

## 分子動力学法による硬質材料含有ポリマー膜の摩擦挙動解析

Friction behavior of polymer films containing hard materials : A molecular-dynamics simulation

兵庫大・情報（院）\*伊藤 和輝 兵庫大・情報（院）端山 昌樹

九大（非）樋口 祐次 兵庫大・情報（正）鷲津 仁志

Kazuki Ito\*, Masaki Hayama\*, Yuji Higuchi\*\*, Hitoshi Washizu

\*University of Hyogo, \*\*Kyushu University

### 1. はじめに

現在、機械製品に使われている摺動部分の大多数は金属材料である。この代替として高分子材料を用いることで製品の軽量化・高機能化が求められている。しかし、高分子材料は金属材料と比較して機械特性や摩擦特性が劣っていることから、これらの特性向上が必要となる。そこで摩擦特性や機械特性を向上させるため、2種類以上の材料を組み合わせることにより高分子単体にはない機能を発揮する複合高分子材料の研究が行われている<sup>1)</sup>。

本研究では、母材として、一般的な結晶性高分子であるポリエチレン(-CH<sub>2</sub>-)に着目した。ポリエチレンは他の高分子材料と比較して低コストで大量生産が可能であり、日用品から工業用品まで幅広く用いられている。また硬質材料としてカーボンナノチューブ(CNT)を用いた。カーボンナノチューブは密度がアルミニウムの半分程度にも関わらず、強度が鋼の約20倍と「軽くて強い」特徴を持つ。そのため、既存の工業材料とカーボンナノチューブを組み合わせたより優れた機能を備える新しい素材の開発が進められている<sup>2)</sup>。

本研究ではポリエチレンへのカーボンナノチューブの添加による摩擦特性の影響の解析を行うため粗視化分子動力学モデルを作成し、解析を粗視化分子動力学シミュレーションによって行った。

### 2. シミュレーション手法

本研究では、粒子モデルはポリエチレンのモノマーを粗視化粒子とみなした United Atom (UA) モデルによる粗視化分子動力学を行う。粗視化粒子間の相互作用は以下の Lennard-Jones (LJ) 相互作用で表す。

$$U_{LJ}(r) = \begin{cases} 4\epsilon \left\{ \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^6 \right\} & r \leq r_c \\ 0 & r \geq r_c \end{cases} \quad (1)$$

ここで、 $r$  は高分子セグメント間距離、 $\epsilon$  は相互作用の強さのパラメータ、 $\sigma$  は相互作用の単位の長さ、 $r_c$  はカットオフ距離を表す。

粗視化粒子間の結合は以下の式で表す。

$$E_{bond}(d) = \frac{1}{2} k_d (d - d_0)^2 \quad (2)$$

粒子間の結合角相互作用は以下の式で表す。

$$E_{angle}(\theta) = \frac{1}{2} k_\theta (\theta - \theta_0)^2 \quad (3)$$

二面角の相互作用は以下の式で表す。

$$E_{dihedral}(\phi) = \frac{1}{2} k_\phi [1 - \cos 3\phi] \quad (4)$$

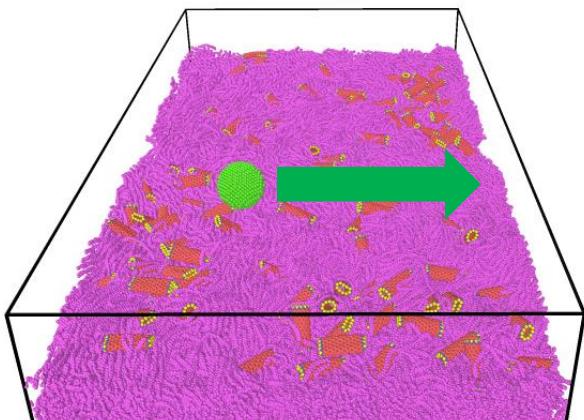


Fig.1 Ball sliding test with CNT-doped polymer  
(A green arrow is sliding direction)

各々の係数について高分子および金属球については、先行研究と同様にする<sup>3)</sup>。CNTの係数について、先行研究と異なる値のものは、 $d_0 = 0.142$  nm,  $\theta_0 = 120$  rad,  $k_\phi = 0.05$  kcal/mol,  $\epsilon_{CC} = 2.397$  kcal/mol,  $\sigma = 3.412$  Åを取り扱う<sup>4,5)</sup>。

$d_0$  は平衡結合長、 $d$  は実結合長、 $\theta_0$  は平衡結合角、 $\theta$  は隣接する3つの原子間実結合角、 $\phi$  は4つの連続原子の二面角である。

分子動力学シミュレーションにはオープンソースのプログラムである LAMMPS("Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator")<sup>6)</sup>を用いた。

高分子内に CNT を埋め込む際に発生する陥入シミュレーションについて次に示す。高分子モデルについて、初期構造は粗視化ラメラモデルを使用し、z 軸方向にアモルファス層と結晶層が連続するように結晶性高分子を配置する。CNT 添加高分子モデルについて、まず単体で CNT モデルを作成した上で、それを 100 個ランダムで高分子モデル上に配置し、高分子の垂直方向の下部分の一部を固定する。高分子と CNT の相互作用は LJ 相互作用を使用し、CNT を垂直方向に応力を加えながら高分子にめり込むよう移动させる。今回解析をするにあたって、CNT が摩擦界面に露出しているものと、高分子内に埋没しているものの 2 種類の CNT 高分子モデルを作成した。前者を Type1 として Fig.2 に、後者を Type2 として Fig.3 に示す。高分子と金属球の摩擦シミュレーションについて、金属球は CNT モデルと同様に、作成した各種高分子モデルの上に配置し固定する。その後、高分子と金属球の相互作用は LJ 相互作用を使用し、球を垂直方向に応力を加えながら平行方向に移動させ、高分子と金属球との間の摺動を行う。シミュレーションの進行中、金属球の x 軸方向の応力を算出する。シミュレーション中のスナップショットを Fig.1 に示す。

