

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 23 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22360043

研究課題名（和文） 動的圧縮せん断力を利用した粉末の常温固化プロセス及び固体潤滑機能層の創出

研究課題名（英文） Development of the dynamic molding process of powder particles at room temperature and creation of a functional material with solid lubricity

研究代表者

三木 寛之（MIKI HIROYUKI）

東北大学・学際科学国際高等研究センター・准教授

研究者番号：80325943

研究成果の概要（和文）：本研究は金属粉や炭素と金属の複合材料粉に圧縮力とせん断力を同時に作用し、薄片（膜）状に固化する現象に関する研究である。本事業では、圧縮せん断法による成型物と摩擦摺動面に形成される移着層の形成プロセスの類似性を明らかにし、動的過程による結晶粒微細化プロセスの有用性および本手法による材料創成の可能性を示すことが出来た。

研究成果の概要（英文）：We studied the phenomenon which solidifies a metal powder or the composite material powder of carbon and metal in the shape of a thin piece (film) with working compressive and lateral force simultaneously. As a result, we have clarified both similarity between the molding under the simultaneous reaction of two different forces and the sliding process from microstructural and mechanical analysis. Accordingly, we showed the possibility of the formation of detailed crystal grain by a dynamic molding process and novel material creation.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	4,300,000	1,290,000	5,590,000
2011年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2012年度	2,200,000	660,000	2,860,000
年度			
年度			
総計	9,200,000	2,760,000	11,960,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学

キーワード：マイクロ材料力学、トライボロジー、複合材料・物性、材料加工・処理

1. 研究開始当初の背景

研究代表者等は硬質炭素膜による低摩擦摺動と常温圧縮せん断による粉末固化プロセスの研究を個別に行っていた。しかし、近年になって金属を分散させた硬質炭素膜と金属の間で低摩擦性を示すものは接触界面に金属を主成分とする薄片が形成されることを見出し、摩擦力による材料創生について新たな着想を得た。

炭素膜の摺動によって生じる摩耗粉は炭

素と金属の混合物であり、凝集体には炭素が多く含まれていることが予想された。しかし、実際には金属を主体とする薄片が形成され、さらにこの金属複合体薄片には安定した低摩擦性が見出された。

この現象は圧縮せん断法による粉末固化プロセスと極めて類似しており、加熱、焼結することなく金属薄片が形成される点で共通している。その結果、これらの類似性と相違点から基本原理を見出すことにより、新し

い材料創生プロセスを確立できると考えるに至った。

個々の研究の背景について以下に述べる。

(1) 固体潤滑複合材料による低摩擦現象の発現

現在、高硬度薄膜材料として産業界で特に注目されているものとして **Diamond Like Carbon** (ダイヤモンド状炭素：以下 **DLC**) と総称される非晶質炭素系薄膜材料がある。**DLC** は炭素あるいは炭素と酸素、水素などを含有する材料である。「硬質材は高摩擦」という一般的傾向に反して **DLC** は耐摩擦かつ低摩擦であることが最大の特徴であり、自動車部品や時計などの民生品に広く使われるようになった比較的新しい技術である。

従来の固体潤滑剤の多くは、層状構造を有しているか、または、構造は層状ではないが非常にせん断強さが小さいといった特徴があるため、添加後はすぐに潤滑効果を表すが徐々に効果が薄れて行く傾向が多く、長期にわたる信頼性が問題になる場合がある。これに対し、**DLC** に代表される、ダイヤモンドあるいはそれに似た構造を持つ硬度の高い炭素膜を金属面に被覆することで摺動部の摩擦を低減し、初期の性能を保つことが可能と考えられている。しかし、**DLC** では湿度や摩擦粉の生成などにより摩擦特性が不安定になることが知られており、本格的な普及に至っていない。

研究代表者は **DLC** 膜の固体潤滑膜としての可能性を研究し、金属添加 **DLC**(**Me-DLC**) における摩擦摩耗特性に関する論文を発表している。**DLC** 膜に金属を添加する手法は、一般に **DLC** 膜内部の応力を緩和し、基板との密着強度を向上する効果があると理解されているが、研究グループでは金属添加によって本来絶縁膜である **DLC** 膜に電気伝導性を付与されることに着目し、極薄膜センサなどの新技術への応用を試みている。この **Me-DLC** の導電性と接触の制御に関する研究において、良好な導電性を有し、なおかつ安定した低摩擦・低摩耗を示す摺動には、**Me-DLC** から生じる微量の摩擦粉が相手材に移着膜(トライボ膜)を形成することが必要であるとの結果を得ている。

このように、膜中に分散したナノクラスタ金属が摺動のプロセスを通じて接触面間に凝集し、摺動による圧縮あるいはせん断力により固化(移着膜を形成)する現象が見出されているが、生成プロセスは理解されていなかった。

