

新型离子液体作为甘油润滑添加剂的摩擦性能

曲铭海^{1,2}, 杨志权^{2,3}, 王将兵⁴, 范丰奇⁴,
张朝阳², 于强亮^{2,4}, 蔡美荣²

(1.德州学院 纺织服装学院, 山东 德州 253023; 2.中国科学院兰州化学物理研究所 固体润滑国家重点实验室, 兰州 730000; 3.西北民族大学 化工学院, 兰州 730030;
4.中国石油兰州润滑油研究开发中心, 兰州 730060;)

摘要: 目的 改善甘油作为润滑剂的摩擦学性能。方法 合成一种含脲基新型无卤素的功能化咪唑离子液体 (M-16-DOSS) 并作为甘油的润滑添加剂。通过核磁共振和高分辨四级杆飞行时间质谱对 M-16-DOSS 的结构进行表征。采用同步热分析仪测试甘油润滑体系的热稳定性。采用 SRV-IV 微动摩擦磨损试验机评价了甘油润滑体系的摩擦磨损性能, 通过三维轮廓仪对磨损体积和磨斑形貌进行了表征。采用 EDS 和 XPS 分析了磨斑表面元素和元素化学形态。结果 合成的功能化咪唑盐离子液体结构正确、纯度合格。M-16-DOSS 与甘油具有良好的相容性且能够提高甘油的热稳定性。M-16-DOSS 作为甘油的润滑添加剂可显著改善甘油的摩擦学性能, 添加量达到 1.5% 时, 摩擦系数下降到 0.1, 磨损体积下降 80%。结论 在摩擦过程中发生了摩擦化学反应, 通过硫氮的协同作用与铁和氧等元素形成了化学反应保护膜, 有效地阻止了摩擦副之间的直接接触和碰撞, 提高了甘油的减摩抗磨性能。

关键词: 甘油; 离子液体; 润滑添加剂; 磨损性能; 摩擦机理

中图分类号: TH117.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3660(2020)12-0177-07

DOI: 10.16490/j.cnki.issn.1001-3660.2020.12.020

Friction Performance of New Ionic Liquid as Lubricant Additive for Glycerin

QU Ming-hai^{1,2}, YANG Zhi-quan^{2,3}, WANG Jiang-bing⁴, FAN Feng-qi⁴,
ZHANG Chao-yang², YU Qiang-liang^{2,4}, CAI Mei-rong²

(1.School of Textile and Clothing Engineering, Dezhou University, Dezhou 253023, China; 2.State Key Laboratory of Solid Lubrication, Lanzhou Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;

收稿日期: 2020-01-11; 修订日期: 2020-04-21

Received: 2020-01-11; Revised: 2020-04-21

基金项目: 国家自然科学基金项目 (51705504, 21972153, 51675512); 中国博士后基金面上项目 (2019M653798); 中国科学院青年创新促进会 (2018454); 甘肃省国际合作项目 (18ZD2WA011)

Fund: Supported by the National Natural Science Foundation of China (51705504, 21972153, 51675512), China Postdoctoral Science Foundation Funded Project (2019M653798), the Youth Innovation Promotion Association of CAS (2018454), Gansu Province Science and Technology Plan (18ZD2WA011)

作者简介: 曲铭海 (1973—), 男, 博士, 副教授, 主要研究方向为离子液体润滑添加剂。

Biography: QU Ming-hai (1973—), Male, Doctor, Associate professor, Research focus: ionic liquid lubricant additives.

通讯作者: 于强亮 (1986—), 男, 博士, 副研究员, 主要研究方向为离子液体润滑剂、油溶性离子液体润滑添加剂、功能缓蚀剂、功能防腐涂层。邮箱: yql@licp.acs.cn

Corresponding author: YU Qiang-liang (1986—), Male, Doctor, Associate professor, Research focus: Ionic liquid lubricants, oil-soluble ionic liquid lubricant additives, functional corrosion inhibitors, functional anticorrosive coatings. E-mail: yql@licp.acs.cn.

引文格式: 曲铭海, 杨志权, 王将兵, 等. 新型离子液体作为甘油润滑添加剂的摩擦性能[J]. 表面技术, 2020, 49(12): 177-183.

QU Ming-hai, YANG Zhi-quan, WANG Jiang-bing, et al. Friction performance of new ionic liquid as lubricant additive for glycerin[J]. Surface technology, 2020, 49(12): 177-183.

