上で不可欠であり、学術、工学的な意義も高い。

一方、歯車歯面におけるDLC膜の強度評価を行う方法として、これまでは試験歯車による運転試験を採用してきたが、結果を得るまでに長ければ数十日といった時間を要すること、機械要素実物を毎回使用するのでコストがかかるという問題を併せ持つ。

2. 研究の目的

硬質膜表面に繰り返し力が作用する状況を模した試験が可能な、繰り返し押し付け試験法を考案した。これを具現した試験機によって得られる結果と、これまでに明らかにしてきた繰り返し外力を受けることによってDLC膜がはく離したり割れたりするメカニズムや、DLC膜の物性の影響について明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 繰り返し押し付け試験機

図1は、設計、製作した繰り返し押し付け試験機の正面写真である。この試験機は、主として試験片に押し付ける球圧子、圧子を上下させるためのインバータモータ(㈱三菱電機 SF-HRCA 3.7kW)、圧子を押し付けた際に力を作用させるためのばね、圧子と試験片を鉛直方向に運動させるための3本のリニアガイド(THK(㈱)LMガイド)、コネクティングロッド、回転計で構成されている。力を作用させるためのばねは交換可能で、異なる押し付け力で試験をする場合は、異なるばね定数のばねを取り付ければ良いようになっている。

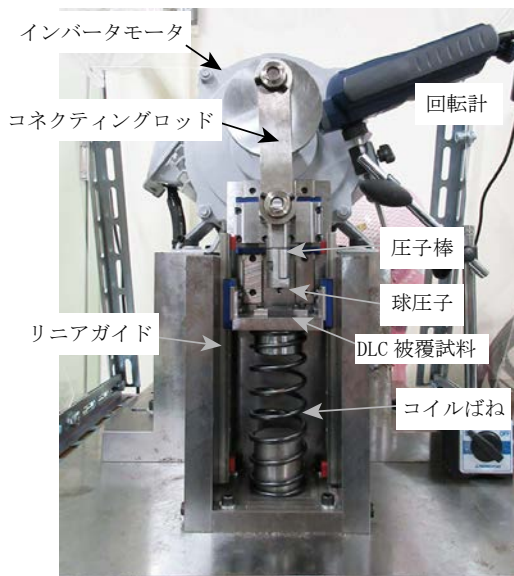


図1 繰り返し押し付け試験機

(2) DLC膜の形成

DLC膜の形成には、㈱神戸製鋼所製のアンバランスドマグネトロンスパッタ装置UBMS202を用いた。DLC膜被覆のための前処理として、被覆面にラッピング処理を施した基板(SCM415, 40×40×t6, 浸炭焼入れ焼戻し、硬度約HRC60.0)をアセトン、n-ヘキサン、アセトン中でそれぞれ10分間の超音波洗浄により脱脂した。脱脂後、基板をUBMスパッタ装置の真空チャンバ内に設置し、チャンバ内圧力を 1.0×10^{-3} Paまで排気する。排気後、Arガスをチャンバ内に導入し、基板表面のコンタミ除去を目的として、イオンボンバードを30分間施した。ボンバードの後、DLC膜の密着性を向上させるためにArとCH₄

の混合ガス雰囲気中での金属 Cr とグラファイトのスパッタリングにより、Cr/C 傾斜組成中間層を形成後、連続して DLC 膜を形成した。表 1 に成膜条件を示す。DLC 膜を形成した基板の断面 SEM 観察により、Cr/C 傾斜組成中間層の厚さは約 $0.5\ \mu\text{m}$ 、DLC 膜の厚さは約 $1.5\ \mu\text{m}$ であることがわかった。

表 1 成膜条件

成膜パラメータ	Cr/C 傾斜中間層	a-C:H
スパッタ電力, W_s (kW)	Cr: 1.5 → 0.0 C: 0.0 → 3.0	Cr: 0.0 C: 3.0
基板バイアス電圧, V_b (V)	-50	0, -200
ガス流量, V_g (ml/min)	Ar: 30 CH ₄ : 1.5	
成膜温度, T (K)	673	
成膜時間, t_d (min)	44	220

