論文

ビッカース硬さ試験における DLC-Si 被膜の損傷挙動

窪田 寛之^{*1} 王 志剛^{*2}土屋 能成^{*3} 谷口 幸典^{*4}

Damage Behavior of DLC-Si Coating by Vicker's Hardness Test

Hiroyuki KUBOTA^{*1}, Zhrgang WANG^{*2},Yoshinari TSUCHIYA^{*3} and Yukinori TANIGUCHI^{*4}

(Received on March 6, 2007)

To investigate the damage behavior of DLC (diamond-like carbon)-Si coating under high contact pressure, a series of experiments were carried out using the Vicker's hardness test. As substrate materials, alloy tool steel (SKD11) and high speed tool steel (SKH51) were used. In order to investigate the effect of coating thickness on coating damage, DLC-Si coatings with two thicknesses of 2.1 μ m and 4.0 μ m were prepared on SKD11. Coating damage was observed from the coating and cross-section surfaces. From observation of the coating surface, the indentation shapes of DLC-Si-coated tools were able to be sorted into 3 main types in terms of macroscopic coating damage level. For indentation shape type I, which shows no marked damage but a cross mark caused by the Vicker's indenter, cross-sectional observation was carried out, and a crack parallel to the coating surface was observed in all the DLC-Si coatings. It is inferred that the parallel crack in the coatings was generated by a force from the compressive residual stress of the coating.

Key words: tribology, surface treatment, DLC, damage, tool material, Vicker's hardness test

1. 緒 言

塑性加工において潤滑油は、摩擦・摩耗の低減を目的に使用されている。しかし、環境保護の観点から、その使用を問題視する動きがあり、潤滑剤を使用しない加工、いわゆるドライ加工の実現が期待されている¹⁾。一方、自動車業界では環境保護の観点から、燃費向上を目的に自動車の軽量化が推進されている。そのため、使用される材料は高強度化する傾向にあり、たとえ潤滑油を使用したとしても十分な潤滑効果を得にくく、加工時に焼付き・かじりなどの問題をしばしば引き起こす。

潤滑油が使用できないもしくは十分に効果を発揮できない場合において、潤滑効果を得る方策が待ち望まれている。そのひとつとして DLC 被膜が注目されている。DLC 被膜の塑性加工への適用に関しては多くの研究^{2), 3)}がなされている。筆者らは、高張力鋼板のしごき加工および角筒深絞

り加工に関し研究を行い、DLC 被膜は良好な摩擦特性を示すものの、工具寿命に関連して、しごき加工では DLC 被膜表面の平滑化が起こること、角筒深絞りではダイ肩 R 部における被膜剥離が生じることを示している^{4), 5)}。このような DLC 被膜の平滑化や被膜剥離は、工具表面に局部的に高面圧が加わることによるものであると推測される。

本研究は、DLC 被膜に高面圧負荷が加えられた場合の被膜損傷挙動を明らかにし、高面圧負荷を受ける用途に DLC 被膜を使用する際の問題点を明らかにすることを目的としている。DLC 被膜に高面圧負荷を与える方法として、ビッカース硬さ試験法を用い、付与された圧痕について詳細な観察を行う。まず、被膜表面から観察される圧痕形態の特徴を検討し、巨視的破壊挙動を明らかにする。次に、被膜表面からは観察できない被覆工具内部の状態について、断面から観察を試み、内部損傷の特徴を詳しく調べる。さらに、損傷機構について検討を加える。

2. 実験方法および実験条件

Table 1 に供試工具をまとめて示す。DLC 被膜には、被膜成分として Si を含有し、比較的密着性が良好とされる DLC-Si 被膜⁶⁾を用いた。成膜方法は直流プラズマ CVD 法で成膜温度は約 500℃であった。Si 濃度は 15~20 mass% の範囲内に制御されており、膜厚方向の濃度分布は均一である。工具基材には冷間ダイス鋼 SKD11(HV_{0.2} = 700)

^{*1} 岐阜大学大学院 〒501-1193 岐阜市柳戸 1 番 1
Graduate Student, Department of Mechanical Systems Engineering,
Gifu University, 1-1 Yanagido, Gifu 501-1193, Japan

^{*2} 岐阜大学工学部 〒501-1193 岐阜市柳戸 1 番 1
Department of Mechanical Systems Engineering, Gifu University
1-1 Yanagido, Gifu 501-1193, Japan

^{*3} (株) 豊田中央研究所
〒480-1192 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道 41-1
Toyota Central R&D Labs., Inc., Nagakute, Aichi 480-1192, Japan

^{*4} 奈良工業高等専門学校 〒639-1080 大和郡山市矢田町 22
Nara National College of Technology
22 Yata-cho, Yamatokoriyama, Nara 639-1080, Japan