(2) 圧縮せん断法による粉末固化成形プロセスの開発

Hall-Petch の経験則で知られるように、金属組織の結晶粒は小さければ小さいほど材

料強度が増すことになる。従って、微細結晶粒化は材料強度を向上させるために有効な手段である。研究代表者等は、室温では固化成形が困難なアルミニウム粉末に対して、圧縮せん断力を利用することで結晶粒の成長を抑制し、粉末を固化することができるプロセスを考案している。圧縮せん断法を用いることで、ナノメートルオーダーの結晶粒を有する金属あるいは金属基複合材料を薄板状に固化成形することが可能になる。

また、本手法は添加剤を用いないので容易に金属材料をリサイクル処理可能であることが特徴である。

2. 研究の目的

本研究は接触する2面間で圧縮力とせん断力を同時に受ける金属粉あるいは炭素と金属の複合材料粉が固化し薄片(膜)状になる現象の生成メカニズム解明に関する研究である。この薄膜は以下の2つのプロセスによって生成される。①硬質炭素複合材料膜と摺動相手材金属の摩擦境界面に生成され、無潤滑で低摩擦を発現する②常温大気中で粉末に圧縮せん断力を与えることにより、加熱あるいは通電することなく膜(薄片)得られる。本研究では、2つのプロセスに共通する圧縮力とせん断力の作用により微粒子が固化するプロセスを解明し、接触面に固体潤滑膜を形成する低摩擦材料及び粉末を常温大気雰囲気中で固化する新しい材料プロセスを利用した高機能複合材料を開発することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 安定した移着層形成の条件探索

異なる金属を分散させた **Me-DLC** によるピンオンディスク試験により安定した低摩擦発現の条件を定量的に評価する。硬質膜の機械的特性及び導電性、表面粗さ及び相手材の材質及び表面粗さによる影響を総合的に考察し、硬質炭素膜の組成パラメータと低摩擦発現(移着層形成)条件との相関について議論する。

添加する金属については固体潤滑剤として用いられることもある金、銀などの軟質金属及び耐摩耗性や化学的安定性に優れた白金系金属(**Pt**, **Ir**, **Ru** 等)を添加する。前者は軟質材を用いた積極的な内部応力緩和による耐剥離性の向上並びに固体潤滑剤としての役割を意図し、後者は耐荷重性の向上を意図し、被膜の硬度を維持し低摩擦係数を得ることを目的としている。

(2) 移着層及び摩擦痕の微細構造分析

安定化した低摩擦を実現した摩擦痕および移着膜のナノ組織分析を行う。摩擦挙動と結晶の微細構造の関係評価を行い、(1)で得

られた試験片の特性を物性の観点で定量的に評価する。試験初期と試験後期の摩耗粉の状態の違いや、含有金属種や金属量による摩耗粉の違いなどを走査電子顕微鏡(SEM)、原子間力顕微鏡(AFM)、透過電子顕微鏡(TEM)等のミクروسケール評価を実施する。また、摩耗粉と移着膜の関係性評価のためのマクロ領域評価を行う。

(3) 圧縮せん断法による薄板の形成パラメータの確立及び微細構造分析

(1)-(2)の摩擦試験によって示された、移着膜形成条件をもとに、試験環境と同じ環境下において、圧縮せん断法による固化成形膜を作成し、摩耗粉を金属粉に代表させた成型パラメータを抽出する。また、2)と同様に生成された金属膜の微細構造分析を実施する。

以上、(1)-(3)の知見を反映した現象論パラメータをもとに、摺動による移着膜形成と圧縮せん断力による粉末の固化現象をモデル化する。

4. 研究成果

(1) 安定した移着層形成の条件探索

異なる金属を分散させた Me-DLC によるピンオンディスク試験により安定した低摩擦発現の条件を定量的に評価した。硬質膜の機械的特性及び導電性、表面粗さ及び相手材の材質及び表面粗さによる影響と膜形成条件を考察し、硬質炭素膜の組成パラメータと低摩擦発現(移着層形成)条件との相関について定性的に評価した。炭素複合膜の硬度を維持しつつ低摩擦係数を得る組成条件を見出した。

(2) 移着層及び摩擦痕の微細構造分析

硬質炭素複合材料膜とその摺動面に形成される金属移着層について、摩擦時のせん断挙動と結晶の微細構造の関係評価を行った。ここでは、炭素複合膜に含有する金属種や組成比による摩耗粉の違い、摩耗痕の状態を分析し、摺動相手材に移着するのは主に金属成分であり、摩耗粉を構成する炭素成分は移着しないことを明らかにした(図1)。

