

# 全原子の分子動力学シミュレーションによる高分子の摩擦性評価

Evaluation of friction performance of polymers by All-atom molecular dynamics simulation

兵庫県大・情報 旭化成（正）\*金城 知広 旭化成（非）山本 拳

旭化成（非）三枝 俊亮 兵庫県大・情報（正）鷲津 仁志

Tomohiro Kinjo\*, Aguru Yamamoto\*\*, Shunsuke Mieda\*\*, Hitoshi Washizu\*

\*University of Hyogo, \*\*Asahi Kasei Corporation

## 1. はじめに

高分子材料は産業界で広く利用されているが、Polytetrafluoroethylene(PTFE)など一部高分子材料を除き、その摺動メカニズムには未解明な部分が多い。最近では摺動メカニズム解明のため計算科学技術の利用も進んでいる<sup>1)2)3)</sup>が原子を明示的に扱わないマクロスケールの検討が大半を占めており、分子の熱揺らぎまで考慮したミクロスケールの検討は大きく数を減らす。しかし高分子の接触面では分子の熱揺らぎや塑性変形が生じ、摺動時の接触面積を増加させる特徴がある。また高分子は熱揺らぎの他にも重合度や部分修飾、低分子潤滑剤の添加など分子レベルの変化により摺動特性を大きく変える。そこで本研究では分子レベルで高分子の摺動メカニズムを解明するため、全原子分子動力学(MD)シミュレーションを用いて摩擦性の評価を試みた。本検討では高分子-金属間の摺動試験を模擬するシミュレーションモデルを構築し、垂直抗力と摩擦力の関係から静止摩擦係数、動摩擦係数を求め、高分子の摩擦性を評価した。

## 2. モデル、計算方法

高分子材料は Fig.1 に示す PTFE、Polyacetal(POM)、Polyvinyl chloride(PVC)、Polymethyl methacrylate(PMMA) の4種を計算対象とし、金属は鋼を模擬して Fe 原子でモデル化した。シミュレーションでは重合度 40 の高分子鎖をパッキングしたアモルファス層(40-50 Å)の上部に Fe 固相を配置した(Fig. 2)。アモルファス層の下部 10Å は固定し、Fe 固相は剛体として取り扱い、平坦構造と凸構造を含む 2 種で検討した。MD シミュレーションには LAMMPS(Large-Scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator)を使用し、力場には pcff 力場を用いた。計算は①Figure 2 の状態から Z 軸負の方向に荷重をかけ、温度制御下で 1 ns の間、平衡化し、②荷重をかけたまま Fe 固相を X 軸正方向に一定速度で 20 ns 間摺動させる 2 段階で実施した。①は 300 K の温度制御下で 100 Mpa の荷重をかけ、②は摩擦熱の影響を加味するため、アモルファス層下部から 10-15Å の領域は温度制御(300 K)したまま、残りの領域(>15Å アモルファス層)はミクロカノニカルアンサンブル(NVE)とした。

	Structure
POM	
PTFE	
PVC	
PMMA	

Fig. 1 Molecular structure of polymers

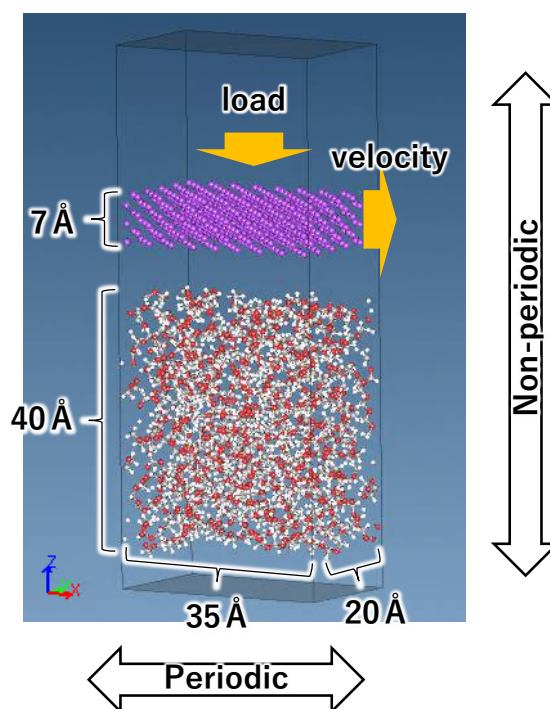


Fig. 2 Simulation model for friction test

### 3. 結果と考察

シミュレーションモデルの妥当性評価のため、4 種のポリマーに対する動摩擦係数を求めた。動摩擦係数は総計算時間の後半 4 ns の垂直抗力と摩擦力の平均値から算出した。Figure 3 に Fe 固相を平坦構造として求めた各ポリマーの動摩擦係数を示す。各ポリマーの摩擦係数は実験から得られたマクロな摩擦係数<sup>3)4)</sup>を定性的に再現した。このことから高分子の摺動現象を模擬する妥当なシミュレーションモデルが構築できたものと考えられる。

