

放射光 X 線回折法によるエンジンオイル由来境界潤滑膜その場分析

In-situ analysis of boundary lubrication films derived from engine oil
by synchrotron radiation X-ray diffraction

九州大・工（学）*北畑 翔大 九州大・工（学）田中 大輝 九州大（正）八木 和行

Shodai Kitabata*, Hiroki Tanaka*, Kazuyuki Yagi*

*Kyushu University

1. はじめに

環境負荷低減に向け、輸送用内燃機関では潤滑油の低粘度化が取り組まれているが、油膜が薄くなり、表面が直接接触することによる過大摩耗や焼付きの発生頻度の増加が課題となる。境界潤滑膜は潤滑油中の添加剤が表面に吸着または反応することで形成される極めて薄い膜であり、表面保護膜の役割をはたして摩擦摩耗を低減する。境界潤滑膜は一定膜厚が維持されているわけではなく、突起接触部での直接接触により機械的かつ熱的に攪拌され、新生面が露出すると再度補修される動的平衡下で成り立っており、焼付きといった過酷な条件では境界膜の破壊の度合いが強くなる非平衡状態になる。このような境界膜の生成および破壊現象を理解するためには実験後の表面分析だけでは不十分であるため、その場環境下での分析が必要となる。摩擦面その場分析法の一つとして、放射光を利用した X 線回折(X-ray diffraction: XRD)法が鋼表面の結晶構造分析を行うために提案¹⁾され、最近では硫黄系極圧添加剤由来の境界膜のその場分析に成功した²⁾。本研究では、数多くの添加剤が添加されているエンジンオイルを対象とし、放射光その場 X 線回折法を用いて境界潤滑膜の分析を行った。

2. 実験方法

本研究ではピンオンリング型摩擦試験機³⁾を用いた。本摩擦試験はサファイアリングへ先端の曲率 12.7 mm の鋼製ピンを押し当てることで摩擦面を形成させるものである。ピン先端より 1 mm 下に熱電対を挿入した。試験機上部には摩擦面その場観察用に顕微鏡と可視光用 CCD と近赤外光用 CCD を内蔵するカメラが設置されている。放射光 X 線は試験機の側面から入射され、入射側と反対側には回折像撮影のために X 線二次元検出器が設置された。X 線回折画像は多結晶の場合には円環状になるが、各回折角度での円環を円周積分することで XRD スペクトルを算出した。潤滑油の給油条件については、潤滑面が実験中完全に浸漬された状態である十分潤滑条件および、実験前にリング表面に綿棒で塗布するのみの油不足条件の二種類の実験を行った。潤滑油には 0W-8 相当のフルフォーミュレーションエンジンオイルを使用した。実験条件については十分潤滑の実験では潤滑油温度 90℃、一定荷重 700 N、油不足条件の試験ではピン先端温度が実験直前に 70℃になるよう制御し、荷重は最初 100 N 作用させたのちに 200 N に増加させた。すべり速度については両条件ともに 2 m/s 一定とした。

3. 結果と考察

3.1 十分潤滑実験

Figure 1 に摩擦係数、温度および荷重の時間変化を示す。試験開始後 700N まで荷重を加えると、20s にかき摩擦係数が徐々に上昇したのち、安定した。その後 43s で急激に摩擦係数が上昇するとき、焼き付きが起こったため試験を終了した。Fig.2 に SUJ2 製ピンを用いた実験での、放射光回折から算出したスペクトルを示す。本実験においては充分潤滑条件を産み出すためのオイル桶及び貯蔵した潤滑油を X 線および回折光が通過するため、十分な強度での回折強度検出ができるかが課題であった。それに対して、Fig.2 にあるように、鉄のピークを十分な強度で検出することができた。具体的には、母材であるマルテンサイト由来の BCC 構造の強度が検出された。また、FCC 構造を持つオーステナイト由来の回折強度も検出された。視認性担保するため、次に、Fig.3 に検出されたフェライトとオーステナイトのピーク拡大図を示す。各回折強度の色は、色の薄いものから順に 11 s, 36 s, 44 s, 45 s, 46 s, 47 s を示す。フェライトは焼付き直前の 45 秒において、摩擦開始初期の 10 秒よりも減少している。一方で同時刻からオーステナイトのピーク強度が上昇していることが見て取れる。その後 48 秒時点では、再びフェライトが増加している一方で、オーステナイトが減少していることがわかる。これは、焼付き時に起こる表面の塑性流動の結果起こる表面温度の上昇により、フェライトが変態温度点を超えオーステナイト変化した、周囲は変態温度と比較して相対的に低温であることで冷やされ、再びフェライトに戻ったことによるものだと考えられる。しかしながら、本実