また、摩耗粉あるいは摩擦接触面の酸化膜

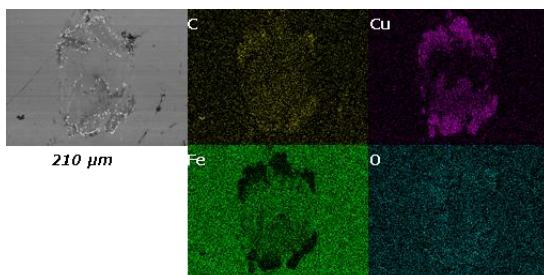


図1 Cu-DLC における選択的の移着層の形成(EDS分析)

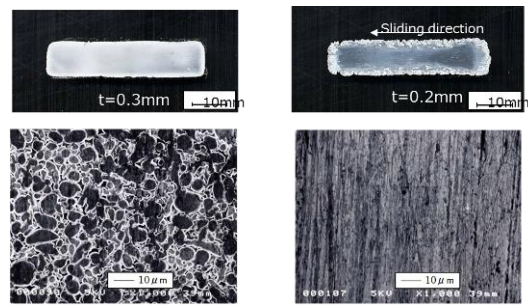


図2 Al における単軸圧縮(左)と圧縮せん断(1mm)成型体の表面顕微鏡観察写真

による影響を排除するために高真空環境における摩擦摩耗試験およびその場分析装置による固化プロセスの解析を行い、金属種によって摩擦摩耗挙動に雰囲気依存性があることも明らかにした。

(3) 圧縮せん断法による薄板の形成パラメータの確立及び微細構造分析

硬質炭素複合材料膜の摺動では金属以外にも炭素や炭化物、金属酸化物が摩耗粉として固化されるため、固化プロセスの解明には核となる現象の抽出が必須である。そのため、圧縮せん断法による軟質金属(Al)や脆性硬質金属(Si)に関する固化条件に関する制御パラメータから、純金属単一組成粉での固化及び複合粉末の固化成形プロセスを定量的に比較・評価した。図2に単軸圧縮およびせん断距離が1mmの成型体の顕微鏡写真を示す。単軸圧縮成型体では小さな空隙が多数みられるが、せん断成型体では緻密に成型されていることが見て取れる。

ここでは、(1)-(2)の摩擦試験によって示された移着膜との類似性を考慮し、圧縮せん断法による固化成形膜を作成し、機械的特性ならびに微細構造分析を行った。Me-DLCの摺動では金属以外にも炭素や炭化物、金属酸化物が摩耗粉として固化されるため、金属混合粉や酸化粉の複合粉末の固化成形プロセスを定量的に評価した。その結果、圧縮せん断法による板状成型物の形成条件と微細構造解析ならびに機械的特性評価の相関を明らかにした。

以上の結果から、圧縮せん断法による成型物と摩擦摺動面に形成される移着層の形成プロセス・微細構造解析と機械的特性評価をから双方の類似性を明らかにし、動的過程による結晶粒微細化及び固化プロセスと材料創成の可能性を示すことが出来た。

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 9 件)

- ① 堀田将臣、中山昇、三木寛之、宮崎孝道、武石洋征、常温圧縮せん断法により成形した Ti/Al 薄板の引張特性に及ぼすミリング時間の影響、塑性と加工、査読有、54 巻、2013 年、81-185
<http://dx.doi.org/10.9773/sosei.54.181>
- ② 堀田将臣、中山昇、三木寛之、宮崎孝道、武石洋征、常温圧縮せん断法により成形された純 Ti 薄板の微細組織、塑性と加工、査読有、54 巻、2013 年、186-190
<http://dx.doi.org/10.9773/sosei.54.186>
- ③ 中山昇、堀田将臣、三木寛之、宮崎孝道、武石洋征、常温圧縮せん断法により成形した純 Al 薄板の微細組織に及ぼす粉末粒径、塑性と加工、査読有、54 巻、2013 年、191-195
<http://dx.doi.org/10.9773/sosei.54.191>
- ④ Masaomi Horita, Noboru Nakayama, Naoto Saito, Hiroyuki Miki, Takamichi Miyazaki, Hiroyuku Takeishi, Effect of Shearing Strain on Mechanical Properties of Titanium Thin Plate by Compression Shearing Method at Room Temperature, steel research international - Metal Forming 2012, 査読有, 2012 年, 803-806
- ⑤ Hiroyuki Miki, Noboru Nakayama, Hiroyuku Takeishi, Dynamic Molding of Powder Particles at Room Temperature, Materials Science Forum, 査読有, 706-709 巻, 2012 年, 1955-1960
[doi:10.4028/www.scientific.net/MSF.706-709.1955](http://dx.doi.org/10.4028/www.scientific.net/MSF.706-709.1955)
- ⑥ Noboru Nakayama, So Kato, Hiroyuku Takeishi, Hiroyuki Miki, Consolidation of Ti Powder by a Compression Rotation Shearing System at Room Temperature -Effect of pivot rotation speed on consolidation-, Advanced Materials Research, 査読有, 409 巻, 2012 年, 3-8
[doi:10.4028/www.scientific.net/AMR.409.3](http://dx.doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.409.3)

