

令和 3 年 6 月 29 日現在

機関番号：51201

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2020

課題番号：18K13679

研究課題名(和文) 潤滑場における潤滑剤成分の相互作用と潤滑特性

研究課題名(英文) Lubricating properties originating from molecular interaction of lubricant components under lubricating condition

研究代表者

滝渡 幸治 (Takiwatari, Koji)

一関工業高等専門学校・その他部局等・准教授

研究者番号：70633353

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：潤滑特性に影響する潤滑剤成分の粘度や溶解性には、分子間相互作用が関わっている。本研究では弾性流体潤滑(EHL)条件下における分子間相互作用を直接捉え、潤滑特性との関係を明らかにすることを目的とした。単成分系として、ポリグリコール油のトラクション特性と分子構造(分子末端の官能基)の関係を調べた。EHLの高圧により分子間相互作用が増大し、粘性が増大することが明らかとなった。次に、脂肪酸添加油を試料として二成分系(添加剤と基油)の実験を行った。分子間相互作用による添加剤の濃度変化が、トラクション係数に影響することが分かった。以上の結果から、分子間相互作用の潤滑特性への影響に関する知見を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、潤滑場における分子間相互作用を直接捉えて潤滑膜構造の制御にフィードバックしたことで、分子間相互作用が関わる潤滑現象を解明できたと考える。得られた成果は、分子間相互作用に関連する潤滑剤の処方や開発、その関連技術の発展に寄与すると期待される。また、分子間相互作用は潤滑状態の接触部における成分濃度や粘性の他に、吸着や相変化にも影響すると予想され応用の範囲が広い。さらに、分子構造や摺動条件を考慮して意図的に分子間相互作用を制御し、接触部で様々な構造をもつ集合体を形成することで、今までにはない新たな潤滑剤の開発が可能となる。

研究成果の概要(英文)：The viscosity and solubility of lubricant components related to lubricating properties are influenced by molecular interaction. In this study, the correlation between molecular interaction and lubricating properties was investigated using in-situ observation with micro-FTIR under EHL condition.

First, polyglycols having several functional groups and non-polar hydrocarbon oils were used as single component system. It was found that the molecular interaction was strengthened by high pressure at EHL contact, and affected the traction coefficient. Concentration of fatty acid as additive decreased at EHL contact, in the case of non-polar hydrocarbon oil was used as base oil. It was suggested that the traction coefficient was related to change in the concentration of the additive due to molecular interaction between additive and base oil.

From the results, the knowledge about the effect of molecular interaction on the lubricating properties was obtained.

研究分野：トライボロジー

キーワード：トライボロジー 潤滑剤 分子間相互作用 その場観察 赤外分光法

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

潤滑剤は、各成分の特性に加えて添加剤と基油の組み合わせがその特性に影響を及ぼす。例えば、添加剤の基油に対する溶解性は各成分の分子間相互作用に関わる。また、Eyring の粘性理論より、分子間相互作用は粘性を介して潤滑特性に影響を及ぼす。

分子間相互作用は、分子構造や濃度、圧力、温度、せん断の影響を受ける。特に弾性流体潤滑 (EHL) の接触部では、圧力や温度が上昇するため分子間相互作用の一つである水素結合が変化し、潤滑特性に影響を及ぼすと推察される。

既往の研究では、赤外分光法と潤滑試験機を組み合わせることで潤滑状態の「その場観察」を行い、接触部での成分濃度や水素結合の変化が直接捉えられている。本手法を用いることで、潤滑特性に対する分子間相互作用の影響について知見を得ることができれば、潤滑剤設計に革新的な変化をもたらすことが期待される。

2. 研究の目的

潤滑特性に影響する潤滑剤成分の溶解性や粘度には、分子間相互作用に関わる。分子間相互作用は官能基からその強さを推測できるが、潤滑状態にある接触部では高圧や高温、せん断の影響によって分子間相互作用が変化することが知られている。しかし、分子間相互作用を直接捉えて、潤滑特性との関係を明らかにすることはできていない。

本研究では分子間相互作用、特に水素結合に注目し、EHL 条件下における分子間相互作用を直接捉え、潤滑特性との関係を明らかにすることを目的とした。申請者が進めてきた赤外分光法を用いる潤滑状態のその場観察法を用い、潤滑状態における水素結合を直接捉える。そして、潤滑剤設計の技術革新に貢献するため、分子間相互作用に基づく潤滑剤設計指針の構築を目指す。

主として次の点を明らかにする。

赤外分光法を用いる潤滑状態のその場観察を行い、EHL 接触部における潤滑剤成分の分子間相互作用(水素結合)を直接捉え、分子構造や摺動条件の影響を明らかにする。

潤滑状態のその場観察で成分濃度や膜厚を測定し、潤滑膜構造を解析する。同時にトラクション係数を測定する。分子間相互作用(水素結合)と潤滑膜構造、トラクション係数の関係を明らかにする。