3.School of Chemical Engineering, Northwest Minzu University, Lanzhou 730030, China;

4.PetroChina Lanzhou Lubricating Oil R&D Institute, Lanzhou 730060, China;)

ABSTRACT: The work aims to improve the tribological properties of glycerin as a lubricant. A novel halogen-free functionalized imidazole ionic liquid (M-16-DOSS) was prepared as a lubricant additive for glycerin. The structure of M-16-DOSS was characterized by nuclear magnetic resonance and high-resolution quadrupole time-of-flight mass spectrometry; the thermal stability of the glycerin lubrication system was tested by a synchronous thermal analyzer; the friction and wear performance of the glycerin lubrication system were evaluated by the SRV-IV micro-friction and wear tester and the wear volume and wear spot morphology were characterized by three-dimensional profilometer; and the surface elements and chemical morphology of wear spots were analyzed by EDS and XPS. The synthesized functionalized imidazole salt ionic liquid had the correct structure and qualified purity. M-16-DOSS had good compatibility with glycerin and could improve the thermal stability of glycerin. As a lubricant additive of glycerin, M-16-DOSS could significantly improve the tribological properties of glycerin. When the amount of M-16-DOSS was 1.5wt%, the friction coefficient decreased to 0.1 and the wear volume decreased by 80%. A tribochemical reaction occurs during the friction process. A chemical reaction protective film is formed with iron and oxygen through the synergistic effect of sulfur and nitrogen, which effectively buffers the direct contact and collision between friction pairs, and improves the anti-friction and anti-wear performance of glycerin. This new type of functionalized imidazole ionic liquid has excellent properties and provides new ideas and options for the development of glycerin lubricant additives.

KEY WORDS: glycerin; ionic liquid; lubricant additive; friction performance; wear mechanism

伴随工业的飞速发展,润滑剂的需求和使用量迅猛增加^[1]。然而,由于密封或者不合理润滑等导致的润滑剂泄露或爬移损失,造成了严重的安全及环保问题^[2]。据估算,目前进入到环境的各类润滑剂近亿吨,直接影响植物体的生长,污染生活用水长达100年之久,间接影响到人类的生命安全^[3]。为了解决此类问题,科技工作者一方面通过发展高效的润滑密封手段,改善润滑机构的结构密封性能,防止润滑剂的泄露^[4];另一方面通过分子设计,发展新型绿色润滑剂,一旦泄露到环境中,能够快速降解或者分解成为对环境无害的物质^[5]。

甘油生物相容性好、对环境安全,常被用于化妆品、个人护理产品、食品添加剂、药用润滑剂等领域^[6-7]。另外,因其分子结构紧凑以及黏度对压力和温度的高敏感性,在弹性流体动力润滑(EHL)领域具有很好的使用价值。Bjorling等^[8]使用滚珠-圆盘试验台研究了类金刚石(DLC)-甘油体系在弹流状态下的润滑性能,结果表明DLC涂层在甘油润滑下的摩擦系数非常低,某些情况下,摩擦系数值低于0.01。Deng等^[9]用氮化硅球-蓝宝石圆盘研究了硫酸和甘油混合物的润滑性能,同样达到了超低摩擦。然而,对于甘油在边界润滑状态下的摩擦学性能却报道不多,主要是因为甘油本身的分子量小,难以在摩擦界面形成稳定的边界吸附膜。另外,甘油分子不含特殊的活性元素,难以跟摩擦界面形成有效的摩擦化学反应膜。

研究证明,离子液体是非常高效的润滑剂和润滑添加剂,这类材料在摩擦过程中能够在界面形成非常致密和稳定的摩擦化学反应膜,起到减摩及抗磨作用^[10-12]。

虽然离子液体在不同的润滑剂体系中作为添加剂的研究报道很多,但是在甘油体系中作为润滑添加剂的研究还非常有限^[13-14]。另外,报道的离子液体多是以卤素或BF₄⁻、PF₆⁻、双(三氟甲基磺酰基)酰亚胺(Tf₂N⁻)等阴离子液体为主^[15-17],这类离子液体存在腐蚀性较强、降解中间体对环境危害较大等问题^[18-20]。本文通过分子设计,合成了一种环境友好的新型无卤素功能化咪唑离子液体M-16-DOSS,作为甘油润滑添加剂,系统研究了该体系的摩擦学特性及润滑机制。

1 试验

1.1 原料及试剂

原料及试剂包括溴代十六烷(安耐吉化学,98%)、乙腈(科密欧化学,99.5%)、1-(3-氨基丙基)咪唑(安耐吉化学,98%)、异氰酸正丁酯(安耐吉化学,98%)、多库酯钠(百灵威科技有限公司,95%)、甘油(百灵威科技有限公司,99%)。

1.2 离子液体的合成和表征

根据文献[21]合成功能化咪唑离子液体M-16-DOSS。将50 mmol的1-(3-氨基丙基)咪唑分散在200 mL乙腈中,在1 h内缓慢滴加50 mmol异氰酸正丁酯,滴加结束后,室温下继续搅拌4 h,加入50 mmol溴代十六烷,加热回流24 h后反应结束,减压蒸除溶剂得到功能化咪唑溴盐。将制备的咪唑溴盐溶于200 mL丙酮中,加入50 mmol多库酯钠,室温下搅拌24 h后,过滤除去溴化钠,蒸除溶剂得到黏稠状液体。用二氯甲烷溶解上述液体,水洗3次,有

