

「放射光を用いた精密物質科学的実験手法による低摩擦材料開発の基礎研究」

兵庫県立大学 大学院理学研究科

小林 寿夫

1 研究の背景と目的

【背景】

摩擦現象は、典型的物性科学分野から、自然科学・生命科学まで様々な分野で観測されている。工業技術上も極めて重要な現象であるため、多くの工学的研究が行われている。そこでは、18世紀に確立したクーロン・アモントンの法則に立脚し、潤滑剤などを用いた実用条件下での動摩擦係数の低減を目指している。しかし、この法（経験）則については、現在も議論が行われ続けている。すなわち、多様で複雑な様相を示す摩擦の基本的機構の統一的な解明は現代においても成されていない。特に、動摩擦現象は、そのダイナミクスの理解に、極限環境下での非平衡・非線形性を含んだ新たな概念の構築が必要である。摩擦研究が基礎物性物理学でも重要な基本的概念を提供すると期待される。

一方、社会的に要請されている脱炭素・持続可能社会の実現のためには、省エネルギー・エネルギー変換効率の向上が重要な課題である。モビリティ環境では発生エネルギーの数十%以上がエネルギー変換と伝達（摩擦）により失われている。すなわち、モビリティ環境におけるエネルギー変換・伝達効率向上のためには、磁石材料の最適化などによるエネルギー変換効率の向上とエネルギー伝達材料における動摩擦効果の影響の低減を行う必要がある。そこでは、既存の材料特性を超えた磁石材料や超低摩擦材料の開発とその開発手法の高度・高速化が必要不可欠である。最近の材料開発ではデータ科学を基礎として、必要な機能性から合成すべき材料を決める従来とは逆方向の手法により、材料開発の高度・高速化が行われ始めている。この新たな材料開発のために必要な条件は、重要な機能性と本質的な材料物性との強い相関という特徴付けが行われていることである。磁石材料では、その性能を特徴づける物理量（転移温度、自発磁化や磁気異方性など）がいかに制御されるかの基本モデルは既に構築されている。そのため、既にデータ科学的手法が材料開発の現場で有効に使われている。しかし、摩擦現象が関係するエネルギー伝達材料では、動摩擦現象と本質的に関連する物理量はその現象の複雑性のために分かっていない。

【目的】

本研究課題では、エネルギー伝達材料の開発現場において高度・高速化を行う基礎を、放射光などを用いた精密科学的実験手法により構築することを目的とした。具体的には最初に、単純化した材料と環境下を対象とした動摩擦現象と、動摩擦と類似した駆動力下の秩序状態の運動現象を示す固体の系を、精密物質科学的手法で測定を行った。その結果とこれまで測定されている巨視的な物理量との関係から、これらの系を特徴付ける要因（微視的な物理量）を明らかにすることを検討した。次に、動摩擦現象に強く関連する物理量の特徴付けを行うことにより、超低摩擦材料の開発の現場にデータ科学的手法を用いる基盤を構築する。

2 研究方法・研究内容

【研究方法】

最初に、動摩擦現象の基礎を明らかにするための理想（単純：低荷重・低速）化された条件下で、動摩擦現象を観測するための装置を開発する。達成された低荷重・低速条件下での摩擦現象（実行荷重と摩擦力の関係）を考察した。本研究では、特に

プラスチック材料に注目して、低荷重・低速条件下プラスチック材料の動摩擦現象の温度依存性と巨視的物理量との関係を考察した。

それらの結果とプラスチック（高分子材料）の特徴（高次構造）を基にして、放射光などを用いた精密物質科学的実験手法により、プラスチック材料系の動摩擦現象を特徴付ける要因（微視的な物理量）を実験結果か詳細に検討した。

【研究内容】

2021度には、低荷重・低速リングオンプレート式摩擦試験装置を設計・製作した。図1(a)に製作したリングオンプレート式の低荷重・低速摩擦試験装置を示す。この装置では、リングの最低回転速度は1.2 mm/s、試験体への荷重は5 N以下の測定条件を達成した。さらに、図1(b)に示すバックグラウンドからも分かるように1 mNm以下のトルク（摩擦力）を観測可能な条件を達成した。この摩擦試験装置で達成された測定条件は、通常の摩擦試験

装置の2桁小さな値の（摩耗を無視できる）領域である。すなわち、摩擦現象中の摩耗を無視して考察する実験条件を達成した。さらに、2022度に図1(c)に示すように摩擦試験試料をヒーターにより加熱することで、温度可変摩擦試験装置へと改良した。低荷重・低速では、摩擦力の仕事による発熱が小さい（無視できる）ために、室温での摩擦実験では測定対象試料の温度上昇は起こらない。そのためセラミックヒーターを用いた試料（試験片）の昇温により、摩擦力（動摩擦係数）の温度依存性を測定可能な装置へと発展した。本装置での到達可能最高温度は約130°Cである。有機系摺動材料として用いられているエンジニアリングプラスチック材料（POM）をモデルとして、低荷重(1.5N以下)領域での摩擦特性の温度依存測定を行った。2022-3年度では、巨視的な実験結果を基に、放射光などを用いた精密物質科学的実験手法により、動摩擦現象と微視的な物理量との相関を明らかにするための実験を行った。

