

令和 5 年 6 月 26 日現在

機関番号：55501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19K04161

研究課題名(和文)自己潤滑性の高い軟質金属と硬質炭素のナノ複合構造化による摩擦界面温度センサの創製

研究課題名(英文) Creation of thermo-sensing element acting in frictional interface by means of nanocompositing of diamond like carbon and soft metal with self-lubricating ability

研究代表者

後藤 実 (GOTO, Minoru)

宇部工業高等専門学校・機械工学科・教授

研究者番号：00435455

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：金(Au)、銀(Ag)、銅(Cu)の軟質金属(SMe)とダイヤモンドライクカーボン(DLC)の組成比を広範囲に制御した複合膜(SMe-DLC)が調製可能な成膜法を確立し、SMeの膜中濃度と膜の構造および機械的性質の関係を調査し、摩擦・摩耗特性との関係を明らかにした。その結果、膜中のSMe含有量を変化させることで大気中における摩擦・摩耗特性と電気的性質を最適化させることを明らかにした。透過電子顕微鏡(TEM)を用いて膜厚1 μ m未満のSMe-DLCによる摩耗量の定量評価を行う方法を提案し、温度変化に対する電気特性評価を行うための4端子プローブ型比抵抗測定装置を製作した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

SMe-DLCの組成・ナノ構造と抵抗率の温度依存性および摩擦・摩耗特性の関係を明らかにし、SMe-DLCの温度センサ機能と摩擦・摩耗特性を最適化すると共に、その評価法を確立する。トライボロジーとデバイス工学を融合した本研究課題の推進により、実働機械の複雑な運転状態における摩擦過程をリアルタイムで最適化し、機械摺動部の摩擦によるエネルギー損失を最小化するためのトライボロジーシステム設計技術の確立に資する。

研究成果の概要(英文)：A deposition method that can prepare a soft metal/diamond-like carbon nanocomposite film (SMe-DLC) controlled over a wide range of the composition ratio of gold (Au), silver (Ag), and copper (Cu) has been demonstrated. We investigated the relationship between the concentration of SMe in the SMe-DLC and the structure, mechanical properties, and clarified the relationship with the friction and wear properties. As a result, it was demonstrated that the friction/wear properties and electrical properties in the atmosphere could be optimized by changing the SMe content in the film.

We also proposed a method to quantitatively evaluate the amount of wear due to SMe-DLC with a film thickness of less than 1 μ m using a transmission electron microscope (TEM), and have developed a four-terminal probe type resistivity measurement apparatus for determining temperature dependency of electrical conductivity under various atmospheres.

研究分野：トライボロジー

キーワード：トライボロジー ナノ複合膜 金 銀 銅 複合ターゲット

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

省エネをはじめとする環境性能の向上には、動力系などの機械摺動部の摩擦によるエネルギー損失の低減が必須である。機械摺動部の摩擦界面では、見かけの接触面積よりも極めて小さいナノメートル尺度の真実接触部における複雑な物理的・化学的状態変化(摩擦界面反応)が摩擦・摩耗現象を支配する(図1)(木村好次、岡部平八郎: トライボロジー概論, 養賢堂 1982等)。例として、自動車用エンジンでは、エンジン油由来成分と摺動部材の摩擦界面反応で生じる摩擦界面ナノ反応層の作用により、摩擦損失が低減されている(加納他、トライボロジスト Vol 48, No. 1 2003 p.54等)。摩擦界面ナノ反応層の性状を決定する重要なパラメータは、反応過程を支配する摩擦界面の温度と高い圧力である。摩擦界面のエネルギー損失を最小化するためには、時々刻々変化する実機稼働条件において真実接触部の界面温度をリアルタイムで計測し、摩擦損失が最小化するような摩擦界面ナノ反応過程となる界面温度に制御する必要がある。しかし、現在は耐摩耗性の高い素子材料が無いので、摺動部の裏側から穴をあけて摩擦面直下~mmレベルの温度を熱電対や測温抵抗体で計測しているにすぎない。ナノメートル尺度の真実接触部における摩擦界面温度を直接計測するためのセンサの素子は、自身が薄くなければならない上に高い耐摩耗性が必須である。その候補材料として、近年、低摩擦係数・高耐摩耗性を示す薄膜摺動材料として注目されている非晶質硬質炭素膜のダイヤモンドライクカーボン膜(DLC)に着目した。DLCの研究は、主に摩擦係数をさらに低下させたエネルギー損失の低減に着目されている(J. Hershberger et al., Surface and Coatings Technology 183, 2004 p. 111等)。その摩擦・摩耗特性を一層向上させるため、様々な元素を添加する研究(M. GOTO, Int. J. Mech. Mater. Des., Vol. 14 2018 p. 313等)も国内外で盛んに行われ、珪素(Si)等を添加した実用化例(林田一徳: JTEKT Engi. J. No. 1007 2009 p.8等)も報告されている。一方、Bozhkoらの研究では添加金属の電気的性質に着目して、金属元素(Me)をDLCへ添加したMe/DLCナノコンポジット膜が、膜のナノ構造に基づく比抵抗の温度依存性によって温度センサ機能を発現し得ることを見出した(A. Bozhko, et. al.: J. Phys. Cond. Matt. Vol. 16 2004 p.8447等)。しかし、それらの研究は測温機構についての電気的性質についてのみ着目したもので、摩擦界面の高面圧・高せん断速度場への適用は検討されていない。

