

令和 5 年 6 月 12 日現在

機関番号：12701

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2021～2022

課題番号：21K20402

研究課題名(和文) 摩擦界面のその場観察による100%セルロースナノファイバー成形体の潤滑機構の解明

研究課題名(英文) Revelation of lubrication mechanisms of 100% cellulose nanofiber moldings by a tribo-operand spectroscopic method

研究代表者

大久保 光 (Okubo, Hikaru)

横浜国立大学・大学院環境情報研究院・助教

研究者番号：50906352

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、100%セルロースナノファイバー(CNF)で構成された成形体：CNF成型体の基礎的なトライボロジー特性の調査及びその摩擦面構造について調査した。その結果、CNF成型体は特定の潤滑条件：極性油中もしくは高温乾燥摩擦条件において超低摩擦性を示すことが確認された。極性油中では、CNFの官能基変性が進行し、特異な界面構造を形成することで低摩擦性が発現するものと結論した。また、高温乾燥摩擦条件では、摩擦界面において、非晶質なCNFが形成されることが確認され、そのような特異な膜が摩擦低減作用をもたらすものと結論した。今後は、CNF成型体のさらなる潤滑機構の解明とそれに基づく高機能化を目指す。

研究成果の学術的意義や社会的意義

CNFを材料に導入することで、機械特性やトライボロジー特性を制御しようとする研究開発はこれまでも実施されているが、いずれも材料に対するセルロース・CNF濃度は数%程度であり、そのトライボロジー現象は母材の材料に依るところが大きい。本研究は、単成分で高い機械的強度と特異的な特性を有するCNFを濃度100%の成形体として摺動材料として取り、超低摩擦性を獲得するシステム設計を見出した点で、学術的・産業的な意義は大きい。また、本研究で扱ったCNF成型体は、カーボンニュートラルに資する100%バイオマス素材で構築された材料であり、この100%CNF成型体の実用性を示した本研究の社会的意義は大きい。

研究成果の概要(英文)：In this study, we investigated the basic tribological properties and friction surface structure of a 100% cellulose nanofiber (CNF) molding. From the results, the CNF molding exhibits ultra-low friction under specific lubrication conditions: under a lubrication with a polar oil or high-temperature dry friction conditions. For the lubrication with the polar oil, the functional group denaturation of the CNF surfaces progresses on the frictional surface, and it results in the formation of a specific solid-liquid interface structure that exhibiting ultra-low friction. Under high-temperature dry friction conditions, amorphous CNFs film forms at the friction interface, and it was concluded that such a specific film exhibits ultra-low friction. We will further elucidate the lubrication mechanism of the CNF moldings and develop the CNF molding with advanced features based on the mechanism.

研究分野：トライボロジー

キーワード：セルロースナノファイバー トライボロジー その場観察 超低摩擦 オペランド計測

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、次世代のバイオマス産業資材として CNF の研究開発が進められている。CNF は、セルロース分子が集合したセルロースマイクロファイブリルから構成されるファイバー状の構造体であり、鋼の 5 倍以上の高強度と 1/5 の低比重を有したバイオマス材料である。この優れた CNF の特性を生かして、石油由来素材の代替として CNF の産業利用が拡大しつつある。一方、CNF の新奇的な利用法として、CNF のみで構成された 100%CNF 成形体（以下、CNF 成形体）がある。CNF 成形体は、CNF 分散液を加圧・脱水成形することで得られる、高強度、軽量、高熱伝導率及び高加工性を有するバイオマス成形体である（図 1）。CNF 成形体は代表的な機械材料である鉄鋼・プラスチックに匹敵する強度を有しているが、機械要素とりわけ過酷な運転条件下の使用が想定される摺動機械要素への応用が検討された事例はない。このことは一方で、CNF 成形体の摺動機械要素への応用が実現すれば、CNF 成形体の機械要素応用を加速させるプレイクスルーとなりうる。

一方、CNF 成形体の摺動機械要素への応用を考えた場合、機械的強度のみならず摩擦・摩耗特性すなわちトライボロジー特性を考慮した材料設計が必須となる。トライボロジー現象は摺動材料の機械特性や化学的性質に支配されており、摩擦場の真実接触部における摩擦界面層（表面近傍の数 nm～数十 nm）の分子状態や構造がマクロな摩擦特性に多大な影響を及ぼす。

2. 研究の目的

本研究では、CNF 成形体のトライボロジー特性及びその表面・内部構造の変態挙動に着目し、種々の分析装置による界面構造計測により、CNF 成形体の潤滑メカニズムを解明する事を目的とした。得られた知見に基づき、CNF 成形体の問題点を抽出し、高機能化を果たすことで、摺動機械要素に適用可能な次世代バイオマス摺動材料の創製を目的とする。

3. 研究の方法

(1) CNF成形体のトライボロジー特性と界面構造の関係

Raman 分光分析装置と組み合わせ可能なボール・オン・ディスク型の摩擦試験機を用いて、異なる潤滑条件で摺動させた CNF 成形体の摩擦・摩耗特性を評価し、その表面・内部構造変化を赤外分光分析、ラマン分光分析、原子間力顕微鏡により相補的に評価することで、CNF 成形体のトライボロジー特性とその構造の関係を明らかにすることとした。図 1 に本研究で使用したボール・オン・ディスク型の摩擦試験機の概要図を示す。