3 研究成果

作製した理想（低荷重・低速）的条件下摩擦試験装置を用いた測定結果から、室温での低荷重領域においては、実行荷重と摩擦力との間に1次関数の関係が存在し、その切片も十分小さいことが分った。さらに、POMの融点に近づく100°Cを超える高温でもこの疑似比例関係は変化しないことが分かった。すなわち、線形応答的取り扱いで動摩擦係数を求めることができる。そのため、傾きを動摩擦係数としてその温度変化を求め、その結果を、図2(a)に示す。図から分かるようにPOMの動摩

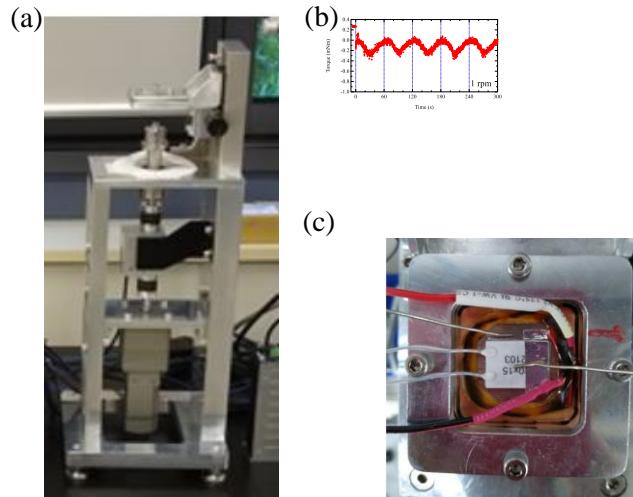


図1. (a) リングオンプレート式摩擦試験装置 (b) バックグラウンド (c) 摩擦試験試料ホルダー近傍の拡大図：セラミックヒーターにより温度可変とする装置とした。中央と側面にヒーターを設置することで、試験片を均一に昇温することが可能と成っている。

擦係数は、特異な温度依存性を示すことが明らかとなった。特に、70°C近傍の温度領域では室温の半分以下の小さな動摩擦係数を示す。この結果は、エンジニアリングプラスチック材料の動摩擦現象が複雑であることを示している。

ここで、POM の動的粘弾性測定の結果を図 2(b) に示す。図 2(b) から分かるように、POM の動摩擦係数の特異な温度依存性は、複素粘弾性率の実数成分と虚数成分比($\tan(\delta)$)の温度依存性と相關があることを示している。特に、70°C近傍温度領域では、 $\tan(\delta)$ に強い周波数依存性が有ることが分った。これらの結果は、エンジニアリングプラスチック材料の特徴である階層（高次）構造それぞれの温度・応力変化を実験的に求めることが超低摩擦現象に関する物理量の特徴付けを行う上で重要であることを示唆している。

そこで、2 つの特徴的な空間スケールが測定可能な手法である硬 X 線光電子分光 (HXPES) 法と X 線小角散乱 (SAX) 法による研究を行った。

硬 X 線光電子分光 (HXPES) 実験は、放射光研究センターに設置された装置により、プラスチック材料の主要元素である炭素イオン電子状態の温度変化を測定した。図 3 にエンジニアリングプラスチック (POM) 材料の炭素 1s による光電子スペクトルを示す。結合エネルギーが 288.5 eV のピークが O-C-O 結合状態にある炭素に対応し、285.5 eV のピークが O-C-C 結合中の炭素に対応している。30°C と 145°C のスペクトルの違いから分かるように O-C-O 結合状態にある炭素によるピーク幅が昇温により減少して

