

令和 3 年 5 月 29 日現在

機関番号：34310

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01362

研究課題名（和文）量子ビームを用いた摺動界面のメカノオペランド計測に基づく境界潤滑層の動的挙動解析

研究課題名（英文）Dynamic Behavior of Boundary Lubrication Analyzed by Quantum Beam with Mechano-Operando Mechanism

研究代表者

松岡 敬（Takashi, Matsuoka）

同志社大学・理工学部・教授

研究者番号：80173813

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、境界潤滑層の動的挙動の解明に向けた強いニーズを受け、これまでの in-situ 分析から operando 分析に昇華させることによって、摺動条件下での境界潤滑層の動的挙動解析を行うことを目的とした。具体的には、各種量子ビーム分析に摺動機構を有するサンプルホルダーを組み合わせることで、摺動条件下における境界潤滑層の動的挙動を調査した。その結果、中性子反射率法と放射光X線吸収微細構造法によって境界潤滑層の物理構造と化学状態が得られることを確認した。また、摺動機構をそれらビームラインに設置することにより、部分的ではあるが、摺動場における境界潤滑層挙動の取得に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

境界潤滑層を対象とした量子ビーム固液界面分析は国内外を含めてこれまで他に研究事例が極めて少なかったが、当研究グループによる成果を受け、量子ビーム分析の有効性を広めることができた。また、コロイドプローブAFMを用いて、固液界面の境界潤滑層の物理構造および化学状態と摩擦係数の関係性を調査したところ、界面における吸着膜が厚く、密であるほど、摩擦係数が下がることを確認した。添加剤に依る境界潤滑摩擦係数の予測と最適化はトライボロジー分野において積年の課題の一つであるが、量子ビーム分析を活用することによって、その予測が可能となることが示唆された。

研究成果の概要（英文）：In this study, we aimed to analyze the dynamic behavior of the boundary lubrication layer under sliding conditions by sublimating the conventional in-situ analysis to operando analysis in response to the strong need for clarifying the dynamic behavior of the boundary lubrication layer. Specifically, the dynamic behavior of the boundary lubrication layer under sliding conditions was investigated by combining various quantum beam analyses with a sample holder having sliding mechanism. As a result, it was confirmed that the interfacial structure and chemical state of the boundary lubrication layer could be obtained by neutron reflectometry and synchrotron-XAFS. In addition, we succeeded in obtaining the boundary lubrication layer behavior under the sliding condition by installing the sliding mechanism in those beamlines.

研究分野：トライボロジー

キーワード：トライボロジー 境界潤滑 量子ビーム分析 メカノオペランド機構

## 1. 研究開始当初の背景

機械工学技術において、要素間の摩擦およびそれに伴う摩擦の発生に関する諸問題は極めて重要な課題であり、トライボロジー分野において多くの研究が進められている。機械における摩擦の形態は乾燥摩擦と潤滑摩擦に大別することができ、さらに潤滑摩擦は、一般的に、境界潤滑状態、混合潤滑状態、流体潤滑状態（弾性流体潤滑状態含む）の三態に分類できる。このうち、機械の約 60%の摺動部が境界潤滑状態にあるとされており、高効率な低摩擦摺動の実現を目指す上で境界潤滑摩擦の現象理解は決して避けて通ることができない。

境界潤滑状態を表す摩擦モデルが始めて公に提示されたのは 1920 年代であり、その歴史は極めて古い。境界潤滑状態においては、固体表面あるいは固体間に形成される何らかの柔らかい「層」（一般的に「境界潤滑層」と呼ばれる）の存在がキーとなっているとされており、これまで、それら層の構造および形成メカニズムに関する多くの議論がなされてきた。一般的な機械において、そのような境界潤滑層形成の素となるのは、主として、潤滑油中に混入されている添加剤である。中でも、「油性剤」は脂肪酸、アルコール、アミン、アミド、エステルなどの有機分子から成り、摩擦面に吸着することによって固体同士の直接接触を防ぐ役割を果たすとされる。

近年、自動車をはじめとする各種機械において、更なる低摩擦化への要求が日増しに高まっている。特に自動車においては、2010 年ごろからエンジンオイルの急速な低粘度化が進められており、潤滑状態は極めて厳しいものとなってきている。そのような厳しい境界潤滑状態において、添加剤の最適化、高性能化は喫緊の課題であり、添加剤から成る境界潤滑層の in-situ 分析に大きな期待が寄せられてきた。例えば、申請者らは中性子反射率法 (NR) や周波数変調式原子間力顕微鏡法 (FM-AFM) 等を用いた分析を世界に先駆けて行い、添加剤吸着層の厚みや密度の定量化、また、その可視化に成功し、実績を残してきた。一方で、赤外分光法や和周波分光法等のラボ系分析手法と摺動機構を組み合わせた境界潤滑層の動的挙動に関する研究事例も着実に増えており、境界潤滑層の構造や挙動が徐々に明らかとなってきていると言える。しかしながら、申請者らのように量子ビームを用いた境界潤滑層の構造解析事例は現在でも稀であり、ラボ系分析手法に比べて得られる情報量が格段に多い点で、未だ世界的に先進的な位置付けにあるものと自負する。

