コーティング材スクラッチ試験における界面密着強度評価の試み*

武藤睦治^{*1}, 許金泉^{*1}, 宮下幸雄^{*1}
黒石友明^{*2}, 佐々木 優^{*3}

On Evaluation of Adhesive Strength in Scratch Test of Coating Materials

Yoshiharu MUTOH^{*4}, Jin-Quan XU, Yukio MIYASHITA,
Tomoaki KUROISHI and Yu SASAKI^{*4} Department of Mechanical Engineering, Nagaoka University of Technology,
1603-1 Kamitomioka, Nagaoka-shi, Niigata, 940-2188 Japan

Scratching test is widely used to examine the adhesive strength of coating materials where the adhesive strength is evaluated as the critical load. However, such a critical load depends on shape of diamond indenter, frictional condition, thickness and mechanical properties of coating layer, etc. The critical load criterion cannot provide a material characteristic evaluation but a relative evaluation. This study has proposed an evaluation criterion for adhesive strength, based on the interfacial shear stress induced by the indenter. An iterative analysis method has also proposed to obtain the interfacial stress by the FEM program ABAQUS, with taking account of the tangential force. It was found that the tangential force in the scratching, which is obviously independent of the adhesive strength, has a sever effect on the critical load. The smaller the tangential coefficient is, the higher the critical load becomes. Scratch tests were carried out under three test conditions with various frictional coefficients. It was found that the experiment results can be explained based on the criterion proposed.

Key Words: Contact Problem, Fracture Criterion, Material Testing, Finite Element Method, Ceramic Coating, Adhesive Strength, Scratch Test, Interface Stress

1 緒言

各種材料に対する特性改善あるいは機能性付与を目的とした表面改質手法の一つとして、コーティングが広く利用されつつある。コーティングを施した部材においては、基材に対し、薄膜状の異種材が接合された状態となる。したがって、コーティング膜が所要の特性・機能を発揮・保持するための前提として、基材と密着し、はく離しないことが基本となる。コーティング膜の密着強度の評価法についてはいくつかの提案があるが、工業的にはスクラッチ試験法が広く用いられている^{(1)~(3)}。

スクラッチ試験においては AE(Acoustic Emission) 信号あるいは摩擦力を検出し、押付け荷重の増加にともなう、それらの変化から、はく離発生に対応する臨界荷重を求め、これを密着性の目安としている。容易

に推察できるように、圧子押付け荷重と界面上における応力との間の関係には、圧子の形状・寸法、コーティング膜厚、基材とコーティング材の材料定数の組合せなどによる影響があり、したがって、臨界荷重では界面はく離強度を定量的に表すことができず、現状のスクラッチ試験は定性的な比較試験にとどまっている^{(4),(5)}。

これまで、コーティング材の強度・疲労特性に関する研究^{(6)~(11)}は多く行われているが、コーティング膜と基材界面のはく離の定量的評価に関する研究はきわめて少なく、特にスクラッチの際に生じる接線力(摩擦力)を考慮した研究は実験的にも解析的にもほとんど行われていない。

スクラッチ試験では通常の場合、界面はく離破壊を生じさせることができる。したがって、接線力を考慮した押付け荷重と界面上の応力の関係を解析的に求め、実験結果と組合せることにより、はく離破壊発生条件を明らかにすることができれば、現有の簡便なスクラッチ試験を相対比較試験から質的に異なる材料特性試験へと発展させることができる。本研究はその第一段

* 原稿受付 2001年7月26日。

^{*1} 正員、長岡技術科学大学工学部 (☎ 940-2188 長岡市上富岡町 1603-1)。^{*2} 松下電器産業(株)FA社 (☎ 409-3895 大阪府門真市大字門真 1006) (元:長岡技術科学大学大学院)。^{*3} アイシン精機(株)生産技術部 (☎ 448-8650 刈谷市朝日町 2-1) (元:長岡技術科学大学大学院)。

E-mail: mutoh@mech.nagaokaut.ac.jp

階として、同一コーティング材について摩擦係数を変化させたスクラッチ試験を行うとともに、接線力を考慮したスクラッチ試験の有限要素法解析を行い、これらの結果を総合し、界面はく離条件について検討した。さらに、膜厚および圧子形状の影響についても検討した。

