

濃厚ポリマーブラシの摩耗機構：希薄層の重要性

Wear mechanism of concentrated polymer brushes: Importance of their dilute layer

横国大(学)※竹内 徹, (学)鍵渡 創生, (正)大久保 光, (正)中野 健, (正)辻井 敬亘

Toru Takeuchi¹, Daiki Kagiwata¹, Hikaru Okubo¹, Ken Nakano¹, Yoshinobu Tsujii²

¹Yokohama National University, ²Institute for Chemical Research, Kyoto University

1. 緒言

環境問題を背景として、未だ少なくない切り代である機械摺動部の摩擦損失低減が求められている。近年、その実現に向けた超低摩擦材料として、生体に範を得た種々のソフトマター材料に注目が集まっている。とりわけ、所望の高分子鎖が高密度に基板に固定化された高分子薄膜である濃厚ポリマーブラシ(concentrated polymer brush: CPB)は、マクロな接触条件において摩擦係数 0.01 以下の超低摩擦特性を発現する[1]。しかし、CPB は、従来の機械材料と比べて耐久性に乏しく、その高耐久化に向けた材料設計指針ならびに機械設計指針の獲得が求められている。先行研究では、光干渉分光法と動力学計測を可能とする接触摩擦試験機(光干渉分光-動力学計測装置)を用い、接触の過渡過程にある二面の狭小隙間を対象として、その界面厚みと粘弾性応答を同時に計測することで、CPB の界面構造を調査した。その結果、CPB は「希薄層」、「中間層」、「濃厚層」の粘弾性応答の異なる三つの層から構成され、各層が摩擦界面において異なる摩耗挙動を示すことが確認された[1]。加えて、CPB のような粘弾性体のすべり摩擦特性が、対向面の浮上現象に強く影響されることが理論的に示されており[2]、その実験的な示唆も得ている。これらの研究結果から、「摩耗」、「層構造」、「浮上現象」の関係性の理解は CPB の高耐久化に向けた設計指針の獲得に繋がるものと予想される。そこで本研究では、光干渉分光-動力学計測装置を用いて、CPB の摩耗現象に及ぼす層構造と対向面の浮上現象の影響を把握することを目的とした。

2. 方法

光干渉分光-動力学計測装置の概要図を図 1 に示す[1]。本装置は光学計測ユニットと力学計測ユニットで構成されている。光学計測ユニットでは、光干渉スペクトルから 2 次元のギャッププロファイルを取得し、基板と鋼球圧子間の膜厚を計測した。一方、力学計測ユニットでは、鋼球圧子と基板の接触により発生した力と基板に与えた z 軸方向への微小な振動に対する法線力の位相差、振幅をロックインアンプにより取得し、界面層の粘弾性応答として計測した。PMMA-CPB を付与した基板は PMMA-CPB の良溶媒であるイオン液体(MEMP-TFSI)に浸漬させ、完全膨潤状態にて試験に供した。接触試験は、基板に z 軸方向振幅 50 nm の微小な振動を与えながら、一定駆動速度で所望の法線力まで負荷し、30 秒間待機させた後、除荷した。摺動試験は、摩耗機構に及ぼす鋼球の貫入量の影響を検討するため、種々の荷重条件(0.1, 1, 5, 10N)で実施した。各荷重条件において、ストローク 100 μm 、摺動速度 100 $\mu\text{m/s}$ で 1 分間の往復摺動試験を実施した。上述した両試験を交互に実施することで、CPB の層構造と各層の摩耗挙動を計測した。なお、両試験では、法線力、摩擦力、光干渉スペクトル、位相差を同時に取得した。

3. 結果および考察

図 2 は、摺動に伴う CPB の各層の膜厚の変化と「希薄層」及び「濃厚層」の摩耗挙動を示す。なお、各層の定義は、先行研究[1]と同様に、CPB が力学応答を開始する境界を h_f 、位相差が 90 deg から減少し始める粘弾性応答が開始する境界を h_{p1} 、0 deg に到達した完全な弾性応答を開始する境界を h_{p2} とした。さらに、 h_{p1} と h_f の層間を「希薄層」及び h_{p2} 以下を「濃厚層」として定義した。図 2 左に示すように、負荷荷重が 0.1N の場合、摺動に伴う膜厚の変化は生じなかった。一方、負荷荷重が 1 N 以上の場合、各境界線の膜厚が減少しており、摺動に伴って CPB の摩耗が進展した。また、図 2 右に示すように、各境界線の変動が見られた種々の荷重条件において、摺動に伴い濃厚層の膜厚は減少、希薄層の膜厚は増加し、この傾向は高荷重条件で特に顕著であった。これらの結果は、摺動に伴って CPB の層構造が徐々に変化し、希薄層の厚膜化が進行したことを示している。図 3 は、摺動中の対向面の浮上現象に伴う圧子貫入量の変化量(浮上量)を示す。浮上量は、初期貫入量が大い高荷重条件ほど、摺動に伴い増加した。このことは、摺動に伴い CPB の層構造が対向面の浮上現象を促進する状態に遷移したことを示唆している。そこで、浮上量と CPB の層構造の関係を確認した。摩擦試験 10 サイクル目における各荷重条件での希薄層膜厚と浮上量の関係を図 4 に示す。同図より、CPB の希薄層が厚いほど浮上量が増加する傾向が確認された。したがって、対向面の浮上現象には CPB の希薄層の厚みが影響を及ぼしているものと推定される。最後に、浮上現象と摩耗挙動の関係について確認した。浮上量と濃厚層の摩耗率の関係を図 5 に示す。荷重条件に依らず、濃厚層の摩耗率は浮上量の増加に伴い減少した。この結果は、対向面の浮上現象により、CPB の摩耗の進展が緩和されたことを示唆している。上述の結果より、対向面の浮上現象とそれを励起する層構造変化、すなわち、希薄層の厚膜化が CPB の高耐久化に向けた重要因子になると考えられる。