そこで、申請者は、添加金属としてSiなどよりも、むしろ硬度の低い軟質金属(SMe)に着目した。もともと、金と銀は固体潤滑剤として宇宙等の極限環境下で優れた自己潤滑性・電気伝導性を示すことから、人工衛星や真空機器等の潤滑油が使用できない極限環境で使用され、微量の銀を添加した銅は実際のエンジン軸受材として実用化されている。従って、金(Au)・銀(Ag)等の自己潤滑性・電気伝導性と、DLCの高耐摩耗性とのシナジー効果による温度センサの耐久性と測定感度の飛躍的な向上が期待できる。

2. 研究の目的

本研究の核心をなす学術的「問い」は、実際の機械要素摺動面に実装可能で、ナノスケールの真実接触部の摩擦界面温度を「その場」計測可能な高耐久性 in-situ 摩擦界面薄膜温度センサ素子を、SMe/DLCナノコンポジット膜(SMe-DLC)のシナジー効果によって創製するための必要条件を明確化することである。

上記の学術的「問い」を受け、本研究の目的は次の三つである。

- ・ 温度センサの感度・帯域特性と耐摩耗性の関係を明らかにする。
- ・ DLCと軟質金属のナノ複合構造化による耐摩耗性のシナジー効果を明らかにする。
- ・ 摩擦形態と摩擦環境が耐摩耗性に与える影響を明らかにする。

以上の目的を達成するために、

- ・ SMe-DLCの組成・ナノ複合構造と比抵抗の温度依存性との関係を明らかにする。
- ・ SMe-DLCのナノ複合構造化による耐摩耗性との関係を明らかにする。
- ・ SMe-DLCの温度センサ機能と摩擦・摩耗特性の最適化のための評価法を確立する。

3. 研究の方法

<平成31年(令和元年)度>

- ・ 金(Au)を中心としたSMe-DLCの成膜法を確立し、その組成・ナノ構造と機械的性質の関係を明らかにする

SMe-DLCの成膜には本研究予算で新規に自作する成膜装置を使用するが、装置立上げまでは使用実績がある山口大学研究推進機構所有(山口大解放機器)の成膜装置を使用する(M. GOTO, Int. J. Mech. Mater. Des., Vol. 14 2018 p. 313等)。SMe-DLCの組成・ナノ構造・機械的性質は山口大解放機器および山口県産業技術センター解放機器(山口産技機器)を使用して評価する。尚、膜の硬さ・ヤング率についてはリヨン工科大(ECL)トライボロジー研究所(LTDS)の海外研究協力者 Fontaine の協力を得て

LTDS 設備も使用する。これらの実施内容は申請者後藤が担当する。

- ・ Au を中心とした SMe-DLC の組成・ナノ構造と摩擦・摩耗特性の関係を明らかにする
申請者が所有する往復動摩擦・摩耗試験機を使用し、摺動相手材は主として SUJ2 ベアリング鋼球を使用する。これらの実施内容は申請者後藤が担当する。
- ・ SMe-DLC の比抵抗の温度依存性計測用の耐熱性四探針プローブを開発する
分担者所有の比抵抗測定装置で使用可能な寸法形状とし、570K まで計測可能な耐熱プローブを自作する。材料加工は所属機関の実習工場設備を利用する。これらの実施内容は分担者仙波が担当する。

