

氏名（本籍） わた なべ せい や 渡部 誠也（北海道）
学位の種類 博士（工学）
学位記番号 甲第 933 号
学位授与の日付 平成 29 年 3 月 18 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 振動分光法を用いた分子吸着膜の摩擦界面その場観察に関する研究

論文審査委員 （主査）教授 佐々木信也

教授	山本 誠	教授	荒井 正行
教授	河合 武司	教授	近藤 行成
教授	由井 宏治	教授	酒井 秀樹
教授	野口 昭治		

論文内容の要旨

機械システムにおける摺動部には潤滑剤が使用される。昨今の潤滑剤を取り巻く状況として、環境への配慮や潤滑油の低粘度化など新規潤滑剤の開発が要求され、潤滑メカニズムの解明が一層強く望まれるようになった。これまでに報告されている潤滑メカニズムでは、摺動中の膜厚計測などから、一層ないし数層程度の分子吸着膜が摩擦低減に寄与していると言われていたが、摺動中の化学分析の難しさから、実際の摩擦界面における吸着膜分子の振る舞いは未解明である。本論文では、界面敏感な分析手法である和周波発生分光分析を用いて分子吸着膜の摩擦界面その場観察を行った。一般的に摩擦低減に用いられる油性添加剤であるステアリン酸を測定対象とし、その摩擦界面における分子の振る舞いについて観察を行った。その結果、動的状態において、高面圧条件下では従来報告されているような、ステアリン酸分子吸着膜が相対運動する二面間の接触を妨げることが観測されたが、流体膜が保持されるような低面圧条件においては、吸着膜分子がそのすべり界面における基油分子を摺動方向へ配向させる現象が新たに見出された。この基油流れを促す作用は、基油分子による流体抵抗を下げる役割があると考えられ、ステアリン酸分子吸着膜は、摺動条件ごとに異なる摩擦低減効果を発揮していることがわかった。加えて、これまでに得られた分子吸着膜の潤滑メカニズムの知見を活かすべく、分子構造が容易に組み替え可能なイオン液体を扱い、潤滑剤に適した分子構造を有するイオン液体について検討した。イオン液体の実用の観点から、その実用化の問題となる水とイオン液体の反応による

腐食について赤外分光法を用いて調査を行い、潤滑性について和周波発生分光を用いたその場観察を行い、耐腐食性・潤滑性の両方を有する潤滑剤に適したイオン液体について検討した。本論文ではイミダゾリウム塩を対象に、アニオン種の異なる 3 種類の塩を用い、アニオンがイオン液体の耐食性、潤滑性に与える影響について解析を行った。イオン液体の鋼材に対する腐食性について赤外分光分析を用いた解析から、静的条件におけるイオン液体の腐食性には湿度が大きく影響しており、大気中の水分とイオン液体の水分の平衡状態においてある閾値を超える水分が混和した際に腐食が生じることが示された。動的条件における腐食は、摺動による傷が腐食の起点となり低湿度においても腐食を進行させることや、厳しい摺動条件では、水とイオン液体、表面の反応によるトライボケミカル反応が進行することが明らかとなった。しかしながら、いずれの条件においてもイオン液体による摩擦材料の腐食は、疎水的なアニオンを有するイオン液体を用い、益虫に含まれる水分量を少なくすることで、抑制できることが示された。イオン液体の摩擦特性について SFG 分光分析を用いたイオン液体分子吸着膜構造の摩擦界面における解析から、アニオンが小さいイオン液体ほど摩擦界面においてイミダゾリウム環が小さい傾き角で配向し、低摩擦を示すことがわかった。このことから、イミダゾリウム系イオン液体では、小さいアニオン種を持つイオン液体が低摩擦を示すと考えられる。以上から、潤滑剤には、腐食性を考慮した疎水的なアニオンかつ、潤滑性を考慮した小さなアニオンを持つイオン液体が適していると考えられる。これら得られた知見から、今回選定したイオン液体の中では [BMIM]PF₆ が最も潤滑剤に適した分子構造を有していると言える。本研究により開発した新たなその場観察手法から、従来の静的条件下における分析では観測されなかった界面分子の振る舞いが初めて観測され、潤滑中における摩擦界面の分子構造は静的条件におけるものと動的条件におけるものは大きく異なることが明らかとなった。また、イオン液体を用いた実験から、潤滑中の摩擦界面における分子の振る舞いと摩擦特性には関係が示され、動的条件における摩擦界面のその場観察の重要性が明らかとなった。このように本観察手法は、動的条件下における界面分子の振る舞いの観点から潤滑メカニズムの解明に貢献し、摺動条件に適した添加剤の開発などの潤滑技術の向上に繋がるものと考えられる。

論文審査の結果の要旨

第 1 章では、トライボロジー分野における分子吸着膜に関するこれまでの研究についてまとめ、分子吸着膜の潤滑メカニズム解明のために和周波発生 (SFG) 分光分析が有効であること示した。トライボロジーに関連する SFG 分析手法の適用例を紹介し、しゅう動中におけるその場観察の重要性と可能性を示した。

第 2 章では、SFG 分光分析の理論および分子配向解析方法を踏まえ、その場観察への SFG 分光分析の適用を提案した。準備実験として、イオン液体を対象とする SFG 測定を行い、界面の分子配向と摩擦特性に相関があることを明らか

とし、その場観察における分子配向解析の重要性を示した。一連の予備的実験をもとに、摩擦界面における分子配向解析を目的とした SFG その場観察装置の課題と解決策について論じるとともに、開発したその場観察システムの概要について説明した。

第 3 章では、ステアリン酸を添加した n-ドデカンについて、無水石英プリズム表面との摩擦界面における分子挙動をその場観察を行った。SFG その場観察より、ステアリン酸吸着膜上の基油分子がせん断場においてしゅう動方向に配列構造を形成することを初めて明らかにした。この分子吸着膜の基油流れを促す作用は、流体抵抗を下げる効果により摩擦低減に寄与すると考えられる。以上より、油性剤分子吸着膜の潤滑メカニズムに関する新たな知見とともに、SFG 分光分析による摩擦界面その場観察の有用性を示した。

第 4 章では、SUJ2 鋼球とサファイヤディスク平面との接触におけるステアリン酸吸着膜の摩擦界面その場観察を行った。高面圧条件では、第 3 章の低面圧条件で観測された分子吸着膜上の基油分子のせん断方向への配列は観測されなかった。ステアリン酸分子吸着膜は圧力場においてはゴーシュ欠陥の多い乱れた界面を形成するが、せん断場においてはそれらがオールドランスに近い配列構造をとることを明らかとした。このステアリン酸分子吸着膜の配列は、分子吸着膜同士の接触面にせん断応力が加わり、分子吸着膜がしゅう動方向へラビングされるために生じるものと考察した。

第 5 章では、低面圧条件および高面圧条件における SFG その場観察の結果から分子吸着膜の潤滑メカニズムについて考察し、潤滑メカニズムをより詳細かつ正確に理解するための課題について議論した。

第 6 章では、第 1 章から第 5 章までの各章についての概要を記述し、本論文の総括とした。