

## タンタル含有 ta-C 膜の大気中高温低摩擦発現

The low friction phenomena under high temperature atmosphere of ta-C:Ta

名大・工（正）\*野老山 貴行 名大・工（学）前田 悠太 名大・工（学）谷川 亜聰

名大・工（学）橋詰 直弥 名大・工（正）村島 基之 名大・工（正）梅原 徳次

Takayuki Tokoroyama\*, Yuta Maeda\*, Asato Tanigawa\*, Naoya Hashizume\*, Motoyuki Murashima\*, Noritsugu Umebara\*

\*Nagoya University

### 1. はじめに

炭素系硬質薄膜の中でもタンタル (Ta) を含有するアモルファスカーボン膜は大気中において低摩擦係数を発現することが報告され<sup>1-2)</sup>、耐摩耗性を向上させる目的で膜の骨格構造が  $sp^3$  を多く含む高硬度な ta-CN<sub>x</sub>:Ta (tetrahedral amorphous carbon nitride with tantalum) 膜が作製され、接触する二面両方に成膜されている場合、室温乾燥大気吹き付け下において膜内の窒素含有量が低くタンタル含有量が多いほど低摩擦を示し、 $10^{-8} \text{ mm}^3/\text{Nm}$  オーダーの比摩耗量が得られたと報告されている<sup>3)</sup>。摩擦に伴い摩耗痕内の O/C 比 (膜内に含有される酸素濃度と膜の骨格を構成する炭素を AES 分析した際に得られる O KLL ピーク強度と C KLL ピーク強度比) が減少することで ta-CN<sub>x</sub> 膜の構造がグラファイト構造に近づき、低摩擦面が得られるものと推測されている。膜内に含有されている窒素の脱離<sup>4)</sup>、酸素の脱離<sup>5)</sup>は比較的摩擦係数が高い初期なじみ期間の摩擦により得られることから、例えば C-N 結合や C-O 結合の切断のために接触点で発生する閃光熱やトライボマイクロプラズマ<sup>6)</sup>、プラズマに励起された紫外線<sup>7-9)</sup>が駆動源と考えられている。膜内の元素脱離に伴う炭素骨格構造のグラファイト構造への変化は、環境温度が高いほど発生しやすいものと考えられ、大気中摩擦の場合、雰囲気の酸素が炭素原子を酸化して摩耗が促進するものと予想される。そこで、本研究では、大気中 200°C 環境まで加熱可能な放射型赤外線ヒータを用い、Ta 含有 ta-C 膜の Ta 含有量が摩擦係数及び比摩耗量に及ぼす影響を明らかにする。

### 2. Ta 含有 ta-C 膜の IBA-FAD 成膜、大気中摩擦試験装置

硬質な ta-C 膜内に Ta の含有を可能とする成膜手法として IBA-FAD (Ion Beam Assisted-Filtered Arc Deposition) 法を用いた。炭素骨格部分を構成する炭素の蒸着にはアーク放電を用い<sup>10-12)</sup>、Ta はマグネットロンスペッタリング法により基板表面へ向かって照射される。成膜用の基板には膜との密着強度が高い WC (タンゲステンカーバイド) を用いた。基板直径 22.5 mm、厚み 4.0 mm、成膜前の表面粗さは算術平均粗さ約 10.0 nmRa である。同様に相手材料にも WC 球を用い、直径約 8.0 mm を用いた。球及び基板の成膜には異なる Ta 量となるように成膜時のマグネットロンスペッタ条件を変更し、XPS 分析結果からそれぞれ ta-C 膜、ta-C:Ta<sub>0.19</sub> 膜及び ta-C:Ta<sub>0.102</sub> 膜とした。成膜後の算術表面粗さは ta-C 膜が 15.7 nmRa、ta-C:Ta<sub>0.019</sub> 膜が 14.5 nmRa 及び ta-C:Ta<sub>0.102</sub> 膜が 10.3 nmRa であり、成膜前後で表面粗さはほとんど変化していない。各試験片の硬さはナノインデンテーション試験機により測定され、それぞれ ta-C 膜 (46.1 GPa)、ta-C:Ta<sub>0.019</sub> 膜 (32.2 GPa) 及び ta-C:Ta<sub>0.102</sub> 膜 (27.1 GPa) である。