### 3. 結果と考察

本研究のシミュレーションにおいて、CNT を添加していない高分子モデルと CNT が高分子内に埋没しているモデル(Type2)を使用した。また金属球には x 軸方向に 250m/s の速さ、y 軸方向に 0.1 kcal/mol·Å の応力を働かせた。

まず無添加高分子モデルの試験について Fig.4 に 1ps ~ 30ps の金属球の x 方向の応力を示す。Fig.4 を確認すると、試験中の金属球には、負の方向に 7~9 kcal/mol·Å の応力が断続的にかかっていることが見て取れる。次に CNT 添加高分子モデルの試験について同じく Fig.5 に 1ps ~ 30ps の金属球の x 方向の応力を示す。Fig.5 を確認すると Fig.4 と同じく金属球に対して、7~9 kcal/mol·Å の応力がかかっていることが分かる。しかし応力の増減周期が Fig.4 では約 5~10 ps であるのに対して、Fig.5 では 2~5 ps と減少していることが認識できる。つまり CNT 添加樹脂モデルの試験において、金属球が高分子内の CNT に干渉し、応力の増減周期に影響を与えたことが考えられる。

### 4. まとめ

高分子内部に CNT を含有させることで、金属球にかかる応力の増減周期に影響を与えることが確認できた。

100ns 以上の長時間摩擦試験の実行や、CNT が摩擦界面に露出したモデル(Type1)での摩擦試験などを行い、より詳細な情報を当日は示す。

### 文献

- 1) 前川: 先端高分子系複合材料の技術動向, 材料, 38, 435 (1989), 1365-1372.
- 2) 大竹・榎本・安原: カーボンナノチューブ複合材料, 日本複合材料学会誌, 28, 6 (2002), 220-227.
- 3) 端山・樋口・鷺津, トライボロジー会議 2022 秋 福井 (2022)
- 4) L. A. Girifalco, Miroslav Hodak, and Roland S. Lee: Carbon nanotubes, buckyballs, ropes, and a universal graphitic potential: Phys. Rev. B, 62, (2000) 13104.
- 5) Y.Jin and F.G.Yuan: Simulation of elastic properties of single-walled carbon nanotubes: Composites Science and Technology 63 (2003) 1507
- 6) S. Plimpton: Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics, J. Comp. Phys., 117, (1995) 1.

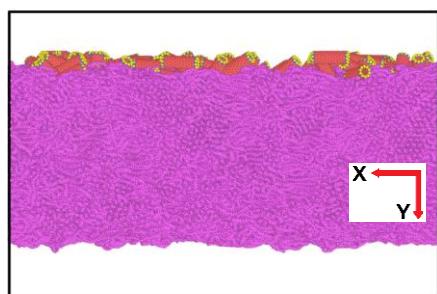


Fig.2 CNT-doped polymer (Type1)



Fig.3 CNT-doped polymer (Type2)

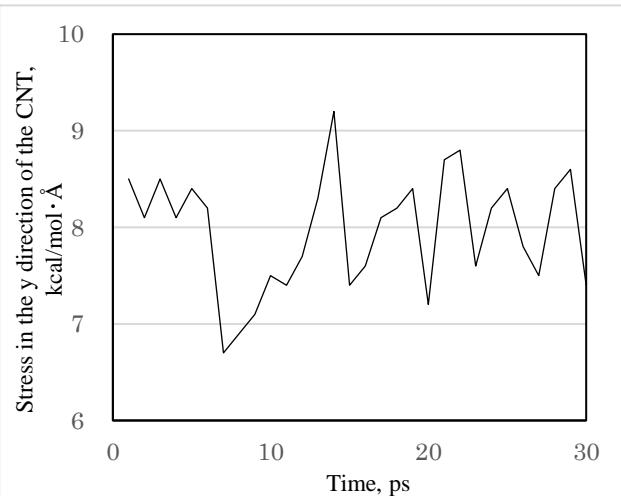


Fig.4 Stress in the x direction of the sphere at additive-free

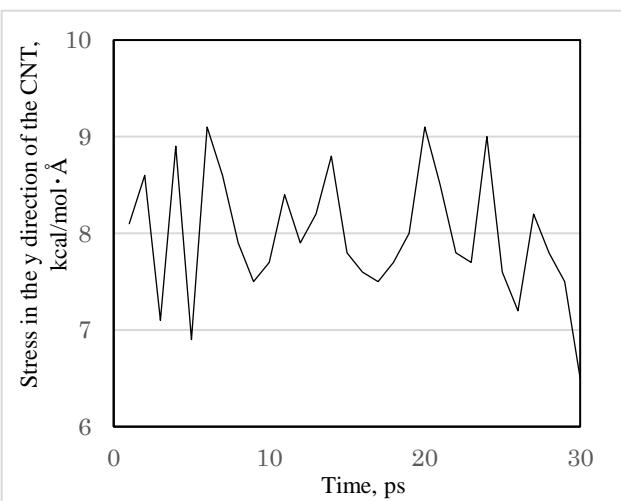


Fig.5 Stress in the y direction of the sphere at add-CNT