## 2. 研究の目的

本研究では、上述のような境界潤滑層の動的挙動の解明に向けた強いニーズと申請者らが有する量子ビーム分析に関するシーズを融合させるとともに、さらにこれまでの in-situ 分析から operando 分析に昇華させることによって、摺動条件下での境界潤滑層の動的挙動解析を行うことを目的とする。具体的には、各種量子ビーム分析に摺動機構を有するサンプルホルダーを組み合わせることにより、摺動条件下における境界潤滑層の動的挙動を調査するものとする。その場 (in-situ) 分析に対して operando 分析とは実作動条件下での分析を行うことを指すが、量子ビームを用いたオペランド分析と言えばその大半が電池や触媒を対象とした電気化学的な分析に留まっており、トライボロジーを想定した量子ビームオペランド分析は世界的に見て皆無である。申請者はここに、このような機械エネルギーを分析系に与えながら測定を行うオペランド分析を「メカノオペランド分析」と名付ける。

これまで、NR に関しては申請者らによる研究実績があるものの、境界潤滑層を対象とした量子ビーム固液界面分析は国内外を含めて他に研究事例がなく、それ自体が新規的な取り組みとなる。また、それらに摺動機構を組み合わせる試みは当然見当たらず、極めて独自性が高く、挑戦的な課題である。しかしながら、近年の摺動部の更なる低摩擦化への要求は極めてシビアであり、本研究が潤滑油設計指針の提示に繋がれば、その波及効果は極めて大きい。

## 3. 研究の方法

### 【研究目標①】

J-PARC BL16 にある中性子反射率計 SOFIA に狭小すきま摺動試験機を設置することにより、せん断場にある境界潤滑層の物理構造（厚みおよび密度変化）を調べる。NR を用いたこれまでの実験により、例えば、基油に一般的な合成油であるポリアルファオレフィン (PAO) を、添加剤に脂肪酸を用いると、金属/潤滑油界面に高々数 nm の境界潤滑層が形成されることを確認している。一方、摺動条件下においては添加剤から成る境界潤滑層は「成長する」(=厚みが増す)との報告もあり、摺動条件下にある境界潤滑層の直接的な物理構造解析が期待されている。

ビームラインに設置する狭小すきま摺動試験機の構造図を図 1 に示す。太線で囲まれた部位が試験部であり、その構造は拡大図に示すとおりである。中央に配した空気静圧スラスト軸受によって上側試験片と下側ディスクの間のすきまを一定かつ平行に支持した状態で回転摺動が可能となる構造となっている。潤滑油は上側試験片の外縁部に塗布し、下側ディスクの側面から入射する中性子線によって、下側ディスクと潤滑油界面における境界潤滑層の構造解析を試みる。

### 【研究目標②】

NSE とは、入射光と測定対象からの散乱光のスピ  
ン角の差異を調べることによって、対象物の粘弾性  
挙動を調べる手法である。本研究では J-PARC BL6  
にある中性子スピネコー計 VIN-ROSE に狭小すま  
ま摺動試験機を組み込むことにより、摺動条件下に  
ある境界潤滑層の粘弾性挙動の調査に取り組む。中  
性子線は NR と同様下側ディスクの側面より入射し、  
反射法によって下側ディスクと潤滑油界面に存在す  
る境界潤滑層の情報抽出に挑む。NSE によって境界  
潤滑層の粘弾性挙動の測定を行うこと自体が世界初  
の試みとなるため、まずは測定法の確立からトライ  
する。

### 【研究目標③】

PF-AR NW10A ビームラインを用いて、多素子 SSD  
を用いた蛍光 XAFS 法によって固液界面からの情報  
を得る。また、下側ディスク (φ10mm、厚み 5mm 程  
度) をモータによって回転させ得る機構に改良する  
ことにより、基板と高分子フィルム間に形成された  
潤滑油膜のメカノオペランド化学状態分析に挑戦す  
る。