大気中室温、100°C 及び 200°C の摩擦試験を行うため、放射型赤外線ヒータを有するピンオンディスク型摩擦試験機を用いた<sup>13)</sup>。成膜された基板試験片は回転ステージ上に固定され、成膜された球試験片をボールホールダに固定し、おもりにより垂直荷重を与えている。摩擦力はロードセルにより測定される。接触点を含む試験片全体に対して放射型赤外線ヒータから赤外光を照射し、実験時の一定温度になってから摩擦試験を開始した。

### 3. 大気中異なる温度における摩擦試験結果及び比摩耗量測定結果

大気中摩擦試験の代表的な結果として 200°C における摩擦試験結果を Fig. 1 に示す。また、得られた結果から初期のなじみ期間と考えられる高摩擦係数領域を省いて平均値算出して求めた結果を Fig. 2 に示す。Ta を含有しない ta-C

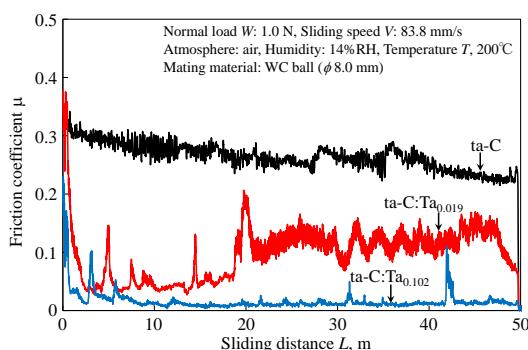


Fig. 1 Friction test results of each coating under ambient air

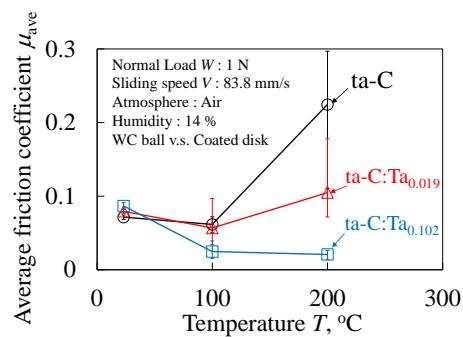


Fig. 2 The effect of temperature on average friction coefficient

膜は大気中 200°Cにおいて 0.25~0.33 の摩擦係数が得られ、Ta を含有した ta-C:Ta<sub>0.102</sub> 膜では摩擦係数が減少して約 0.02 の低摩擦係数が得られた。

各成膜基板の摩擦試験後摩耗痕の代表として 200°Cの結果を Fig. 3 に示す。摩耗痕断面積から体積を算出し、実験時の垂直荷重及びすべり距離の積で除して算出した比摩耗量と実験時温度の関係を Fig. 4 に示す。いずれの膜においても 23°Cから 100°Cにおける比摩耗量はほぼ等しく、200°Cの条件において Ta を含有しない ta-C 膜の比摩耗量が約 1.1 × 10<sup>-8</sup> mm<sup>3</sup>/Nm と最大の摩耗量を示した。一方、ta-C:Ta<sub>0.102</sub> 膜は温度によらず摩耗量はほぼ等しく、200°Cにおいて約 1.9 × 10<sup>-9</sup> mm<sup>3</sup>/Nm が得られた。室温における各膜の硬さは ta-C 膜が最も高いため、耐摩耗性も ta-C 膜が最も良いと考えられていたが、Ta 含有量の増加に伴って発生する摩耗粉量も減少し、耐摩耗性が維持されていた。この摩耗抑制機構は 200°C環境においても Ta 含有膜が軟化しない、または雰囲気由来の酸化抑制のいずれかによるものと考えられる。

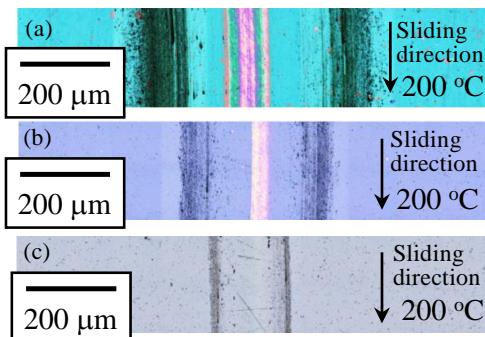


Fig. 3 Optical microscope images of wear scar on each coating (a) ta-C, (b) ta-C:Ta<sub>0.019</sub>, and (c) ta-C:Ta<sub>0.102</sub>