< 令和 2 年度以降 >

- ・ SMe-DLC の摩擦形態による摩擦・摩耗特性への影響を明らかにする（後藤担当）
東北大の研究協力者三木・武田の協力および、Fontaine の協力によりこれらの所属機関が所有する摩擦試験機を使用したラウンドロビンテストとする。
- ・ SMe-DLC の組成・構造と比抵抗の温度依存性を明らかにする（仙波担当）
前年度開発した耐熱性四探針プローブを分担者装置に実装して実施する。
- ・ 温度センサ機能の感度特性と摩擦・摩耗特性を最適化し、評価法を確立する
申請者と分担者の成果を融合し、本研究課題の最終的な結論を導く。また、必要に応じて三木・武田・Fontaine の協力を得る。

4. 研究成果

(1) 軟質金属 (SMe) とダイヤモンドライクカーボン (DLC) 複合膜 (SMe-DLC) の成膜法を確立することを目標とし、直径 10 mm の金 (Au) タブレットを直径 50 mm の炭素ターゲット上に同心円状に配置した同心円複合ターゲットを使用した高周波マグネトロンスパッタ法により Si (100) 基板上に Au-DLC の成膜を行い、RF 出力が 125 W および 175 W の成膜条件下で成膜時基板温度 323 K および 423 K における成膜速度、内部応力および Au 含有率を調査した。その結果、RF 出力および基板温度共に高い方が成膜速度が高くなり、エネルギー分散 X 線分光分析によって求めた Au 含有量は低下する傾向が認められた。成膜後の Au-DLC の内部応力は、RF 出力が高い条件で成膜した場合に、基板温度が高い方が半減する結果となった。

(2) SMe-DLC の電気特性評価を行うため、比抵抗測定用の 4 端子プローブを自作し、真空容器内部に組み込んだ装置を作成した。真空槽内で雰囲気制御を行うことにより、高温条件における酸化劣化を生じさせない条件で電氣的性質の評価が可能になるようにした。

(3) SMe-DLC のナノ構造解析に関して、成膜時基板温度が 323 ~ 423 k の範囲で成膜した Cu 含有量 7 ~ 57at. % の Cu-DLC のナノ構造を透過電子顕微鏡 (TEM) によって明らかにした。その結果、Cu 含有量が高い場合には成膜時基板温度の違いで膜のナノ構造が変化することが確認された。また、Ag-DLC と Cu-DLC の金属含有量と結晶配向性の関係について X 線回折法を用いて調査した結果、金属含有量の増加に伴って < 111 > 配向性が強まり、ドメインサイズも増加することを確認した。

(4) SMe-DLC の摩擦・摩耗特性に関して、TEM を用いて SMe-DLC の摩耗率を評価する手法を新たに提案し、摩擦試験における摩擦仕事と摩耗特性の関係を明らかにした。

(5) 軟質金属 (SMe) とダイヤモンドライクカーボン (DLC) 複合膜 (SMe-DLC) の成膜法を確立することを目標とし、直径 10 mm の金 (Au) タブレットを直径 50 mm の炭素ターゲット上に同心円状に配置した同心円複合ターゲットを使用した高周波マグネトロンスパッタ法により Si (100) 基板上に Au-DLC の成膜を行い、RF 出力が 125 W および 175 W の成膜条件下で成膜時基板温度 323 K および 423 K における成膜速度、内部応力および Au 含有率を調査した。その結果、RF 出力および基板温度共に高い方が成膜速度が高くなり、エネルギー分散 X 線分光分析によって求めた Au 含有量は低下する傾向が認められた。成膜後の Au-DLC の内部応力は、RF 出力が高い条件で成膜した場合に、基板温度が高い方が半減する結果となった。

(6) SMe-DLC のナノ構造解析に関して、成膜時基板温度が 323 ~ 423 k の範囲で成膜した Cu 含有量 7 ~ 57at. % の Cu-DLC のナノ構造を透過電子顕微鏡 (TEM) によって明らかにした。その結果、Cu 含有量が高い場合には成膜時基板温度の違いで膜のナノ構造が変化することが確認された。また、Ag-DLC と Cu-DLC の金属含有量と結晶配向性の関係について X 線回折法を用いて調査した結果、金属含有量の増加に伴って < 111 > 配向性が強まり、ドメインサイズも増加することを確認した。

(7) 同心円複合ターゲットを使用した高周波マグネトロンスパッタ法により Si (100) 基板上に RF 出力が 125 W および 175 W の成膜条件下で成膜時基板温度 323 K および 423 K において膜厚 500 nm ± 10% の Au-DLC を成膜し、