4. 結言

本研究では、CPB の摩耗現象に及ぼす層構造と対向面の浮上現象の影響を調査した結果、以下の知見を得た。

- (1) 摺動に伴い CPB の層構造が変化し、希薄層が厚膜化する。
- (2) 希薄層の厚膜化に伴い対向面の浮上量が増加する。
- (3) 対向面の浮上現象に伴い CPB の摩耗が低減する。

謝辞

本研究は CREST(JPMJCR2193)と ACT-X(JPMJAX23D4) の助成を受けて実施した。

文献

- [1] H. Okubo, D. Kagiwata, K. Nakano, Y. Tsujii: “Layered Structure and Wear Mechanism of Concentrated Polymer Brushes”, *Langmuir*, 39, 18458-18465 (2023)
- [2] K. Nakano, M. Kono: “Transient and steady sliding friction of elastomers: Impact of vertical lift”, *Frontiers in Mechanical Engineering*, 6, 38(2020)

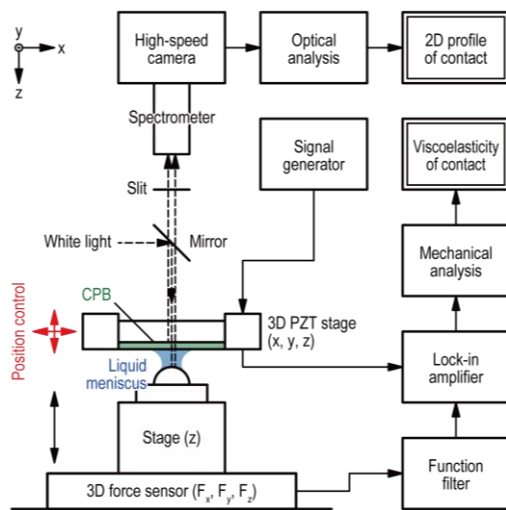


図 1 装置概要図

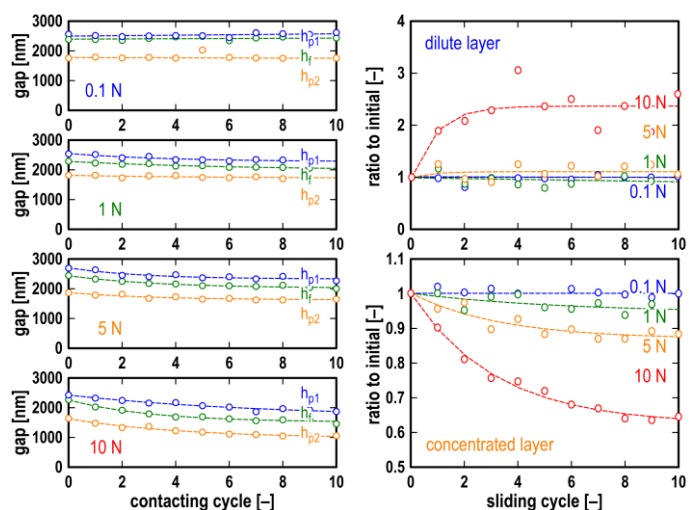


図 2 各層の摩耗挙動(左) 薄層 h_d と濃厚層 h_c の膜厚の変化率(右)

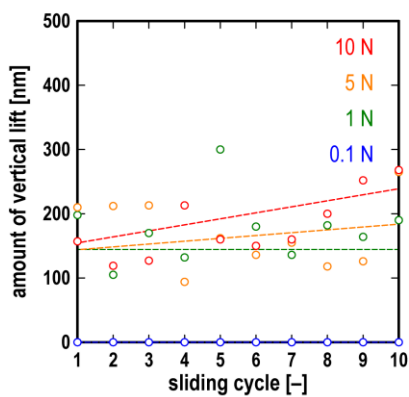


図 3 摺動に伴う浮上量の推移

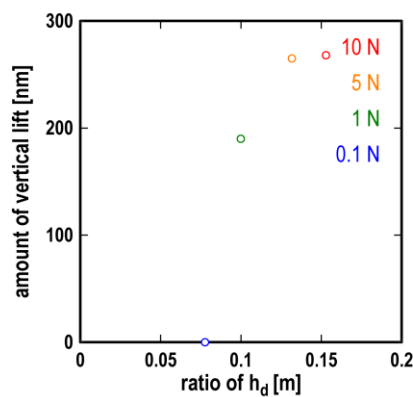


図 4 浮上量と希薄層膜厚の関係

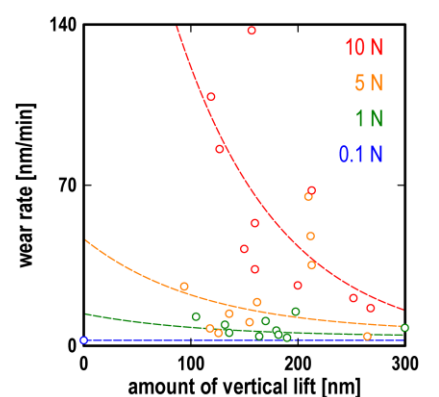


図 5 浮上量と濃厚層の摩耗率の関係