

氏名（本籍） 川^{かわ} 田^だ 将^{しょう} 平^{へい}（愛知県）
学位の種類 博士（工学）
学位記番号 甲第974号
学位授与の日付 2018年3月19日
学位授与の要件 学位規則第4条第1項該当
学位論文題目 ハロゲンフリーイオン液体の潤滑特性に関する研究

論文審査委員 （主査）教授 佐々木信也
教授 荒井 正行 教授 中曽根祐司
准教授 牛島 邦晴 准教授 宮武 正明
教授 酒井 秀樹

論文内容の要旨

近年、地球環境問題を背景に、機械システムのさらなる高効率・高性能化が強く求められている。しゅう動部に対する要求も過酷化により、既存の潤滑システムに代わる、新たな技術の展開に期待が寄せられている。イオン液体は常温・常圧下で液体状態の塩として、1914年に P. Walden によって報告されている。しかし、当時は大気中で不安定な物質であったため、あまり注目されることはなかった。1992年に H. S. Wilkes らによって、大気中で安定かつ低融点のものが開発され以降、電気化学の分野などで基礎的な研究が活発化した。トライボロジーの分野では、それより以前の 1989年に H. Kondo らがイオン液体を磁気テープの潤滑剤として利用した研究成果を報告している。イオン液体は、蒸気圧が極めて低く、熱安定性が高いという特徴を持つ。また、カチオンとアニオンの組み合わせにより、多数のイオン液体の合成が可能である。これらの優れた特徴より、イオン液体は極限環境下などにおける新たな潤滑剤として応用が期待されている。

イオン液体の潤滑特性に関する研究のほとんどは、フッ素をはじめとするハロゲン元素を含有するイオン液体を利用していた。ハロゲン系イオン液体は金属しゅう動面とのトライボケミカル反応により、フッ化金属を境界潤滑膜として形成し、良好な境界潤滑特性を発現するものと考えられている。しかしながら、ハロゲン系イオン液体は、金属材料に対して腐食を引き起こすことが知られている。この腐食現象を防ぐために様々な方策が採られているが、抜本的な解決としてはハロゲンフリーイオン液体の利用に期待が寄せられている。本研究ではハロゲンフリーイオン液体の潤滑特性を評価し、潤滑メカニズムを考察

することで、ハロゲンフリーイオン液体の利用する新たな潤滑システムの構築を目的としている。

本論文の構成および概要を以下にまとめる。

第1章では、本研究の背景と目的、本研究に関する既往研究について述べている。

第2章では、既存の潤滑剤を参考として、リンや硫黄元素を分子構造内に含むイオン液体を潤滑剤として利用し、潤滑特性を評価し、各種分析装置を用いることで、潤滑メカニズムについて相補的解釈を行った。イオン液体が摩擦面で分解し、リンや硫黄元素が摩擦面と反応物を生成していることが示唆され、アルキル鎖の長さを変更することにより、分解・反応性が制御できることがわかった。

第3章では、リンや硫黄元素も含まない、環境に優しいシアノ系イオン液体に着目し、潤滑メカニズムについて考察を行った。シアノ系イオン液体は摩擦面で分解を起こし、アニオンがそのままの状態では摩擦面に吸着していると良好な潤滑特性をもたらすことが示唆された。これは摩擦面とアニオンが相互作用しているためと考えられる。一方で、摩擦面で分解しないイオン液体の潤滑特性は悪かった。この分解特性については、熱重量分析の結果から体系化することができた。

第4章では、シアノ系イオン液体の潤滑特性改善を目指し、しゅう動材料としてセラミックスやダイヤモンドライクカーボン(DLC)膜を用いた。この系においても、第3章と同様に、摩擦面で分解を起こしているイオン液体が良好な潤滑特性を示した。この結果も熱重量分析と相関が得られた。また全ての材料種に対してアニオンが表面に吸着していることがわかり、摩擦面とアニオンが相互作用していると考えられる。

第5章では、総括および今後の展望を述べている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、既存の潤滑システムよりも摩擦損失が低減可能な新たな潤滑システムの構築を目的としている。申請者は、優れた特性を有するイオン液体という物質に着目し、新たな潤滑剤としての応用を試みた。イオン液体の潤滑特性に関する研究は、ハロゲン元素を分子構造内に含む物質を潤滑剤として用いた報告が多く、既存の潤滑油よりも低摩擦・低摩耗を発現することがわかっている。しかしながら、ハロゲンは摩擦面の腐食や有毒ガスであるフッ化水素の発生を引き起こすことが確認されている。申請者はハロゲンによる腐食などの問題を抜本的に解決するため、ハロゲンフリーイオン液体に着目し、潤滑特性の評価、潤滑メカニズムの考察を行った。本論文では、ハロゲン系イオン液体よりも良好な潤滑特性を示すハロゲンフリーイオン液体を見出したことに成功し、その潤滑メカニズムについて詳細な考察を行った。本論文は、結論を含め5章からなる。

第1章では、イオン液体の特徴・物性を記し、ハロゲン含有イオン液体の潤滑特性および問題に関する報告をまとめ、ハロゲンフリーイオン液体の応用が必要であることを

示した。利用するハロゲンフリーイオン液体について、①摩擦面に反応膜を形成するハロゲンフリーイオン液体。②摩擦面に吸着膜を形成するハロゲンフリーイオン液体。以上の2種類に分類して実験を行った。摩擦面に存在している物質をX線光電子分光および飛行時間型二次イオン質量分析計により同定し、しゅう動中のイオン液体の反応について、四重極質量分析計を用い潤滑メカニズムを考察した。

第2章では、摩擦面に反応膜を形成する「硫黄・リン系イオン液体」について調査した。これらのイオン液体はハロゲン系イオン液体や宇宙用潤滑剤よりも良好な潤滑特性を示すことが確認された。摩擦面には硫黄およびリン由来の反応膜が形成されており、この反応膜が摩擦低減効果を有すると考えられる。イオン液体の反応性が高すぎると、化学摩耗による摩耗増大が観察されたが、イオン液体のイオン液体のアルキル鎖長を制御することにより、摩擦面での反応性を制御できることが見出された。

第3章では、摩擦面に吸着膜を形成する「シアノ系イオン液体」について調査した。イオン液体の構造を制御することにより潤滑特性が変化することが確認されたが、ハロゲン系イオン液体よりも高い摩擦係数を示すことがわかった。低摩擦を示した摩擦面にはアニオンが吸着しており、摩擦により分解しやすいカチオンを用いることにより、このアニオンの吸着を促すことができると考えられる。イオン液体の分解のしやすさは、熱重量分析計により評価できることが見出された。

第4章では、吸着膜を形成する物質は、摩擦材料の種類により吸着特性が異なることから、摩擦材料を選択することにより、シアノ系イオン液体の潤滑特性向上を試みた。摩擦材料とイオン液体のペアを選択することにより、ハロゲン系イオン液体よりも低摩擦を示すことが見出された。その場合も、カチオンが摩擦に伴い分解しており、アニオンが摩擦面に吸着していた。イオン液体の分解のしやすさは、摩擦新生面の触媒活性が重要であると考えられる。

第5章の結論では、第2章から第4章の総括をし、しゅう動条件によって、ハロゲンフリーイオン液体の使い分けについて述べている。また、さらなる潤滑メカニズムを考察するための今後の方針を述べている。

以上のことから、本論文が博士（工学）の学位論文として十分に価値あるものと認められる。