膜のナノ構造および大気中室温における摩擦・摩耗特性を調査した。

その結果、透過電子顕微鏡で観察した Au 含有量 24at.% の Au-DLC のナノ構造は粒径 5 ~ 10 nm の Au 微結晶粒子が DLC マトリクス中に分散したナノコンポジット構造であることが確認され、これまで研究を行ってきた Ag-DLC および Cu-DLC と同様のナノ構造を示すことがわかった。

(8) 垂直荷重が 0.5-5 N の範囲において、Au-

DLC の真鍮球に対する摩擦係数は 0.3-0.7 程度の比較的高い値を示す一方、しゅう動相手材が SUJ2 球の場合は 0.2 程度の安定した値を示すことがわかった。Au-DLC の摩擦・摩耗特性は Cu-DLC の場合と類似の傾向を示すが、特に SUJ2 に対しては荷重によらず非常に安定した摩擦係数を示した。さらに、X 線回折による Cu-DLC 内部の Cu 微結晶の配向性評価の結果、膜中 Cu 濃度の増加に伴い Cu<111>面内配向性が増加し、面内配向性の増加と摩擦係数の低下に相関がみられた。

(9) 同心円複合ターゲットを使用した高周波マグネトロンスパッタ法により Si (100) 基板上に RF 出力が 125 W ・成膜時基板温度

323 K において膜厚 500 nm ± 10% の Au-DLC を成膜し、大気中室温における JIS SUJ2 鋼球との摩擦・摩耗試験を実施して摩擦係数推移を求め、同一金属含有量の Cu-DLC との比較を行った。その結果、Au 濃度 24at.% の Au-DLC は垂直荷重 0.5 ~ 5 N の範囲において摩擦係数 0.2 前後の値を示し、荷重変化に対する変動も垂直荷重 5 N のときの摩擦係数に対して 20% 程度であることに対し、Cu 濃度 21at.% の Cu-DLC の摩擦係数は垂直荷重 0.5 ~ 5 N の範囲において 0.25 ~ 0.5 程度の範囲で変化し、荷重変化に対して 100% 程度の大きな変動を示した。摩擦試験後にしゅう動相手材である SUJ2 鋼球上の摩擦面を光学顕微鏡で観察した結果、Au-DLC と摩擦した摩擦面においては金色のトライボフィルムがいずれの垂直荷重条件においても接触面積のほぼ全域に形成されている一方、Cu-DLC と摩擦した摩擦面では銅色のトライボフィルムが部分的に残存しており、荷重が低いほど接触面積に対するトライボフィルムの被覆率が低下する傾向が見られた。

(10) 同心円複合ターゲットを使用した高周波マグネトロンスパッタ法により Si (100) 基板上に Au 含有量が異なる膜厚 500 nm ± 10% の Au-DLC を成膜し、大気中室温における JIS SUJ2 鋼球との摩擦・摩耗試験を実施して摩擦係数推移を求め、前年度開発した透過電子顕微鏡 (TEM)

による摩耗量の定量評価を行い、同一金属含有量の Cu-DLC との比較を行った。その結果、摩擦開始初期においては垂直荷重 0.5 ~ 5 N の範囲において Au 濃度が増加するほど Au-DLC は摩擦係数は減少傾向を示すが、Au 含有量 20at.% 台の場合と 40at.% 台の場合ではほぼ同水準の値を示した。一方、摩擦距離が増加すると Au 含有量 10at.% 台および 40at.% 台の膜の摩擦係数は上昇するのに対し、Au 含有量 20at.% 台の場合は変化は見られなかった。摩擦試験後の摩擦面を光学顕微鏡で観察した結果、しゅう動初期の SUJ2 鋼球摩擦面においては Au を主成分とするトライボフィルムがいずれの垂直荷重条件においても形成されている一方、Au 含有量が 10at.% 台の場合はしゅう動距離の増加に伴いトライボフィルムの被覆率が低下する傾向が見られた。また、Au 含有量 40at.% 台の場合は膜の摩滅による摩擦係数上昇が発生しやすくなることを確認できた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 M. Goto, M. Maruyama	4. 巻 10
2. 論文標題 QUANTITATIVE INVESTIGATION OF WEAR PROPERTIES OF SOFT-METAL/DLC NANOCOMPOSITE BY TRANSMISSION ELECTRON MICROSCOPY	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Proceedings of BALTRIB ' 2019	6. 最初と最後の頁 237-242
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計15件（うち招待講演 0件/うち国際学会 8件）