2 スクラッチ試験

2.1 試験方法 スクラッチ試験は日本機械学会基準 JSME S010-1996 に準拠して行った。試験機の概要を図1に示す。AE センサと摩擦力センサが備え付けられている。ロックウエルダイヤモンド円錐圧子先端の半径は $200\mu\text{m}$ である。供試材は $6\times 6\times 40\text{mm}$ の角棒状高速度鋼基材(SKH57)の $6\times 40\text{mm}$ の面に PVD(物理蒸着, Physical Vapor Deposition)法により TiC をコーティングしたものを用いた。TiC 膜の厚さは $4.6\mu\text{m}$ である。材料定数を表1に示す。荷重負荷速度は 100 N/mm 、試験片移動速度は 10 mm/min である。スクラッチ試験は潤滑なしの場合と、切削油を試験片の膜表面に塗布した場合の2種類、さらに試験片移動なしの単純押込み実験と合せて計3種類、それぞれ3本以上の試験片を用いて行った。

2.2 試験結果 図2および3には代表的な AE 信号の検出結果と摩擦力の測定結果を示す。潤滑なしの場合、臨界荷重 (AE が検出され始める荷重) が 25 N であるのに対し、切削油を塗布した場合の臨界荷重は 30 N であった。一方、単純押込みの場合には AE が検出できなかったが、図4に示すレーザ顕微鏡観察写真から分るように、押込み荷重が 70 N のときは界面はく離が観察

されなかったが、 80 N のときには明らかに界面はく離が認められた(図4(b)矢印)。摩擦力-押付け荷重曲線分布の初期の傾きを摩擦係数として計算すると、潤滑なしの場合の摩擦係数は $\mu = 0.2$ であり、切削油を塗布した場合は $\mu = 0.15$ であった。

(a) AE signals

(b) Frictional force

Fig.2 Scratch test result without lubricant.

(a) AE signals

(b) Frictional force

Fig.3 Scratch test result with lubricant.

Fig.1 Schematics of the scratch test machine used.

Table 1 Materials constants.

Material	Young's modulus	Poisson's ratio
TiC coating layer	345 GPa	0.3
SKH57 substrate	206 GPa	0.3

また、単純押込みの場合は相対移動がないため、摩擦係数が 0 であると考えられる。図 5 にはスクラッチ試験後の圧痕の走査型電子顕微鏡 (SEM) による観察結果の一例 (潤滑なしの場合)、およびその模式図を示している。臨界荷重 L_c に達する前に、AE 信号としては検出されないがスクラッチ方向にほぼ平行に生じたヘアクラックが観察される。このヘアクラックは約 20 N の押付け荷重から発生している。臨界荷重に達すると、圧子前方の界面上にマクロ的なはく離が起こり、AE 信号の検出に対応している。

また、界面ははく離部分の後方には円周状のき裂が複数観察された。この膜に発生するヘアクラックや円周上き裂は、スクラッチ試験を膜の強度評価試験として利用できる可能性を示している。

以上の試験結果から、臨界荷重を密着強度とすると、その値は試験条件に依存し、スクラッチ時に生じる摩擦接線力が界面はく離に大きく影響していることが分る。本研究では摩擦力を変化させた実験のみを行ったが、圧子半径や形状および膜厚も臨界荷重の値に大きく影響を及ぼすと考えられる。

Fig.4 Laser microscope observations of indented surface in the indentation test.

(a) SEM observation of the scratch track

(b) schematic illustration of cracking and debonding along the scratch track.

Fig.5 Observations of the scratch track.

3 有限要素解析

3.1 モデルおよび解析手法 試験片の移動を考慮し、スクラッチ試験を静的問題として取扱うと、図 6 のようにモデル化できる。試験片寸法は圧子との接触域半径 r_0 に比べて無限大と見なせるので、全試験片に対して解析する必要がなく、その一部のみ取りだして解析すればよい。本試験では接触域半径 r_0 が数十 μm のオーダーであるので、解析には試験片を半径 300 μm 、長さ約 1.5 mm の円筒体として取扱った。この寸法が弾性学上十分大きいと考えられることは数値解析の結果から簡単に確認できる。すなわち、円筒の外縁の十分内側にある節点において、押付け力による応力がすでに消失し、しかも底面の十分上側にある $y = \text{Const.}$ 上の節点の y 方向変位がほぼ同一値とならなければならない。以下のすべての数値解析例において、この条件が満たされ、本解析モデルが十分大きいことを確認している。要素分割は対称性を利用して、図 7 に示すように行った。また、拘束条件として、底面全面の y 方向および中心点の 1 点のみで x 、 z 方向に変位を拘束した。ただし、接線力が生じているために、軸対称性が失われていることに注意が必要である。なお、用いた汎用有限要素法解析プログラム ABAQUS に準備されている摩擦要素またはギャップ要素を利用して、直接解析することも可能であるが、本研究では以下の理由で、そのような解析法を採用しないことにした。

Fig.6 Static analysis model of the scratch test.