EHL の特徴である高圧、高温、せん断に注目し、各条件における分子間相互作用(水素結合)を調べ、潤滑状態の結果と比較する。静的な条件とは異なる潤滑場の特異点を明らかにする。

3. 研究の方法

潤滑剤試料として、水素結合を形成する官能基(水酸基、カルボキシル基など)を持つ化合物を選択した。大きく分類して、単成分系における分子間相互作用とトラクション特性および膜厚との関係と、二成分系における分子間相互作用とトラクション特性との関係について調べた。まず単成分系として、ポリグリコール油のトラクション特性と分子構造の関係を調べた。試料として、分子量が異なるポリプロピレングリコールと、その末端を水酸基からメトキシ基やエステル基、アミン基に変えた試料、そして無極性の炭化水素油を用いた。また二成分系として、アルキル鎖長の異なる脂肪酸を、極性と無極性の基油に添加した試料油を用いた。

トラクション測定と顕微 FTIR を用いる潤滑膜のその場観察、光干渉法を用いる油膜厚さ測定、水分濃度測定を行った。さらに、接触部で分子間相互作用が変化する要因を探るために、ダイヤモンドアンビルセルを用いて、分子間相互作用に対する圧力と温度の影響を調べた。このように潤滑特性を調べる試験と、分子間相互作用を調べる試験を行い、得られたデータに基づいて潤滑特性と分子間相互作用との関係を検討した。

4. 研究成果

単一系における試験の成果として、極性の官能基(水酸基、アミン基など)を有するポリグリコール油は無極性の炭化水素油に比べてトラクション係数が高く、末端の官能基によってトラクション係数が大きく変化することが分かった(Fig.1)。また、光干渉法から得られた油膜厚さと常圧粘度との間には相関が見られたが、ポリグリコール油の末端官能基をメトキシ基に変えた試料や無極性の炭化水素油は、常圧粘度が高い場合でも油膜が薄くなり分子間相互作用の影響が示唆された(Fig.2)。さらに、水分濃度と試料の極性との間に相関が見られ、水分濃度が高い試料のトラクション係数が高い傾向が見られた。これは水分子が分子間相互作用、この場合は水素結合に影響を及ぼすことが示唆された。

顕微 FTIR を用いるその場観察の結果から、分子末端の極性官能基による分間相互作用が、接触域において強くなり、面圧が大きいとより強くなることを明らかにした。すなわち分子間相互作用に対して EHL 接触部における高圧の影響が大きく、高圧によって分子間距離が短くなることで、分子間相互作用がより強くなることが分かった。一方で、温度上昇によって分子間相互作用が弱くなることが分かった。トラクション係数と末端官能基の関係から、EHL の高圧で分子間相互作用が強くなり、粘性が増大することでトラクション係数や油膜厚さが変化すると考察した。すなわち分子末端の官能基を変えることで潤滑特性を制御できることを示した。

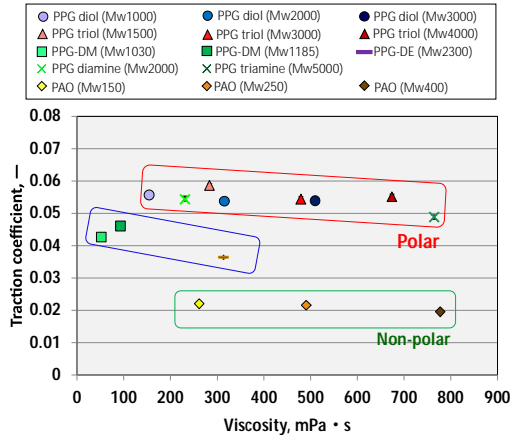


Fig. 1 Correlation between traction coefficient and viscosity
 Entrainment speed: 0.27m/s, Load : 11N,
 SRR : 0.1, Oil temperature : 25

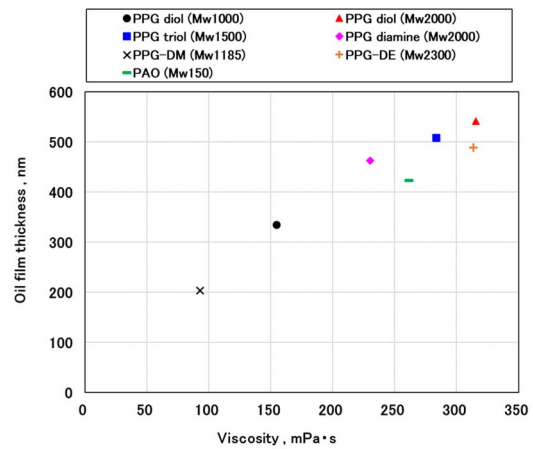


Fig. 2 Correlation between oil film thickness and viscosity
 Entrainment speed: 0.27m/s, Load: 11N,
 SRR : 0, Oil temperature: 25