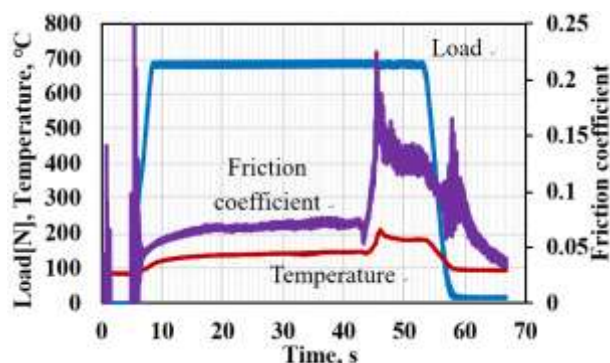


Fig.1 Friction coefficient and temperatures measured via the pasted thermocouple (SUJ2)

験においては鉄以外の回折強度を観測することができなかった。これは、ピン先端温度が十分に上がりきらなかったことで、境界潤滑膜が XRD で測定可能な厚さに成長しなかったことが原因だと考えられる。

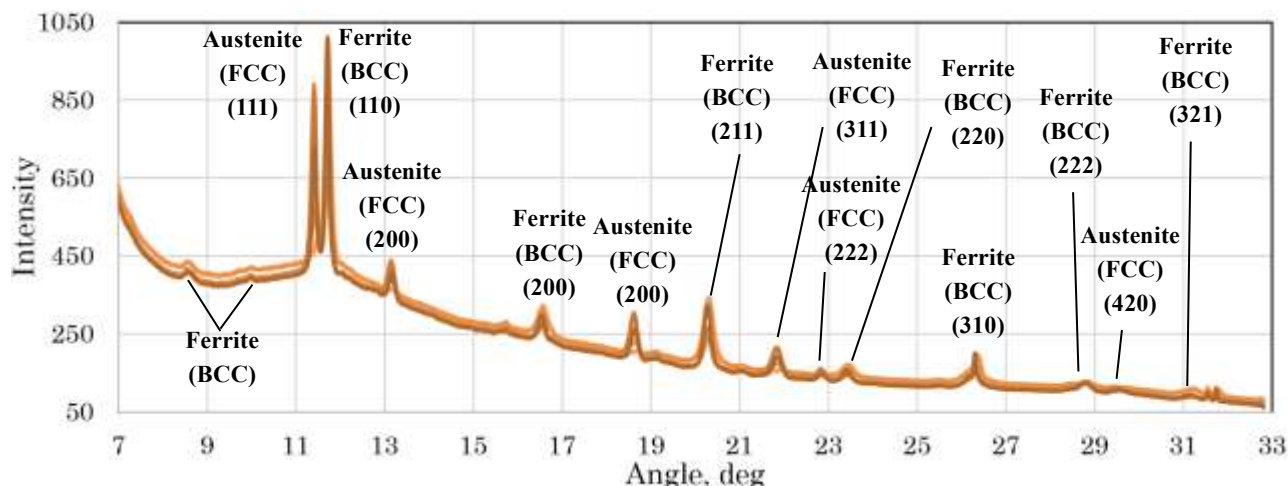


Fig.2 SUJ2 XRD spectra during the sliding test

3.2 S45C-油不足潤滑実験

Figure 4 に油不足条件での実験によって得られた回折画像から算出した XRD スペクトルを示す。本試験において、母材であるマルテンサイト由来の BCC 構造の強度が検出された。また、FCC 構造を持つオーステナイト由来の回折強度も検出された。また、少量であるがオーステナイトのピークも同様に検出された。Figure 4 の一部拡大図を Fig. 5 に示す。フェライト、オーステナイトに加えて、酸化鉄や鉄炭化物由来の回折強度も検出された。これは、十分潤滑試験と比較して境界潤滑膜が成長するに十分な温度上昇が生じたためであると考えられる。Fig. 4 および Fig. 5 の両方において、視認性の確保のため一部のみ抜粋して記載している。本実験における荷重、温度、摩擦係数の時間変化を Fig. 6 に示す。100N の荷重を加えたのち、摩擦係数が上昇し、180s 以降安定が続いたため、焼き付きを伴う変化を測定するため、378s に荷重を 200N に上昇させた。その直後摩擦係数は減少したが振幅が大きくなり、上昇を続けたのち 580s に焼き付きが起こった。潤滑油との反応で生成された物質は、焼き付きに向かう温度上昇とともに急激に増加し、最終的には焼き付きによって離脱する様子を観測することができた。

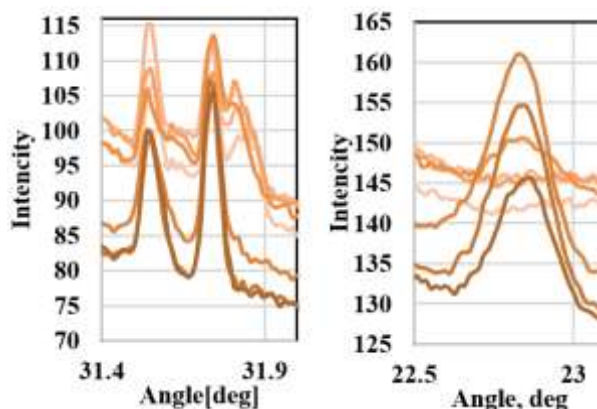


Fig.3 XRD spectra, left : Ferrite(FCC), right : Austenite(BCC)