### 【最終目標】

以上より、摺動条件下における境界潤滑層の動的挙動を明らかにし、更なる低摩擦摺動を実現し得る潤滑油設計指針の提示を目指す。特に、境界潤滑層の物理構造に着目した研究はこれまでも存在したが、その物理構造、化学状態を in-situ 分析した事例はなく、ましてや摺動条件下でそれらがどのように変化するかを調べた事例は皆無である。境界潤滑層の物理構造、化学状態とコロイドプローブ AFM を用いて取得したナノトライボロジー特性を関連付けることにより、摩擦係数に寄与する境界潤滑層の物性抽出を目指す。

## 4. 研究成果

### 【研究目標①】

オペランド NR によるトライボ摺動面構造の時分割分析を目指し、初めに、その装置開発と動作確認およびデータ取得を行った。1μm 以下の極めて薄い油膜を形成しながら摺動するリングオンディスク式狭小すま摺動試験機を開発し、さまざまな種類の添加剤入り潤滑油を用いて摺動試験を行ったところ、極性の強い添加剤を含む潤滑油において低速で増粘するという目新しい傾向が得られた。その増粘の素を NR で分析することを目標として J-PARC に開発装置を持ち込み、安全審査承認を得た。J-PARC SOFIA ビームラインに搭載した状態を図 2 に示す。

### 【研究目標②】

NSE による境界潤滑層の粘弾性特性取得を試みたが、反射体系でスピネコーシング信号を得ることは極めて困難であった。よって、その他の研究目標達成に向けて大きく舵取りをした。

### 【研究目標③】

Synchrotron-XAFS と摺動機構の組み合わせによるせん断場にある境界潤滑層の化学状態解析に取り組むべく、その事前分析と装置設計を行った。本実験では PF-AR NW10A の XAFS ビームラインにてセル側方から X 線を入射し、蛍光法によって吸収プロファイルを取得した。一例として、MoDTC のみを混入した潤滑油および MoDTC とパルミチン酸を混入した潤滑油を滴下したときのプロファイルの差異を調べたところ、ピーク強度およびピーク位置の違いから、パルミチン酸との併用および銅表面の触媒反応によって当初の MoDTC とは異なる化学構造の物質が生成されたことが示唆された。Synchrotron-XAFS による境界潤滑層の分析事例は極めて少なく、有効なデータ取得が確認できた。

### 【最終目標】

コロイドプローブ AFM を用いて、固液界面の境界潤滑層の物理構造および化学状態と摩擦係数の関係性を調査したところ、界面における吸着膜が厚く、密であるほど、摩擦係数が下がることを確認した。添加剤に依る境界潤滑摩擦係数の予測と最適化はトライボロジー分野において積年の課題の一つであるが、量子ビーム分析を活用することによって、その予測が可能となることが示唆された。

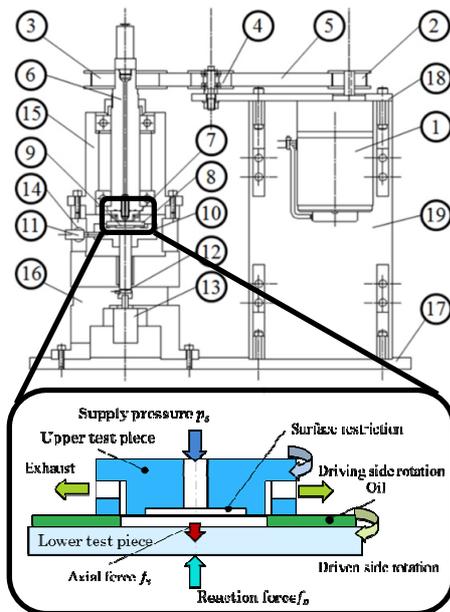


図 1 狭小すま摺動試験機



図 2 メカノオペランド NR

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 平山朋子, 山下直輝	4. 巻 64, 11
2. 論文標題 トライボロジー現象解明に向けた量子ビーム分析の応用【解説】	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 トライボロジスト	6. 最初と最後の頁 641-647
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tomoko Hirayama, Masayuki Maeda, Yuto Sasaki, Takashi Matsuoka, Hiroshi Komiya, Masahiro Hino	4. 巻 -
2. 論文標題 Tomoko Hirayama, Masayuki Maeda, Yuto Sasaki, Takashi Matsuoka, Hiroshi Komiya, Masahiro Hino	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Lubrication Science	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/lis.1420	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Tomoko Hirayama
2. 発表標題 What is the Best Design of Oil Additives for Friction Reduction? (Plenary Lecture)
3. 学会等名 International Tribology Conference Sendai 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

同志社大学工学部機械系学科 機械設計工学研究室  
<https://www1.doshisha.ac.jp/~dmd1/index.html>

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
研究分担者	平山 朋子  (Hirayama Tomoko)  (00340505)	京都大学・工学研究科・教授    (14301)	

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