次に、脂肪酸添加油を試料として二成分系の実験を行った。潤滑膜のその場観察を用いて各試料の赤外線吸収スペクトルを測定したところ、 $2900 \sim 2950 \text{ cm}^{-1}$ 付近に基油由来の C-H 伸縮振動のピークが見られ、 $1700 \sim 1750 \text{ cm}^{-1}$ 付近に脂肪酸由来の C=O 伸縮振動のピークが見られた。C-H 伸縮振動と C=O 伸縮振動との比から脂肪酸濃度を求めたところ、無極性の基油を用いたときに接触域における脂肪酸の濃度が低下し (Fig.3)、極性の基油を用いると濃度低下が見られなかった。特に炭素鎖が短い脂肪酸の質量濃度の低下が大きいという結果となったが、分子数ではほぼ同程度の脂肪酸が EHL 接触部に少ないながらも導入されていることが分かった。

脂肪酸濃度と常圧粘度およびトラクション係数の関係を整理したところ、脂肪酸濃度の増加に伴って、常圧粘度とトラクション係数が小さくなった。特に分子量が小さく粘度も低い脂肪酸を添加した試料は、常圧粘度とトラクション係数が最も小さな値を示した。また、脂肪酸添加油と PAO 単独について、脂肪酸濃度 (mol/kg) と常圧粘度との関係を整理したところ相関が見られた。次に、常圧粘度とトラクション係数との関係で整理したところ、脂肪酸添加油と PAO 単独の間には相関が見られなかったが、その場観察で得られた EHL 接触部の濃度から推算した粘度とトラクション係数との関係について整理すると相関が得られた (Fig.4)。以上の結果から、EHL 接触部における脂肪酸濃度の変化によって粘度が変化し、トラクション係数に影響を与えていることが明らかとなった。

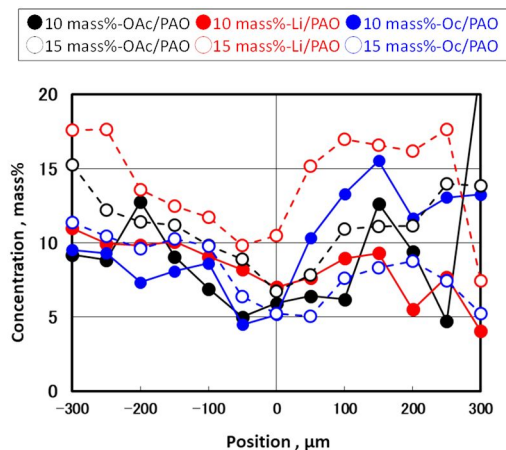


Fig. 3 Concentration of fatty acid at EHL contact region
 Load : 10.0 N, Slide/Roll ratio : 0,
 Entrainment speed : 0.13 m/s

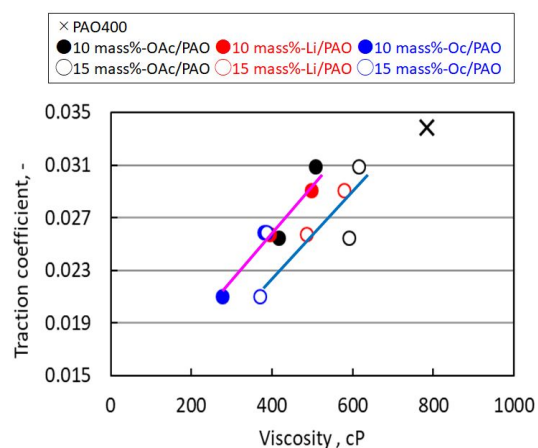


Fig. 4 Correlation between traction coefficient and viscosity
 Load : 10.0 N, Slide/Roll ratio : 0.4,
 Entrainment speed : 0.13 m/s

以上の結果から、単成分と二成分系における分子間相互作用の潤滑特性への影響に関する知見を得た。潤滑剤設計の技術革新に貢献すると共に、分子間相互作用に基づく潤滑剤設計指針構築の一助となることが期待される。

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 Koji Takiwatari, Shinya Sato, Yasushi Hoshi, Hidetaka Nanao, Shigeyuki Mori	4. 巻 16
2. 論文標題 Effect of Functional Groups of Polyglycol Oils on Their Lubrication Properties	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Tribology Online	6. 最初と最後の頁 24-30
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2474/trol.16.24	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1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 Koji Takiwatari, Yasushi Hoshi, Hidetaka Nanao
2. 発表標題 In situ observation of molecular interaction between polar functional groups in lubricant components during lubrication
3. 学会等名 4校学術交流会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 中谷達行、山口健、小長谷重次、桃園聡、滝渡幸治他	4. 発行年 2020年
2. 出版社 情報技術協会	5. 総ページ数 550
3. 書名 高分子材料のトライボロジー制御	

〔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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------