Table 1 Coated specimen

Symbol	Coating thickness (μm)	Substrate material
DLC-Si(SKD11, $t = 2.1$)	2.1	SKD11
DLC-Si(SKD11, $t = 4.0$)	4.0	
DLC-Si(SKH51, $t = 2.0$)	2.0	SKH51
TiC	8.5	SKD11

と高速度工具鋼 SKH51($HV_{0.2} = 900$)の 2 種類を用いた。膜厚は、 $2\mu\text{m}$ と $4\mu\text{m}$ の 2 種類とした。比較のため、CVD 法にて被覆した TiC 被膜被覆工具をも用いた。

圧痕の付与には、汎用のマイクロビッカース硬さ試験機 (AKASHI 製 MVK-H0)を用いた。負荷条件は、試験荷重 $P = 0.49\text{N}$, 0.98N , 1.96N , 2.94N , 4.90N , 9.81N の 6 条件とし、負荷時間は 5s とした。

供試材表面に付与したビッカース圧痕の観察は、被膜表面および断面から行った。被膜表面からの観察には、レーザー顕微鏡 (KEYENCE 製 VK-9500)および走査型プローブ顕微鏡 SPM (SII 製 SPI4000)を用いた。また、断面観察には、切断試料を作製する必要がある。切断試料の作製にはできるだけ試料にダメージを与えないよう、アルゴンイオンビームにより精密な研磨が可能な SEM 用断面試料作製装置クロスセクションポリッシャ (日本電子製 SM-09010)を用いた。また、断面観察には走査型電子顕微鏡を用いた。

3. 実験結果および考察

3.1 DLC-Si 被膜の巨視的損傷挙動

Fig. 1 に DLC-Si(SKD11, $t = 2.1$)における圧痕の巨視形態および圧痕中心を通る垂直断面 A-A のプロファイルを示す。まず、負荷荷重が比較的低い $P = 0.49\text{N}$ の場合 (Fig. 1(a)), 圧痕は圧子の稜線のみをわずかに残す状態であり、顕著な被膜損傷は認められない。次に $P = 1.96\text{N}$ の場合 (Fig. 1(b)), 圧子の稜線に加えて圧痕内に割れに代表される巨視的破壊が発生している。この場合の断面プロファイルによれば、斜面には明確な段差があり、圧痕中心部における被膜の陥没および圧痕斜面における被膜の浮き上がりが認められる。負荷荷重がさらに高くなると、 $P = 9.81\text{N}$ の場合 (Fig. 1(c)) に示すように、圧痕内部に等高線状のクラックが生じて圧痕形状が明瞭となっていく。

以上のような負荷荷重の増加に伴う被膜損傷形態の変化は、いずれの工具においてもほぼ同様に生じた。したがって、ビッカース硬さ試験における DLC-Si 被膜の損傷挙動は、Fig. 1(a)~(c)に対応して、以下のように分類できる。

圧痕形態 I : 圧子の稜線のみを残し、顕著な被膜損傷がみられない形態 (Fig. 1(a))

圧痕形態 II : 圧痕内に部分的に被膜の陥没および浮き上がりといった巨視的破壊がみられる損傷形態 (Fig. 1(b))

圧痕形態 III : 圧子押込み方向に対する等高線状のクラックがみられ、明確な圧痕形状となる損傷形態 (Fig. 1(c))

3.2 DLC-Si 被膜の内部損傷形態

被膜表面からの巨視的損傷がほとんどみられない圧痕形態 I について、内部損傷状態の観察を試みた。Fig. 2~

Fig. 4 に各供試工具における負荷荷重 $P = 0.49\text{N}$ および 0.98N の場合の圧痕断面の SEM 観察結果を示す。

DLC-Si(SKD11, $t = 2.1$)の場合 (Fig. 2), 試験荷重 $P = 0.49\text{N}$ において、被膜内部には被膜表面にほぼ平行なクラックがみられる。試験荷重 $P = 0.98\text{N}$ になると、被膜表面に平行なクラックは観察されないものの、圧痕境界付近の被膜表面から内部に向かってクラックが生じていることがわかる。被膜表面からの観察では、 $P = 0.98\text{N}$ の場合に前述の圧痕境界付近のクラックに対応したかすかな損傷が

Fig. 1 Microscopic photographs (above) and surface profiles (below) of typical Vicker's indentation for DLC-Si(SKD11, $t = 2.1$)

(a) $P = 0.49\text{N}$ (b) $P = 0.98\text{N}$ **Fig. 2** Cross-section profile of Vicker's indentation by SEM for DLC-Si(SKD11, $t = 2.1$) (a) $P = 0.49\text{N}$ (b) $P = 0.98\text{N}$ **Fig. 3** Cross-section profile of Vicker's indentation by SEM for DLC-Si(SKD11, $t = 4.0$)