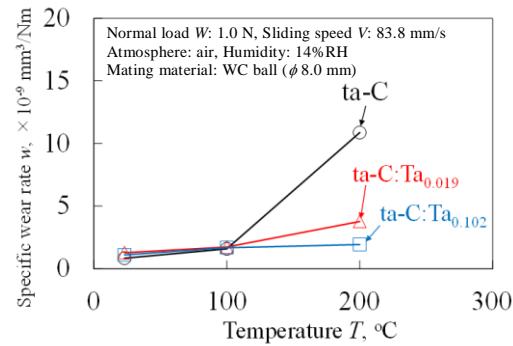


Fig. 4 The specific wear rate of each coating under ambient air

#### 4. おわりに

タンタルを含有した ta-C 膜の大気中摩擦試験において、200°C環境での低摩擦係数約 0.02 と高い耐摩耗性 1.9 × 10<sup>-9</sup> mm<sup>3</sup>/Nm が達成され、タンタル含有量が多いほど 200°Cにおける耐摩耗性が高い結果が得られた。膜に含有されるタンタルにより雰囲気酸素と炭素膜との酸化抑制の可能性が示された。

#### 文献

- 1) H. Nyberg, T. Tokoroyama, U. Wiklund & S. Jacobson, Design of low-friction PVD coating systems with enhanced running-in performance - carbon overcoats on TaC/aC, Surface and Coatings Technology, 222 (2013) 48.
- 2) T. Tokoroyama, T. Hattori, N. Umehara, H. Kousaka, K. Manabe, M. Kishi & Y. Fuwa: Ultra-low friction properties of carbon nitride tantalum coatings in the atmosphere, Tribology International, 103 (2016) 388.
- 3) T. Tokoroyama, Y. Tagami, M. Murashima, W.-Y. Lee, N. Umehara & H. Kousaka: Tribological Property of ta-CN<sub>x</sub>:Ta Deposited via Ion Beam Assisted-Filtered Arc Deposition, Tribology International, 168 (2022) 107450.
- 4) T. Tokoroyama, M. Goto, N. Umehara, T. Nakamura & F. Honda: Effect of Nitrogen atoms desorption on the friction of the CN<sub>x</sub> coating against Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> ball in Nitrogen gas, Tribology Letters, 50, 9 (2006) 215.
- 5) 北條・梅原・野老山・村島：ta-CN<sub>x</sub> 膜の摩擦摩耗特性に及ぼす膜中又は摩擦相手材タンタルの影響，日本機械学会論文集，86, 888 (2020) 10-00018.
- 6) 宮平・野老山・梅原・不破：CN<sub>x</sub> 膜の摩擦面その場観察手法を用いたトライボマイクロプラズマの観察と移着膜形成が摩擦係数に及ぼす影響，トライボロジスト，56, 6 (2011) 378.
- 7) 野老山・神谷・梅原・不破：窒化炭素膜のトライボロジー特性におよぼす紫外線照射の影響，トライボロジスト，55, 9 (2010) 659.
- 8) 野老山・羽田野・梅原・不破：ダイヤモンドライクカーボン膜の大気中摩擦摩耗特性に及ぼす紫外線照射の影響，日本機械学会論文集（C 編），76, 771 (2010) 3166.
- 9) T. Tokoroyama, M. Kamiya, N. UMEHARA, C. Wang & D.F. Diao: Influence of UV irradiation for low frictional performance of CN<sub>x</sub> coatings, Lubrication Science, 24, 3 (2012) 129.
- 10) W.-Y. Lee, T. Tokoroyama, Y.-J. Jang, N. Umehara: Effect of substrate bias and temperature on friction and wear properties for ta-C coating prepared under different substrate bias voltages with filtered cathodic vacuum arc deposition, Tribology Online, 13, 5 (2018) 241.
- 11) W.-Y. Lee, T. Tokoroyama, Y.-J. Jang, N. Umehara: Investigating running-in behavior to understand wear behavior of ta-C coating with filtered cathodic vacuum arc deposition, Journal of Tribology, 23 (2019) 38.
- 12) W.-Y. Lee, Y.-J. Jang, N. Umehara, T. Tokoroyama, M. Murashima: Effect of defects on wear behavior in ta-C coating prepared by filtered cathodic vacuum arc deposition, Diamond & Related Materials, 105 (2020) 107789.
- 13) X. Deng, H. Kousaka, T. Tokoroyama & N. Umehara: Thermal Stability and High-Temperature Tribological Properties of a-C:H and Si-DLC Deposited by Microwave Sheath Voltage Combination Plasma, Tribology Online, 8, 4 (2013) 257.