1. 発表者名 Minoru Goto, Shinya Senba, Sho Takeda, Hiroyuki Miki, and Yoshinori Takeichi
2. 発表標題 Quantitative study on correlation between wear behavior and frictional energy of soft-metal/DLC nanocomposite coatings by transmission electron microscopy
3. 学会等名 WTC2022（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Minoru Goto, Hiroyuki Miki, Kosuke Ito, Sho Takeda
2. 発表標題 Study on the function of Au-DLC nano-composite coatings acting as thermo-sensor in the sliding interface under severe corrosive conditions
3. 学会等名 ICFD2022, AFI-2022（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤本 大輝, 後藤 実, 竹市 嘉紀
2. 発表標題 SUS 基板上に成膜した銅含有DLC 膜の研削面粗さによる剥離抑制効果と摩擦・摩耗特性
3. 学会等名 先進的技術シンポジウム(ATS2022)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Minoru Goto, Hiroyuki Miki, Kosuke Ito, Sho Takeda
2. 発表標題 Study on the function of Au-DLC nano-composite coatings acting as thermo-sensor in the sliding interface under severe corrosive conditions
3. 学会等名 AFI-2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 後藤 実
2. 発表標題 収束イオンビームによる 軟質金属DLCナノコンポジット膜の 薄片化と透過電子顕微鏡による 摩耗特性の定量評価
3. 学会等名 関西潤滑懇談会 7月例会 ポスター発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 後藤 実
2. 発表標題 Au/DLCナノコンポジット膜の乾燥摩擦係数におよぼすヘルツ接触圧力の影響
3. 学会等名 トライボロジー会議2021秋 松江
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 賀 梨乃, 藤本 大輝, 後藤 実, 磯村 昇吾, 竹市 嘉紀
2. 発表標題 軟質金属含有硬質炭素膜による高温固体潤滑薄膜材料の研究
3. 学会等名 先進的技術シンポジウム(ATS2021)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Minoru Goto, Hiroyuki Miki, Kosuke Ito, Sho Takeda
2. 発表標題 Study on the function of Au-DLC nano-composite coatings acting as thermo-sensor in the sliding interface under severe corrosive conditions
3. 学会等名 ICFD2021, AFI-2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 田中 佑弥, 綿田 知明, 後藤 実
2. 発表標題 Ag-DLCナノコンポジット膜の摩擦特性に及ぼすポリイミド中間層の影響
3. 学会等名 トライボロジー会議 2020 秋 別府
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 綿田 知明, 田中 佑弥, 後藤 実
2. 発表標題 Cu/DLCナノコンポジット膜の摩擦特性と内部Cuナノ結晶の配向性の関係
3. 学会等名 トライボロジー会議 2020 秋 別府
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Minoru GOTO and Masataka MARUYAMA
2. 発表標題 Correlation between the characteristic behavior of soft-metallic nano-crystals in the soft-metal/DLC nanocomposite coatings and the tribological properties
3. 学会等名 ICMDT 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山田裕貴, 後藤実
2. 発表標題 Cu/DLCナノコンポジット膜の成膜基板温度による構造変化と摩擦・摩耗特性および電気抵抗の関係
3. 学会等名 関西潤滑懇談会 7月例会 ポスター発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Minoru Goto, Masataka Maruyama, Hiroyuki Kosukegawa, Hiroyuki Miki
2. 発表標題 Quantitative Evaluation on Wear Properties of copper/DLC Nanocomposite Coatings by Transmission Electron Microscopy
3. 学会等名 ITC2019Sendai (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Minoru Goto, Toshiyuki Takagi, Kosuke Ito, Hiroyuki Miki, Hiroyuki Kosukegawa
2. 発表標題 Study on the function of Me-DLC nano-composite coatings acting as thermo-sensor in the sliding interface
3. 学会等名 ICFD2019 AFI-2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Goto, M. Maruyama
2. 発表標題 QUANTITATIVE INVESTIGATION OF WEAR PROPERTIES OF SOFT-METAL/DLC NANOCOMPOSITE BY TRANSMISSION ELECTRON MICROSCOPY
3. 学会等名 The 10th International Conference BALTRIB'2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	仙波 伸也 (Senba Sinya) (40342555)	宇部工業高等専門学校・電気工学科・教授 (55501)	耐熱四探針プローブの開発と 比抵抗の温度依存性解明

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
フランス	LTDS	Ecole Centrale de Lyon		
マレーシア	Universiti Teknologi MARA			