(3) 実験条件

$120\ \text{min}^{-1}$ の押し付け速度（インバータモータの回転速度）で、 $\phi 10\ \text{mm}$ の球圧子を押し付け力 $120\ \text{N}$ （窒化ケイ素 Si_3N_4 球で押し付けた場合のヘルツ面圧は約 $2.56\ \text{GPa}$ ）で 3000, 5000, 10000, 15000 回、DLC 膜を形成した面に押し付けた。

4. 研究成果

(1) 繰り返し押し付け試験による DLC 膜の損傷

図 2(a), (b), (c), (d) は、 Si_3N_4 球を 3000, 5000, 10000, 15000 回押し付けて生じた DLC 膜圧痕の光学顕微鏡画像である。ここでは一例として、基板バイアス電圧 $0\ \text{V}$ で形成した DLC 膜に対する結果を示す。10000 回以上の押し付け回数で、DLC 膜が損傷していることが確認できる。図 3 に、これらの圧痕の形状を調査するため、垂直走査型低コヒーレンス干渉計（Zygo NewView 8000）で観察して得た圧痕の断面プロファイルを示す。押し付け回数の増加とともに、圧痕深さが増大していることがわかる。15000 回の押し付けにより、圧痕中心部で深くくぼみが発生していることが認められる。これは、DLC 膜が基板からはく離していることを示しており、このことはくぼみの深さがおよそ膜厚と一致していることからわかる。図 4 は、押し付け回数と最大の圧痕深さの関係を示す。10000 回以上の押し付けの後、圧痕深さが急激に増大している。

ただし、今回、 $0\ \text{V}$ のバイアス電圧で形成した DLC 膜よりも硬いものができることがわかっており、 $-200\ \text{V}$ の電圧で形成した DLC 膜に球を 5000 回押し付けて生じた圧痕の深さは、これと比較して低硬度である $0\ \text{V}$ のものよりも $0.5\ \mu\text{m}$ 程深いことがわかった。皮膜の硬さの影響が現れた場合には $-200\ \text{V}$ で形成した皮膜の方が硬いので圧痕が浅くなると思われるが、逆の結果となった。この原因は現状不明であり、より詳細な調査が必要である。