(2) その場計測装置の開発

CNF の内部構造解析に優れるラマン分光分析を摩擦試験機に組み込むことで、摩擦場のその場分光分析システムを構築する。摩擦場における CNF 成形体の摩擦に伴う構造変化の挙動を解析することで、CNF 成形体の摩擦励起構造変化挙動とトライボロジー特性との関係を明らかにすることとした。図 2 に開発装置の写真及び概要図を示す。

(3) 高機能化CNF成形体の創製

CNF の高い界面制御性を利用した最適な添加剤の導入、CNF 解繊度の最適化及び CNF 成形体の成形条件に着目し、その高機能化を図ることとした。

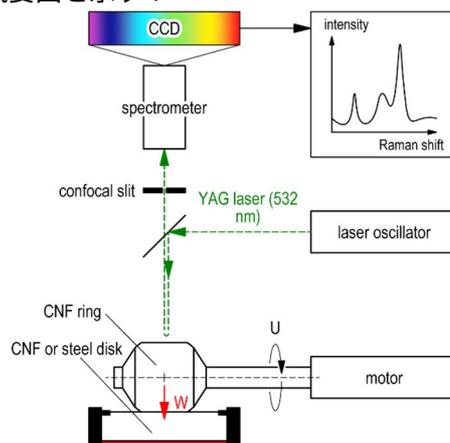


図 1 ボール・オン・ディスク型摩擦試験機

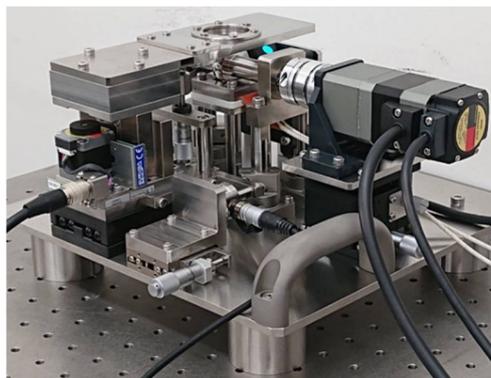


図 2 開発装置

4. 研究成果

(1) CNF 成形体のトライボロジー特性と界面構造の関係

図 3 にエステル系摩擦調整剤：GMO の化学構造を示し、図 4 に基油及び GMO が含有された潤滑油中における CNF 成型体の摩擦速度依存性を示す。図 4 より、CNF 成型体は、GMO 油中で、広い速度範囲で摩擦係数 0.01 程度の超低摩擦性を発現する事が明らかとなった。この超低摩擦性は、軸受鋼球同士（SUJ2 - SUJ2）の組み合わせでは発現せず、現行材料のダイヤモンド

ドライカーボン膜に匹敵する低摩擦性能である。本結果より、CNF 成型体は高い機械的強度と環境適合性のみならず、超低摩擦性も兼備する高機能材料であることが示された。

次に、この超低摩擦機構を明らかとするため、赤外分光分析及び原子間力顕微鏡による固液界面構造の分子密度マッピングを試みた。図5に赤外分光分析の結果を示す。図5の赤外分光分析の結果より、CNF 成型体表面に GMO の吸着を示す C=O の結合が確認された。従って、CNF 表面は GMO により官能基変性が進行している物と推察される。また、図6に周波数応答原子間力顕微鏡による固液界面の分子密度マッピングの計測結果を示す。本結果より、CNF 成型体は 40-60nm 程度の厚膜な界面層を形成している事が明らかとなった。なお、このような界面層は、SUJ2 鋼材表面では検出されない。

従って、このような CNF 成型体独自の特異な界面層が超低摩擦性に寄与するものと思われる。

(2) その場計測装置の開発

図2に示すその場計測装置を開発した。本装置は、レーザー走査型イメージング Raman 装置と組み合わせる事が可能な摩擦試験機である。本装置により取得したその場計測データを図7に示す。固液界面における材料・潤滑油のふるまいを時空間分解で可視化する事に成功している(図7下段)。本装置により、CNF 成型体の摩擦場における界面構造の変化とトライボロジー特性の関係を調査予定である。

(3) 高機能化 CNF 成型体の創製

図8にグラフェンを導入した CNF 成型体 (g-CNF) の外観図を示す。グラフェンを導入する事で、CNF 成型体の外観は黒くなる。また、g-CNF 成型体の摩擦特性は、最適な添加濃度 (0.01-0.05 mass%) で摩擦低減効果が発現する事が明らかとなった。