観察されるものの、おおむね圧痕形態 I に分類できるものであった。

DLC-Si(SKD11, $t = 4.0$)の場合(Fig. 3), 被膜表面からの観察では, 負荷荷重 $P = 0.49\text{N}$, $P = 0.98\text{N}$ ともに圧痕形態 I であり, 損傷は全く生じていない。圧痕断面をみると, 基材にはほとんど変形を生じていないものの被膜内部には被膜表面に対しほぼ平行なクラックが生じている。つまり, 膜厚の大小にかかわらず被膜表面から損傷が全くみられない圧痕形態 I の被膜には, 膜の内部にクラックが生じることがわかる。一方, DLC-Si(SKH51, $t = 2.0$)の場合(Fig. 4)には, 負荷荷重 $P = 0.49\text{N}$ の圧痕には被膜表面からの損傷は全くみられないが, 被膜内部には被膜表面に平行なクラックが生じている。負荷荷重 $P = 0.98\text{N}$ では, 圧痕境界付近の被膜表面から被膜内部に向かってかすかにクラックが生じているが, $P = 0.49\text{N}$ の場合のような被膜内部のクラックは生じていない。この結果, 工具基材も圧痕形態 I における被膜内部クラックの発生形態には大きく影響しないものと言える。

以上のように, 圧痕形態 I に分類される圧痕では, 被膜表面から全く損傷がみられない場合において, 圧痕断面観察により内部に損傷の存在が認められる。その損傷は基材と被膜の界面ではなく被膜内部であり, 被膜表面にほぼ平行なクラックであることがわかった。このようなクラックが被膜内部において観察されることは, DLC 被膜を塑性加工工具に利用する際, 加工回数の増加に伴い被膜内部にクラックが蓄積されるとともに, そのクラックが進展し被膜

(a) $P = 0.49\text{N}$ (b) $P = 0.98\text{N}$ **Fig. 4** Cross-section profile of Vicker's indentation by SEM for DLC-Si(SKH51, $t = 2.0$)

表面まで到達することにより、被膜剥離を生じる可能性があり、工具寿命を決める原因となりうるものと考えられる。

3.3 DLC-Si 被膜の損傷機構

ビッカース硬さ試験において、圧子押し込み行程では圧子と被膜の接触状態はヘルツ接触と同様であり、圧子と被膜との接触部の縁(最外郭)において最大引張応力が生じる。この引張応力は負荷荷重の増加に伴い大きくなり、被膜の引張強さに達すると被膜表面から内部に向かって、いわゆるヘルツクラックが生じる⁷⁾。このことから、負荷荷重が比較的低い場合には被膜表面における引張応力が被膜の引張強さよりも小さいため、ヘルツクラックの発生には至らず、被膜表面から観察できる巨視的損傷が全くみられない圧痕形態を示す。また、負荷荷重が高くなると、被膜表面における引張応力が大きくなり圧痕境界付近にヘルツクラックが生じ、さらなる負荷荷重の増加に伴い圧痕形態Ⅲにみられる等高線状のクラックの発生に至る。いずれにしても、押し込み行程において圧子の直下では圧縮応力場であり、前述の内部クラックは発生しないものと考えられる。

Fig. 5(a)に DLC-Si 被膜の圧痕形態Ⅰの形状を走査型プローブ顕微鏡(SPM)により観察した結果を示す。また、Fig. 5(b)には、無被覆工具 SKD11 の場合の圧痕形状を SPM により観察した結果を示す。これらを比較すると、DLC-Si 被膜における圧痕形態Ⅰの形状は無被覆工具 SKD11 の場合に観察されるものとは大きく異なり、圧痕境界が不明瞭であることがわかる。この差異は除荷行程において生成されたものと考えられる。一般に DLC 被膜には比較的大きな圧縮残留応力が存在する。本実験に用いた被膜の残留応力に関する実測値はないが、成膜法および成膜条件から推定して 0.5~1.0GPa 程度と考えられる⁸⁾。この圧縮残留応力は除荷行程において被膜材料の戻り変形を発生させる可能性がある。つまり、被膜内における圧縮残留応力によって被膜材料の戻り(求心流)が生じた結果、Fig. 5(a)に示す圧痕形状が生成されたと考えられる。この求心流の結果、Fig. 6 に示すようなクラックの発生機構が推定される。つまり、除荷とともに圧痕内には圧縮残留応力による圧痕周

辺からの被膜材料の求心流が生じ、圧子押し込み時に変形を生じる部分と生じない部分の境界付近においては被膜内部に引張りおよびせん断が生じ、内部クラックの発生に至る。また、圧痕形態Ⅰにおいて、圧痕境界付近にクラックが生じるような場合には、求心流の作用が弱まり、内部クラッ