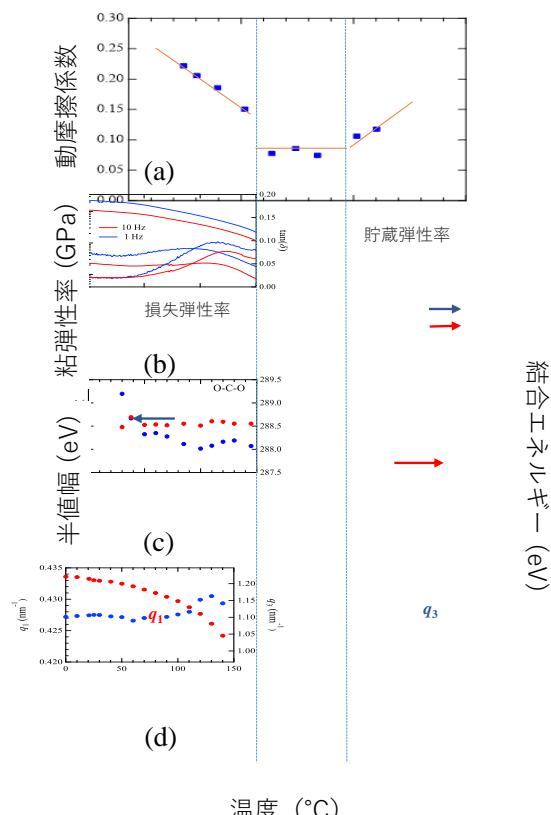


図 2. エンジニアリングプラスチック材料 (POM) の (a) 動摩擦係数、(b) 粘弾性率、(c) HAXPE による O-C-O 結合状態と (d) SAX による構造周期の温度依存性

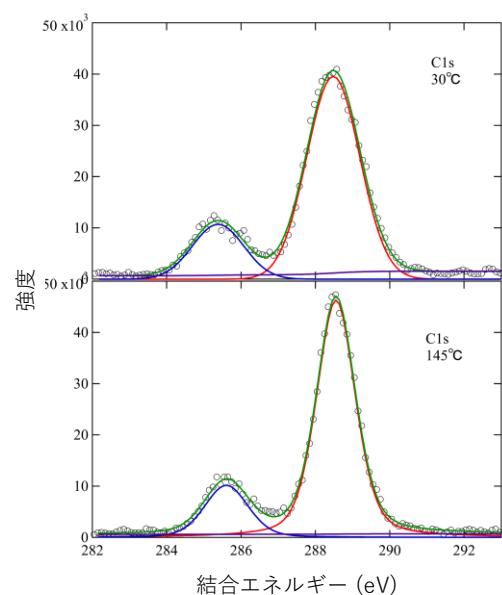


図 3. エンジニアリングプラスチック (POM) の炭素の光電子スペクトル

いる。O-C-O 結合状態にある炭素の電子状態の温度変化を明らかにするために、結合エネルギーとそのピーク幅を温度の関数として図 2(c)に示した。図から分かるように、ピーク幅は、約 60°Cまで減少し、約 90°C以上の高温では一定値となる。この特徴的な温度は、POM の炭素周辺の結合状態変化に対応している。結合エネルギーが変化せず、単純にはピーク幅が減少する結果は、O-C-O 結合のばらつきの減少を示していると考えられる。今後電子状態計算など用いて詳細に検討を行う必要がある。

エンジニアリングプラスチック材料特有の階層（高次）構造であるラメラの（十数 nm 周期）周期性を観測する試みとして、SPring-8 BL19B2 において X 線小角散乱（SAX）測定を行った。室温での測定結果を図 4 に示す。POM 中でのラメラ構造のメイン周期と考えられる $q=0.48 \text{ nm}^{-1}$ にピークが観測された。さらに $q_3=1.19 \text{ nm}^{-1}$ のピーク構造から 5nm 程度の周期の高次構造が存在することが明らかとなった。この SAX 法が明らかにしたラメラ構造に関係した周期の温度依存性の測定も行った。その結果を図 2(d)として示した。図から分かるように、

q_1 、 q_3 に対応した周期は動摩擦係数の特徴的な温度変化に対応した変化を示さず、滑らかな温度依存性を示すことが分った。

本研究で得られた結果は、エンジニアリングプラスチック材料の摩擦現象にその構造的特徴、すなわち高次構造中の特徴的な空間スケールが強く関与していることを示している。しかし、硬 X 線光電子分光（HXPES）法と X 線小角散乱（SAX）法などの精密科学的手法による研究は常圧力下の結果である。今後詳細な比較を行うためには、応力下での精密科学的実験測定の環境を行うなどの発展が必要である。

4 生活や産業への貢献および波及効果

本研究で得られた結果は、エネルギー伝達材料、特にエンジニアリングプラスチックのような複雑な材料においても、データ科学的手法を用いてその開発の高度・高速化を行うことが可能であることを示している。すなわち、脱炭素・持続可能社会の実現のための材料開発の基礎となりうる結果である。さらに、本研究の特徴である放射光などを用いた精密科学的実験手法により、物理量の特徴付けを階層（高次）構造材料に適用していく手法は、摩擦関連材料の開発現場だけでなく、エンジニアリングプラスチックなどの材料開発の現場一般に適用可能な手法であるため、その波及効果も期待できる。

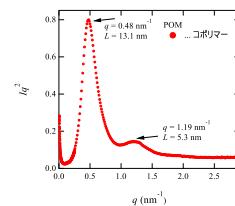


図 4. エンジニアリングプラスチック材料（POM）の X 線小角散乱パターン