Fe 固相の表面構造を凸構造に変えて、表面構造が高分子の摩擦現象に与える影響を調べた。POM を対象にシミュレーションし、摩擦力を解析した結果を Fig. 4 に示す。表面に凸構造を持つ場合、静止摩擦力和動摩擦力が増大し、摩擦係数の増大が認められた。PTFE、PVC においても同様の結果が得られた。これは凸構造の掘り起こしによる抵抗、材料の弾性変位、塑性変位による抵抗に起因するものと推測する。一方で PMMA に関しては静止摩擦力和みられるピークは観測されなかった。この結果は PMMA の静止摩擦力和動摩擦力にほとんど差がないという報告<sup>3)</sup>と一致する。

高分子の摩擦の特徴として摺動後に高分子が金属へ移着することが知られており<sup>5)</sup>、本シミュレーションモデルにおいても Fe 固相への移着の観察を試みた。摺動開始から 8 ns 経過後、Fe 固相を Fig. 2 の Z 軸正方向に移動させた結果を Fig. 5 に示す。高分子はその種類に依らず、金属へ移着した。また PMMA は Fe 固相への高分子の移着量が他より多かった。これは PMMA 以外の高分子が延性的なのに対して PMMA は脆性的であることに起因するものと考えられる。また移着は摺動前後、すなわち単に Z 軸負方向に荷重をかけた後に引き上げた場合と X 軸に一定距離摺動させて引き上げた場合とで移着する歪み(2 層に分断されるまでの歪み)が異なった。この歪みの差異については今後高分子の絡み合いや配向といった因子を指標に詳細解析を進める予定である。

### 4. おわりに

高分子と金属の摺動現象を模擬する全原子 MD シミュレーションモデルを構築した。構築したモデルを用いて、高分子の摩擦係数、金属の表面形状が摩擦力に与える影響、金属への移着を調べた。その結果、摩擦係数を定性的に予測できた。さらに金属の凸構造は掘り起こし、弾塑性変位による抵抗で静止摩擦力を増大させることが分かった。また高分子の金属への移着が確認された。今後は、初期構造依存性に関する検討が不十分であるため本シミュレーション解析の再現性を確認していくと共に、分子量や摺動時の温度変化に対する応答について詳細な解析を進める予定である。

### 文献

- 1) 森田: 摩擦に関わる高分子表面・界面の粗視化シミュレーション, トライボロジスト, 58, 9, 634-641 (2013)
- 2) 端山, 樋口, 鷲津: 粗視化分子動力学シミュレーションによる結晶性高分子の摩擦の解析, トライボロジー会議 2022 春 東京, 224
- 3) 旭化成アミダス株式会社, 「プラスチック」編集部 共編: プラスチック・データブック, 工業調査会 (1999)
- 4) 山口, 関口: プラスチックにおける動摩擦係数, 潤滑, 11, 485 (1966)
- 5) Bahadur S.: The development of transfer layers and their role in polymer tribology, *Wear*, 245, 92-99 (2000)

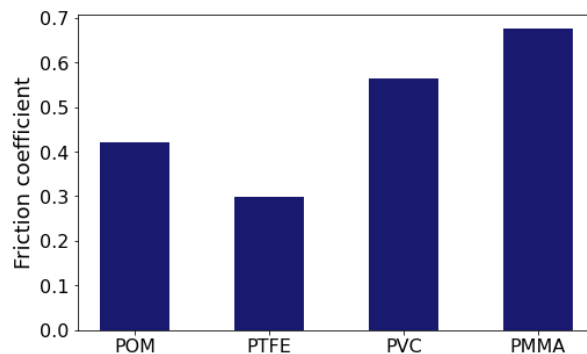


Fig. 3 Comparison of friction force in each polymer

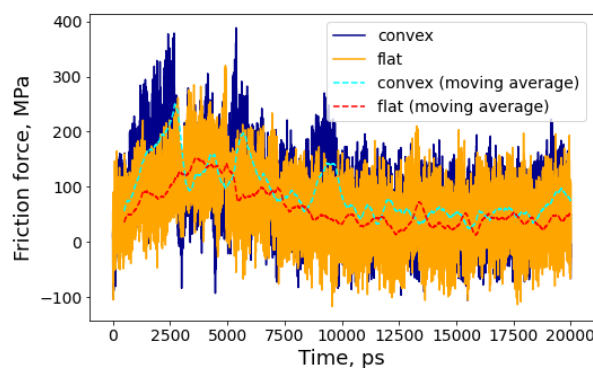


Fig. 4 Comparison of friction force of POM under conditions using flat plate and convex plate

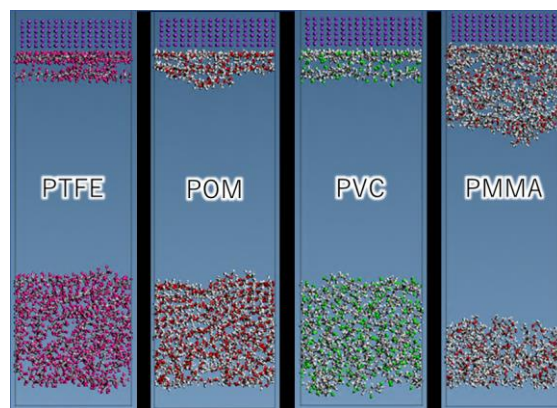


Fig. 5 Snapshots of transferring to Fe layer after friction test