(a) DLC-Si(SKD11, $t = 2.1$), $P = 0.49\text{N}$

(b) SKD11(Non-coated), $P = 0.98\text{N}$

Fig. 5 3D view of Vicker's indentation by SPM

Fig. 6 Model of coating fracture mechanism of indentation shape type I

クの発生には至らないものと考えられる。一方、基材と DLC 被膜のヤング率の違いにより、基材と被膜の界面にも引張応力が生じるが、DLC-Si 被膜がその引張応力に対し高い界面強度を持つことにより、界面での剥離が生じなかったものと推測される。いずれにしても、本実験の DLC-Si 被膜に限らず、全ての DLC 被膜において被膜内に大きな圧縮残留応力が存在すると言われており、基板に平行な内部クラックによる被膜破壊が DLC 被膜の破壊形態の特徴の一つと考えられる。基材変形の被膜戻り変形への影響、クラックの発生位置などの定量的な検討については、膜内残留応力の大きさや被膜の引張強さなどのデータが不足しており、現時点では困難である。今後、DLC 被膜の物性値の定量化を行ない、FEM による応力解析の結果に基づいて、破壊機構に関する定量的な検討を加える必要がある。また、圧痕形態Ⅱのように、圧痕内に部分的に被膜の陥没および浮き上がりを生じる場合の被膜損傷機構についても、今後さらに詳しい検討が必要である。

3.4 TiC 被膜の損傷形態

TiC 被膜に関し、負荷荷重 $P = 0.49\text{N}$ および 0.98N における被膜損傷の観察結果を Fig. 7 および Fig. 8 に示す。

負荷荷重 $P = 0.49\text{N}$ では、被膜表面には顕著な巨視的損傷は観察されないが、被膜内部には圧痕境界付近の直下において被膜表面に対しほぼ垂直のクラックが生じている。負荷荷重 $P = 0.98\text{N}$ では、被膜表面には圧痕輪郭に沿ったクラックがかすかに観察され、被膜内部には $P = 0.49\text{N}$ の場合と同様のクラックが観察される。これら被膜内部に観察されるクラックはヘルツクラックに起因するものと考えられる。

以上のように、TiC 被膜では被膜表面から膜内に向かってクラックは生じるものの、DLC-Si 被膜で観察されるような被膜表面に平行な膜内クラックは観察されない。したがって、塑性加工において繰り返し負荷を受けた場合にはヘルツクラックは増加するものの、クラックの合体による被膜の破壊、脱落は比較的狭い範囲に留まるものと考えられる。

4. 結 言

- 1) DLC-Si 被膜の圧痕形態は負荷荷重の増加に伴い変化し、被膜表面からの観察により主に以下に示す 3 つの形態に分類される。

圧痕形態Ⅰ：圧子の稜線のみを残し、顕著な被膜損傷がみられない形態

圧痕形態Ⅱ：圧痕内に部分的に被膜の陥没および浮き上りの巨視的破壊がみられる損傷形態

圧痕形態Ⅲ：圧子押込み方向に対する等高線状のクラックがみられ、明確な圧痕形状となる損傷形態

- 2) DLC-Si 被膜表面から損傷がみられない圧痕形態Ⅰにおいて、被膜内部には被膜表面とほぼ平行なクラックが生じる。そのクラックの発生は、膜厚、工具基材の影響を受けない。
- 3) TiC 被膜では、DLC-Si 被膜内部に観察されるようなクラックは生じず、ヘルツクラックに起因する被膜表面に垂直なクラックが生成される。

(a) $P = 0.49\text{N}$

(b) $P = 0.98\text{N}$

Fig. 7 Microscopic photographs of Vicker's indentation for TiC

(a) $P = 0.49\text{N}$

(b) $P = 0.98\text{N}$

Fig. 8 Cross-section profile of Vicker's indentation by SEM for TiC

参 考 文 献

- 1) 片岡征二：塑性と加工，43-492 (2002)，3-10.
- 2) 片岡征二・基昭夫・玉置賢次・村川正夫・野口裕之・木原諄二：同上，46-532 (2005)，412-416.
- 3) 村川正夫：234 回塑加シンポテクニスト，(2004)，35-44.
- 4) Dohda, K., Kubota, H. & Tsuchiya, Y. : JSME Int. J. Ser. A, 48-4 (2005), 286-291.
- 5) 王志刚・窪田寛之・薛徳洲・林启権・岡村政明：塑性と加工，47-549 (2006)，988-992.
- 6) Mori, H. & Tachikawa, H. : Surface and Coating Technol., 149 (2002)，225-230.
- 7) 青山雄二・兼田楨宏：トライボロジー，理工学社 (2001)，27-31.
- 8) 三木靖浩・足立茂寛・西村芳実・杉原雅彦・堀野裕治：奈良県工業技術センター研究報告，31 (2005)，10-15.