図 2 (a) 3000 回押し付けた後の DLC 膜

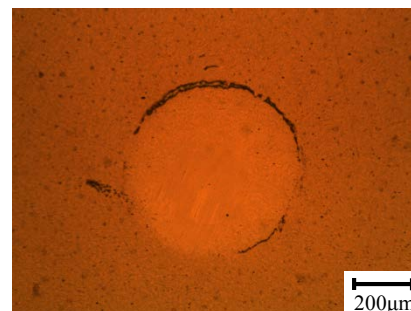


図 2 (b) 5000 回押し付けた後の DLC 膜

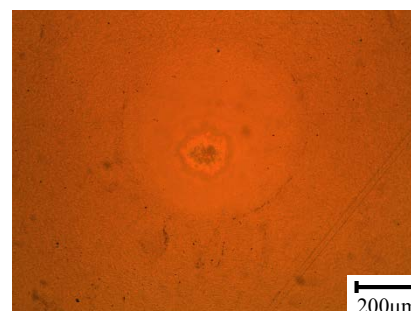


図 2 (c) 10000 回押し付けた後の DLC 膜

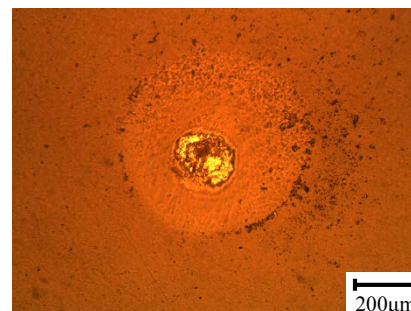


図 2 (d) 15000 回押し付けた後の DLC 膜

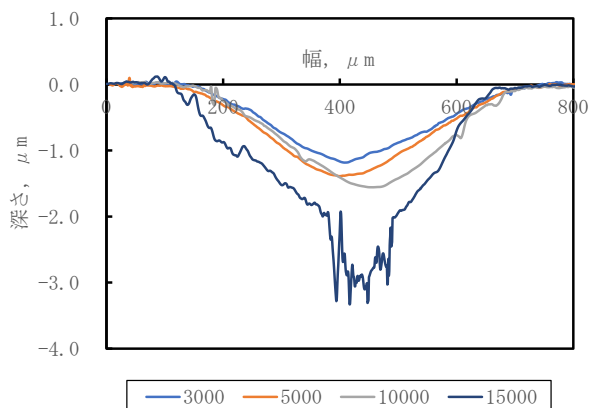


図 3 圧痕断面プロファイルの変化

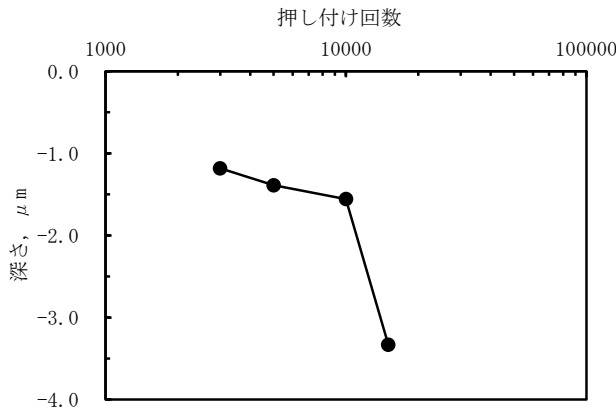


図4 押し付け回数と最大の圧痕深さの関係

(2) ラマン分光分析を用いた圧痕における DLC 膜の物性評価

DLC 膜にできた圧痕の内側に対してラマン分光分析を行い、DLC 膜の物性の変化を調べた。分析には顕微ラマン分光分析装置 RAMAN touch (ナノフォトン(株)製)を用いて、レーザーの励起波長 531.8nm, 出力 3.0 mW, 露光時間 3 秒, 積算回数 10 回の条件で分析した。図 5 は、ラマン分光分析の結果得た、DLC 膜のラマンスペクトルを G バンド, D バンドの 2 つに分解し 1350 cm^{-1} の D ピーク強度と 1580 cm^{-1} の G ピーク強度の比 I_D / I_G を示す。圧痕中心部から遠ざかるに従って、 I_D / I_G が大きくなっていることがわかった。 I_D / I_G の変化は、DLC 膜の sp^2 結合に起因する sp^2 クラスターの粒径の大きさに起因しているとの報告がある(5)。このことから、DLC 膜に Si_3N_4 球を繰り返し押し付けたことによって、DLC 膜の炭素の結合を末端している水素が脱離し、構成炭素が六員環を形成するため、 sp^2 クラスター領域が生成されたと考えられる。また、球と接触した DLC 膜において、 sp^2 クラスター粒径が大きくなったことが推測される。 sp^2 クラスターはグラファイトに多く、グラファイトは層状構造を持ち低摩擦を発現する反面、摩耗しやすいことが知られている。この sp^2 クラスター領域、 sp^2 クラスター粒径の増大が、繰り返

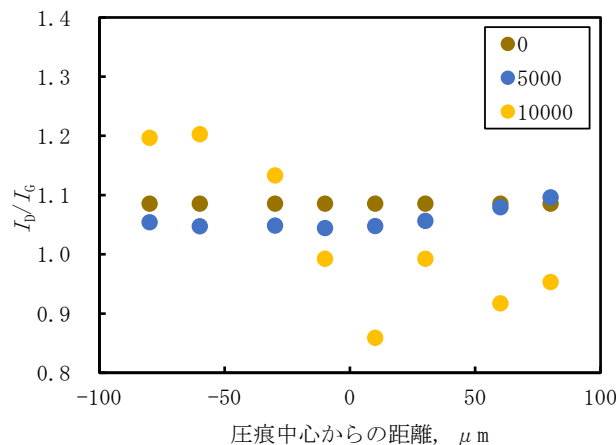


図5 圧痕内側における DLC 膜の I_D / I_G の変化

し押し付けたことによって発生した DLC 膜のはく離に起因したのではないかと考えている。

(3) 超高速繰り返し押し付け試験機の開発

現状、DLC 膜の耐久性は 10^7 回もの負荷に耐えうる程の強度を持つには至っていない。しかしながら、今後より一層高強度を有する DLC 膜を形成可能な技術を開発できれば、 10^7 回もの負荷を与える実験が必要になる。ここで問題になるのが、 10^7 回もの負荷を与えるには、極めて長い時間がかかることである。例えば、2. の試験機で 120 min^{-1} の速さで行った場合、約 1389 時間もかかってしまうことになる。そこで、より高速に実験が可能な超高速繰り返し押し付け試験機を着想した。本研究期間中に設計を終了し、1 号機の製作に至った。