Fig.7 Element division.

1) 圧子も要素分割する必要がある。

2) 接線力を考慮する場合の収束性が悪く、まったく収束しないことさえある。

3) 接触要素またはギャップ要素近傍の精度が低下することがよく知られており、コーティング材の界面がその極近傍にあるため、界面上の応力解の精度が問題となる恐れがある。

本研究では球形のダイヤモンド圧子を剛体とし、試験片のみに対し、以下の強制変位繰返し解析法で数値解析を行った。

1) コーティング材表面に圧子の形に合わせて強制変位を与える。すなわち、表面節点の y 方向に、 $r \leq r_0$ (最大接触域半径、図 6 参照) の範囲で次式のように強制変位を与える。

$$\delta_y = \delta - \sqrt{R^2 - r^2} + R \quad (1)$$

ここで、 δ は押し込み量、 R は圧子の半径、 r は中心からの距離である。ただし、圧子の押し込み量 δ と接触域の大きさ r_0 が未知であるため、まず適当に初期値を設定し、以下のような繰返し解析法で決めなければならない。

2) 押し込み量または接触域半径を調節して、接触域の外側の接触応力が 0 となるまで繰返し解析を行う。すなわち、接触域の外縁の節点で引張りの反力となる場合は押し込み量を増やすか、または接触域半径を減らす。圧縮の反力が生じている場合は押し込み量を減らすか、または接触域半径を増やす。外縁の接触力が要求される精度まで 0 となるように繰返す。単純押し込みの場合は手順 5) に飛ばして解析が終了する。

3) 表面の節点に関し、 y 方向の接触反力に摩擦係数 μ を乗じて、 x 方向に新たに負荷をかけて解析し直す。ただし、 y 方向の強制変位はそのまま与えることにする。

4) 新たに得られる表面節点の y 方向の反力が変化しなくなるまで、3) の手順を繰返す。なお、摩擦係数が大きい場合では、外縁の節点にも反力が生じてくる可能性もあるが、その場合は 2)、3) の手順を繰返せばよい。

5) 接触域内の y 方向の反力を足し合わせて、対応の押付け荷重 P とする。

6) 押付け荷重と接触域大きさ、押し込み深さの関係を数値計算により予め整理しておけば、任意の荷重下での押し込み深さや接触域大きさが分る。従って、そのときの応力解析は式(1)の強制変位を用いてよい。

以上の解析法により、押し込み量と接触領域大きさが同時に決められ、押付け荷重との関係が得られる。

3.2 解析手法の検証 均質材半無限体表面の剛体球形圧子押し込み問題の理論解は、Hertz により与えられ

ている。すなわち、接触応力が次式で求められる⁽¹²⁾。

$$\sigma_y = \sigma_H \sqrt{1 - r^2 / r_0^2}, \quad \sigma_H = \frac{3P}{2\pi r_0^2} \quad (2)$$

$$r_0 = \left[\frac{3P(1-\nu^2)R}{4E} \right]^{\frac{1}{3}}, \quad \delta = \frac{1-\nu^2}{2E} P\pi r_0$$

ただし、 P は押付け荷重、 δ は押し込み量、 R は圧子の半径、 σ_H は圧子の中心部に発生する最大接触応力で、Hertz 応力と呼ばれている。 E, ν はそれぞれヤング率とポアソン比である。Hertz の理論と比較するために、まずは膜の材料を基材の高速鋼と同じにして解析を行った。図 8 には押付け荷重 $P = 25 \text{ N}$ 時の接触応力の数値解と Hertz の理論解の比較を示している。両者はよく一致し、前述の繰返し解析法および解析モデルが有効であることが分る。なお、膜の材料が基材と異なる場合や接線力が作用している場合の理論解は見当たらないため、検証はできないが、前述の数値解析手法には合理性があり、有効であると推察される。

3.3 スクラッチ試験の解析結果 前述の解析法に基づき、スクラッチ試験の応力解析を行った。図 9 はスクラッチ時の界面上の圧縮応力分布を示している。ただし、 $\mu = 0$ は単純押し込みに対応する。この図から分るように、接線力は界面上の圧縮応力にほとんど影響を及ぼさない。ただし、これは摩擦係数が比較的小さい場合の解析例であり、接線力が大きくなると、その影響が現れてくると考えられる。図 10 には界面上のせん断応力を示している。摩擦係数が 0 の場合は軸対称性を有し、接線力を与えることにより、進行方向前方のせん断応力は増加し、逆に後方は減少し、対称性が失われている。また、せん断応力が最大となる位置は接触域の少し内側であることも分る。これは前述の試験結果のはく離位置と一致している。なお、接線力によるせん断応力の

Fig.8 Comparison between FEM analysis and Hertz's theory.