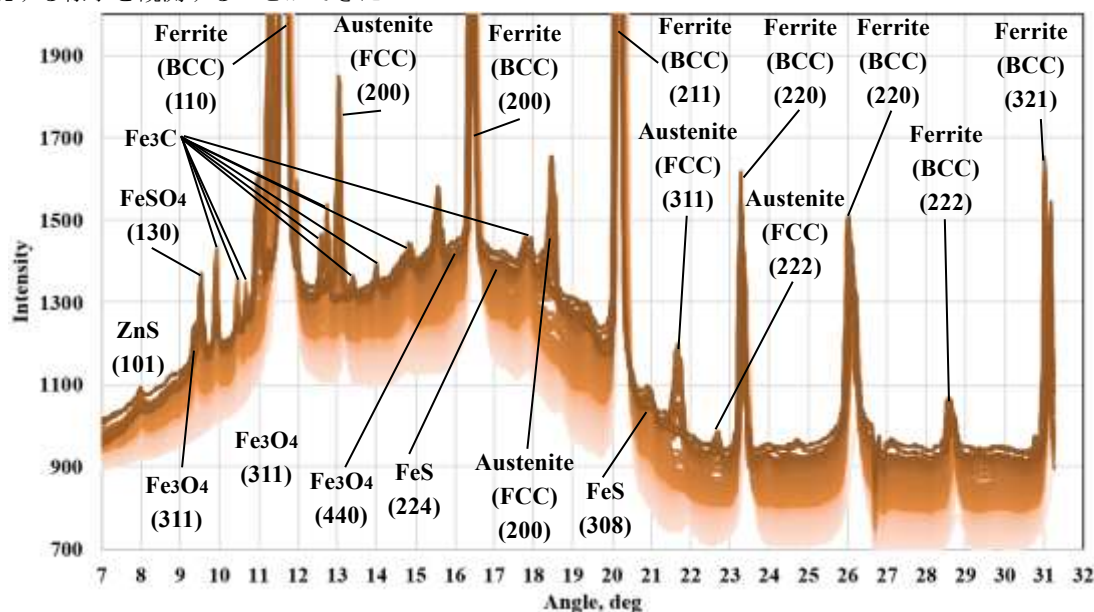


Fig.4 S45C XRD spectra during the sliding test

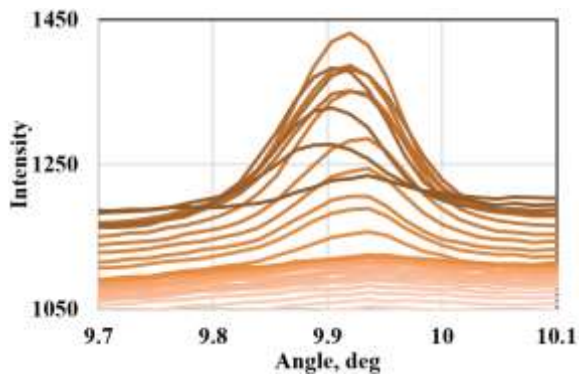


Fig.5 S45C XRD Fe₃C spectra excerpt

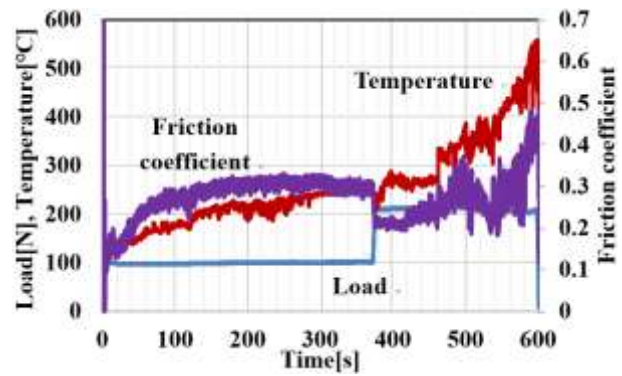


Fig.6 Friction coefficient and temperatures measured via the pasted thermocouple (S45C)

4. おわりに

本研究では、数多くの添加剤が添加されているエンジンオイルを対象とし、放射光その場 X 線回折法を用いて境界潤滑膜の分析を行った。実験条件については、十分潤滑条件と油不足条件の二種類で実験を行った。その結果、以下のことが明らかになった。

- (1) 十分潤滑条件において、入射光および回折光ともに、潤滑油貯蔵桶及び輸送内の潤滑油中を通過する条件であっても鉄の X 線回折強度を検出することに成功した。
- (2) 十分潤滑条件では酸化膜や添加剤由来の回折強度は検出されなかったが、これは潤滑油中内での X 線強度の減衰ではなく、境界膜の厚さが十分ではないためであると考えられる。
- (3) 油不足条件においては鉄の回折強度のほか、酸化鉄や添加剤由来と考えられる FeS₂ や FeSO₄ 由来の回折強度が検出された。十分潤滑条件とは異なり、油不足条件で境界潤滑膜が検出されたのは潤滑条件が過酷で表面が活性となり、X 線回折強度が検出可能なほど境界膜が厚かったためと考えられる。

謝辞

本研究は科学研究費補助金（研究課題：22H00188）の支援の下で行われた。本研究の実験は、Spring-8 内のビームライン BL13XU（課題番号：2024A1592, 2025A1502）で行われた。

文献

- 1) K. Yagi, S. Kajita, T. Izumi, J. Koyamachi, M. Tohyama, K. Saito & J. Sugimura: Simultaneous Synchrotron X-ray Diffraction, Near-Infrared, and Visible In Situ Observation of Scuffing Process of Steel in Sliding Contact, Tribology Letters, 61 (2016) 19.
- 2) 松本律：放射光 XRD 分析による境界潤滑膜のその場観察，トライボロジー会議 2024 秋 名護 (2024) D30.