図 6 は、超高速繰り返し押し付け試験機で、 $\phi 10\text{mm}$ の Si_3N_4 球を約 49kHz の周波数で 30 分間 DLC 膜に繰り返し押し付けてできた圧痕をコヒーレンス干渉計で測定した断面プロファイルである。押し付け回数は約 8.8×10^7 回である。圧痕中心部で DLC 膜のはく離し、基板が露出していることが確認できた。一方、約 5.9×10^7 回 (20 分) 押し付けた結果、DLC 膜のはく離は観察できなかった。負荷の測定が精度良くできていないため、定量的な説明は困難である。球圧子先端の試験中の軸方向変位を測定したところ、約 $1.8 \mu\text{m}$ であったことから推測すると、押し付け負荷が小さいために、 10^7 回を超える押し付け回数でも DLC 膜のはく離しなかったと考えられる。

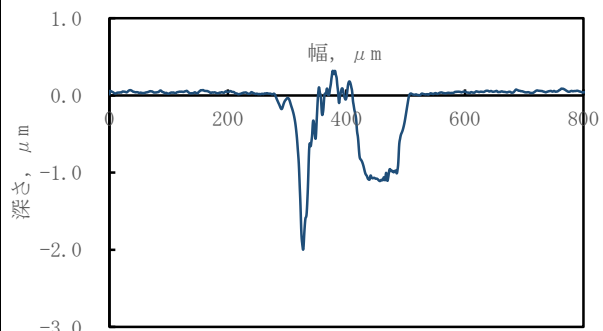


図6 超高速繰り返し押し付け試験後の圧痕形状

<引用文献>

- ①日本機械学会, RC218 歯車装置の使用限界向上とトラブル未然防止のための設計・製造技術調査研究分科会報告書, p9, 2007.
- ②PVD 被膜における密着性の改善, 石神逸男, 三浦健一, 網沢栄二, 熱処理, 33, 1, pp. 35-43, 1993
- ③UBM スパッタ法により形成した DLC 膜摩擦特性のラマン G ピーク位置依存性, 三浦健一, 出水敬, 中村守正, 表面技術協会第 113 回講演大会講演要旨集, pp. 267-268, 2006.

④ Strength Evaluation of Diamondlike Carbon Films on Polyacetal Gears Deposited by Unbalanced Magnetron Sputtering using Operating Test, Morimasa Nakamura, Ken-ichi Miura, Jyunpei Kobata, Ichiro Moriwaki, VDI-Berichte Nr. 2199.1 2013, pp.1155-1164, 2013.

⑤ Interpretation of Raman spectra of disordered and amorphous carbon, A. C. Ferrari and J. Robertson, Physical Review B, 61, 20, pp.14095-14107, 2000.

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 Morimasa NAKAMURA, Ryohei KURIHARA, Fumihiro NAKAYAMA, Ken-ichi MIURA, Jyunpei KOBATA, CYCLIC INDENTATION TEST FOR EVALUATING STRENGTH OF DLC FILMS, 査読有, Proceedings of The JSME International Conference on Motion and Power Transmissions, Vol. II, 2017, 388-392.

② Morimasa Nakamura, Ryohei Kurihara, Ken-ichi Miura, Jyunpei Kobata and Takayuki Nagataki, Effects of Indentation Cycles on Damage of DLC Films through Cyclic Indentation Tests, 査読無, Proceedings of The 7th International Conference on Manufacturing, Machine Design and Tribology, 2017, 24-24.

[学会発表] (計 3 件)

① 中村守正, CYCLIC INDENTATION TEST FOR EVALUATING STRENGTH OF DLC FILMS, The JSME International Conference on Motion and Power Transmissions MPT2017 (国際学会), 2017.

② 中村守正, Effects of Indentation Cycles on Damage of DLC Films through Cyclic Indentation Tests, The 7th International Conference on Manufacturing, Machine Design and Tribology (国際学会), 2017.

③ 中村守正, 繰返し押付け試験による DLC 膜の強度評価 押付け速度の影響, 2017 年度砥粒加工学会 学術講演会, 2017.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.cis.kit.ac.jp/~sfglab/researches.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中村 守正 (NAKAMURA, Morimasa)

京都工芸繊維大学・機械工学系・准教授

研究者番号：00464230

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

なし