増加分は一見大きくないが、その増加分を押込み荷重だけで補うなら、大きな荷重増加分が必要になる。これに関しては後で説明する。図 11 には界面近傍の膜内半径方向の応力分布を示している。圧子の外側部に引張応力を生じている。これは実験結果で示したヘアクラックの発生位置と一致している。

Fig.9 Normal stress distribution on the interface (along x axis).

Fig.10 Shear stress distribution on the interface

Fig.11 Residual stress distribution (along x axis).

4 破壊基準に関する考察

4.1 はく離破壊 以上の実験結果と数値解析結果から、はく離が発生する位置は界面上のせん断応力が最大となる位置と一致することが明らかになった。従って、はく離の発生基準は界面上の最大せん断応力がある臨界値（密着強度）に達したら、破壊が生じると考えられる。すなわち、破壊基準は

$$\tau_{INT \max} \geq \tau_{cr} \quad (3)$$

と表せる。ここで、 $\tau_{INT \max}$ は界面上の最大せん断応力を表す。スクラッチ試験においては対称面の接触外縁近傍で発生する（対称面では $\tau_{yz} = 0$ ）が、一般的には

$$\tau_{INT \max} = \max \sqrt{\tau_{xy}^2 + \tau_{yz}^2} \quad \text{at interface} \quad (4)$$

とする必要がある。前述のスクラッチ試験で得られた臨界荷重に対応する界面上の最大せん断応力を FEM 解析により求めると、図 12 のようになる。この図から、異なる試験条件においても、式(3)の破壊基準により統一的に評価できることが分る。また、本試験片の TiC 膜と高速度鋼の密着強度は $\tau_{cr} \approx 5.3 \text{ GPa}$ であることも分る。

4.2 ヘアクラックの発生強度 ヘアクラックの発生が臨界荷重に達する前に膜内で観察された。直接界面密着強度とは関係しないが、膜の強度と関連すると考えられるので、ここではこのヘアクラックの発生条件についても考察する。前述の解析結果から、接触域の外側部で半径方向に最大の引張応力が生じ（図 11 参照）ている。したがってヘアクラックは最大の引張応力によって引起されるものと考えられる。すなわち、ヘアクラックの発生基準は次式で表せる。

$$\sigma_{\max} \geq \sigma_{cr} \quad (5)$$

Fig.12 The maximum interfacial shear stress at the critical load.

ただし、 $\sigma_{\max}$ は最大主応力である。接触域の外側部では、 σ_x 、 τ_{xz} が σ_z に比べ十分小さいので、 σ_z すなわち σ_r を近似的に $\sigma_{\max}$ として利用することもできる。実際のヘアカラックの発生方向は図 5 に示したように、進行方向にほぼ平行し、 σ_r の方向に一致している。なお、本試験で潤滑なしの場合、押付け荷重が 20 N でヘアカラックが発生しているので、TiC 膜のき裂発生強度は $\sigma_{cr} = \sigma_{r, \max} |_{P=20N} = 2.6 \text{ GPa}$ と評価される。