[学会発表] (計 66 件)

- ① Hiroyuki Miki, Noboru Nakayama, Hiroyuku Takeishi, A Novel Method of Solidifying Powered Material by Compression Shearing Method at Room Temperature, The 3rd International Symposium on Advanced Composite Materials, 2012 年 11 月 13 日、東京
- ② Syou Takeda, Noboru Nakayama, Masaomi Horita, Shintaro Abe, Hiroyuki Miki, Hiroyuku Takeishi, Fabrication of Ti/Al Composite Material by Compression Shearing Method at Room Temperature, The Twelfth International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration (AFI/TFI2012), 2012 年 9 月 20 日、仙台
- ③ Hiroyuki Miki, Toshiyuki Takagi, Takanori Takeno, Koshi Adachi, Julien Fontaine, Michel Belin, Sandrine Bec, Thierry Le Mogne, Metal-Containing DLC: Toward a Smart Coating, The Twelfth International Symposium on Advanced Fluid Information and Transdisciplinary Fluid Integration (AFI/TFI2012), 2012 年 9 月 20 日、仙台
- ④ Masaomi Horita, Noboru Nakayama, Naoto Saito, Hiroyuki Miki, Takamichi Miyazaki, Hiroyuku Takeishi, Effect of Shearing Strain on Mechanical Properties of Titanium Thin Plate by Compression Shearing Method at Room Temperature, Metal Forming 2012, 2012 年 9 月 18 日、Krakow, Poland
- ⑤ Minoru Goto, Natacha Ruty, Vincent de Chillaz, Julien Fontaine, Takanori Takeno, Hiroyuki Miki, Michel Belin, The role of tribofilm growth on the frictional behavior of copper-diamond-like carbon nanocomposite coating, International Tribology Conference, Hiroshima 2011, 2011 年 10 月 31 日、広島
- ⑥ Hiroyuki Miki, Noboru Nakayama, Hiroyuku Takeishi, Toshiyuki Takagi, Friction properties of the molybdenum disulfide dispersed Al-Si-Cu-Mg based composite material prepared by the dynamic molding, 38th LEEDS-LYON SYMPOSIUM ON TRIBOLOGY, 2011 年 9 月 6 日、Lyon, FRANCE

- ⑦ Takanori Takeno, Julien Fontaine, Minoru Goto, Kosuke Ito, Hiroyuki Miki, Koshi Adachi, Michel Belin, Toshiyuki Takagi, Design and Deposition of Amorphous Carbon Nanocomposite Coatings for Tribological Application, International Conference on Metallurgical Coatings & Thin Films 38th ICMCTF, 2011年5月19日, San Diego, US
- ⑧ Julien Fontaine, Michel Belin, Toshiyuki Takagi, Hiroyuki Miki, Koushi Adachi, Takanori Takeno, Minoru Goto, Kosuke Ito, Tribological Behavior and Electrical Contact Resistance of Metal-Containing DLC Coating for electrically Conductive Tribo-Elements, IFS Collaborative Research Forum (AFI/TFI-2010), 2010年11月2日, 仙台
- ⑨ Hiroyuki Miki, Toshifumi Sugawara, Maxime Ruet, Kosuke Ito, Takanori Takeno, Julien Fontaine, Michel Belin, Toshiyuki Takagi, Tribological behaviour of nanocluster silicon-containing diamond-like carbon coatings under different load conditions, 5th International Conference on Surfaces, Coatings and Nanostructured Materials, 2010年10月20日, Reims, FRANCE
- ⑩ Koji Matsumoto, Takanori Takeno, Hiroyuki Miki, Tribological Properties of DLC films with Metal-doped Under Layer in Vacuum, 5th International Conference on Surfaces, Coatings and Nanostructured Materials, 2010年10月20日, Reims, FRANCE

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三木 寛之 (MIKI HIROYUKI)
東北大学・学際科学国際高等研究センター・准教授
研究者番号：80325943

(2) 研究分担者

高木 敏行 (TAKAGI TOSHIYUKI)
東北大学・流体科学研究所・教授
研究者番号：20197065

竹野 貴法 (TAKENO TAKANORI)
東北大学・工学研究科・助教
研究者番号：00451617

(3) 連携研究者

足立 幸志 (ADACHI KOSHI)
東北大学・工学研究科・教授
研究者番号：10222621

中山 昇 (NAKAYAMA NOBORU)
信州大学・工学部・准教授
研究者番号：80336445

松本 康司 (MATSUMOTO KOJI)
独立行政法人宇宙航空研究開発機構・総合技術本部・主任研究員
研究者番号：10470072

伊藤 耕祐 (ITOH KOSUKE)
日本大学・工学部・准教授
研究者番号：40420004