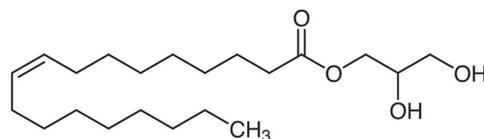


図3 GMO の化学構造

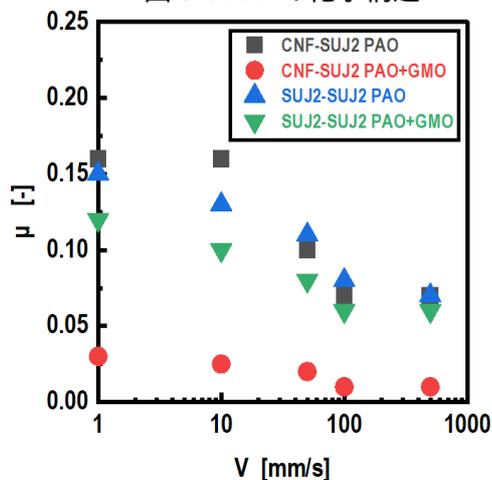


図4 μ-V カーブ

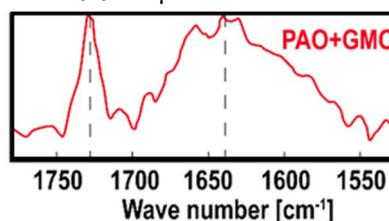


図5 赤外分光分析

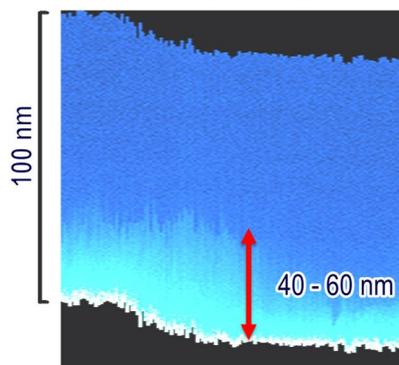


図6 固液界面の分子密度マッピング

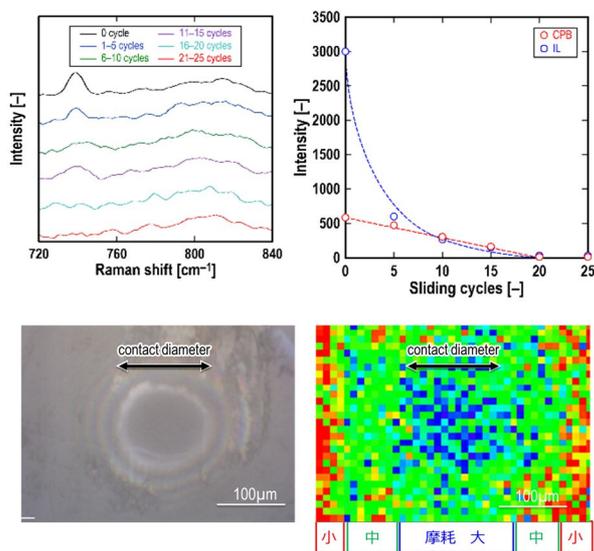


図7 固液界面のその場計測データ

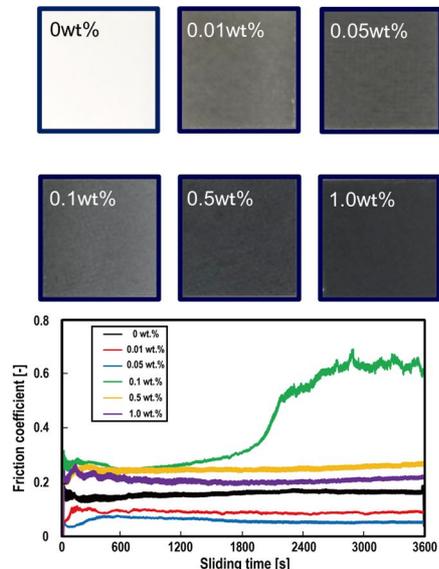


図8 グラフェン導入型 CNF 成型体

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 H. Okubo, R. Nakae, D. Iba, K. Yamada, H. Hashiba, K. Nakano, K. Sato, S. Sasaki	4. 巻 -
2. 論文標題 Tribological properties of 100% cellulose nanofiber (CNF) molding under dry- and boundary lubrication-conditions at CNF/steel contacts	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Cellulose	6. 最初と最後の頁 -
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 オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 中江 亮太
2. 発表標題 セルロースナノファイバー成形体の基礎トライボロジー特性に関する研究
3. 学会等名 日本機械学会関西学生会2021年度学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 大久保 光
2. 発表標題 無潤滑・潤滑油環境下における100%セルロースナノファイバー（CNF）成形体のトライボロジー特性
3. 学会等名 日本機械学会 第20回機素潤滑設計部門講演会 2021年12月
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 大久保光
2. 発表標題 100% セルロースナノファイバー（CNF）成形体の潤滑特性に及ぼす摩擦調整剤の影響
3. 学会等名 日本トライボロジー学会 トライボロジー会議秋2022 福井
4. 発表年 2022年～2023年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 大久保光他	4. 発行年 2022年
2. 出版社 北隆館	5. 総ページ数 50
3. 書名 アグリバイオ 2022年4月号 農林水産物・食品のブランディング向上	

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 摺動部材及びその製造方法	発明者 大久保光, 橋場洋美, 稲用亨, 中込亮太, 射場大輔	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、2022132916	出願年 2022年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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
---------	---------