4.3 臨界荷重の予測 界面の密着強度が分っていれば、式(3)に基づき、任意の試験条件下での臨界荷重を予測することができる。図 13 には、膜厚が $4.6 \mu\text{m}$ で摩擦係数が異なる場合の、界面上の最大せん断応力と押付け荷重の関係を示している。界面密着強度 $\tau_{cr} = 5.3 \text{ GPa}$ はすでに前節で求めているので、この図から、任意の摩擦係数の場合の臨界荷重が予測できる。例えば、摩擦係数が 0.1 の場合の臨界荷重は約 40 N と予測される。明らかに、摩擦係数が小さいほど、臨界荷重が大きくなる。小さい摩擦係数に対応する曲線がかなり平坦になっているため、押付け荷重が大きく増大しても、最大せん断応力の増加が僅かである。この非線型の荷重/応力関係はスクラッチ試験において接線力が重要であることを意味している。図 14 には、摩擦係数が 0.2 で、圧子半径が異なる場合の、最大せん断応力と押付け荷重の関係を示している。圧子半径が $300 \mu\text{m}$ の場合は臨界荷重が 55 N と予測される。圧子半径が大きいくほど、臨界荷重が大きくなる。図 15 には、摩擦係数が 0.2 で膜厚が異なる場合の、最大せん断応力と押付け荷重の関係を示している。この図から、任意の膜厚の場合の臨界荷重が予測できる。図 16 は予測した臨界荷重と膜厚の関係を示している。膜厚が $6.9 \mu\text{m}$ の前後で、臨界荷重が最小の 21 N となり、膜厚がそれより増加するにつれて臨界荷重が大きくなる

Fig.13 The maximum shear stress for various frictional coefficients.

が、一方、膜厚がそれより小さくなくても、同様に臨界荷重は増加する。これは、Hertz の接触応力のせん断応力成分が接触面の少し下側で最大となり、界面がちょうどその位置にあるとき、臨界荷重が最小となると推察されるため、合理的な結論であると考えられる。すなわち、最低の臨界荷重を示す膜厚が存在することが示唆されている。このように、界面密着強度は一定であるが、臨界荷重は試験条件などによって変化する。

Fig.14 The maximum shear stress for various radiuses of the indenter.

Fig.15 The maximum shear stress for various coating thickness.

Fig.16 Relationship between the maximum shear stress and coating layer thickness.

5 結 言

スクラッチ試験とその有限要素解析を行い、それらの結果に基づき、コーティング材密着強度の定量的評価法を提案した。得られた主な結論は以下の通りである。

(1) 本研究で提案した強制変位による繰返し解析法は特に接線力を考慮する必要があるスクラッチ試験の解析において有効である。

(2) 密着強度は界面の最大せん断応力の臨界値として求められる。このような密着強度はスクラッチ試験条件に依存しない。

(3) 臨界荷重の観点から見ると最小の臨界荷重を生じる膜厚が存在する。実用上はその膜厚を避けた方がよい。

(4) 接線力は臨界荷重に大きく影響を及ぼし、接線力が大きいほど、臨界荷重は小さくなる。

(5) ヘアクラックの発生は膜内の最大主応力を用いて評価できる。

(6) 同一の密着強度では圧子半径が大きいほど、また、摩擦係数が小さいほど、臨界荷重が大きくなる。

なお、界面上の最大せん断応力は押込み荷重、膜厚、摩擦係数、圧子半径および材料組合せの関数と考えられるので、その近似関係式を数値解析により予め用意しておけば、簡便なスクラッチ試験で膜の密着強度を定量的に評価することができる。このような簡便評価式に関しては次報で報告する予定である。

謝辞：コーティング試験片を提供いただいた（株）不二越・安岡学氏に謝意を表す。

参 考 文 献

- (1) O. S. Heavens and L. E. Collins, J. Physics Radium, 13, 658 (1952).
- (2) 宅間正則, 新家 昇, 久保貴弘, 米倉 顕, 河合成樹, 日本機械学会論文集, A66-651, 2074(2000).
- (3) 中 庸行, 山本和人, 磯野吉正, 田中武司, 寺山暢之, 日本機械学会論文集, A66-644, 698 (2000).
- (4) 中佐啓治郎, 加藤昌彦, 張 東坤, 河合史晃, 材料, 47, 204 (1997).
- (5) 表面技術学会編, “PVD・CVD 皮膜の基礎と応用”, 槇書店, (1994).
- (6) Yoshii, H. Takagi, M. Ueno and H. Kawabe, Metall. Trans. A 15, 1273 (1984).
- (7) K. E. Petersen and C.R. Guarnieri, J. Appl. Phys., 50, 6761 (1976).
- (8) S. Johansson, J. Schweitz, L. Tenerz and J. Tieren, J. Appl. Phys., 63, 4799 (1988).
- (9) T. P. Weihs, S. Hong, J. C. Bravman and W. D. Nix, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 130, 87 (1989).
- (10) C. T. Rosenmayer, F. R. Brotzen and J. Gale, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 130, 77(1989).
- (11) 城野政弘, 菅田 淳, 竹中久善, 材料, 38, 644 (1989).
- (12) K. L. Johnson, “Contact Mechanics”, Cambridge University. Press, (1985).