机相用无水硫酸钠干燥 12 h, 过滤后蒸除溶剂, 得到白色固体状功能化咪唑离子液体 M-16-DOSS, 产率为 90%。

采用核磁共振波谱 (Bruker 400MHz, ¹H NMR: 400 MHz, ¹³C NMR: 100 MHz) 和高分辨四级杆飞行时间质谱 (micoTOF-Q II) 对咪唑离子液体进行分子结构确认。

1.3 添加不同浓度离子液体的甘油润滑体系的制备

将 M-16-DOSS 分别以 0.3%、1.0%、1.5% (质量分数) 添加至甘油中, 搅拌溶解形成含有 M-16-DOSS 的均匀透明的甘油润滑体系。采用德国耐驰公司 STA 449 F3 TGA-DSC (NETZSCH) 同步热分析仪测试不同浓度的甘油润滑体系的热稳定性, 实验条件为氮气, 温度每分钟升高 10 °C, 从 25 °C 升到 500 °C。

1.4 摩擦磨损试验

用德国 Optimol 油脂公司生产的 SRV-IV 微动摩

擦磨损试验机, 评价 M-16-DOSS 甘油体系的摩擦学性能^[22-23]。SRV 微动摩擦磨损试验机的摩擦副接触方式为球-盘点接触, 实验载荷为 100 N, 实验频率为 25 Hz, 振幅为 1 mm, 时间为 30 min, 温度为 25 °C。实验上试球为直径 10 mm 的 AISI 52100 钢球, 硬度为 59~61HRC, 下试盘为直径 24 mm、厚度 7.9 mm、硬度 59~61HRC 的 AISI 52100 钢盘。实验结束后, 下试样钢盘的磨损体积和磨斑形貌由 BRUKER-NPFLEX 3D 光学表面轮廓仪测定。采用 Thermo Scientific Nexsa X 射线光电子能谱仪 (XPS) 测定磨痕表面的元素形态。

2 结果与讨论

2.1 结构表征

图 1 为功能化咪唑离子液体 M-16-DOSS 的分子结构, 其核磁共振和质谱图数据如表 1 所示。核磁共振谱图的数据分析和高分辨质谱结果表明, 所合成的功能化咪唑盐离子液体结构正确、纯度合格。

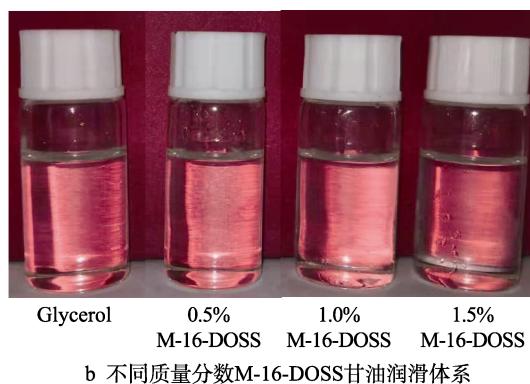
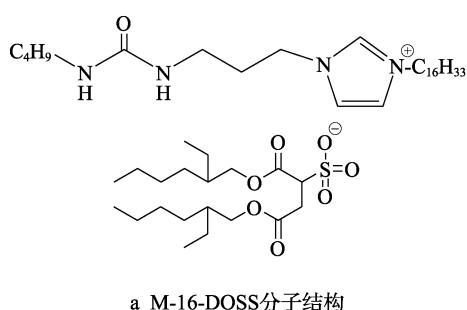


图 1 离子液体 M-16-DOSS 的分子结构及含不同质量分数 M-16-DOSS 的甘油润滑体系

Fig.1 Molecular structure of M-16-DOSS (a) and glycerin lubrication system with different mass fractions of M-16-DOSS (b)

表 1 核磁共振和质谱图数据
Tab.1 NMR and MS data

Parameter	Results	
¹ H NMR (400 MHz, CDCl ₃)	δ: 9.68 (s, 1H), 7.57 (s, 1H), 7.18 (s, 1H), 6.60 (s, 1H), 5.84 (s, 1H), 4.39 (t, J=4.0 Hz, 2H), 4.22 (t, J=3.2 Hz, 2H), 4.04 (s, 3H), 3.97 (m, 2H), 3.70 (dd, J=12.0, 8.0 Hz, 2H), 3.26~3.09 (m, 6H), 2.05 (s, 3H), 1.86 (t, J=8.0 Hz, 3H), 1.61~1.20 (m, 46H), 0.90~0.83 (m, 15H)	
¹³ C NMR (100 MHz, CDCl ₃)	δ: 171.42, 169.22, 159.37, 137.48, 122.66, 121.45, 67.27, 61.94, 58.35, 50.16, 47.41, 39.90, 38.65, 32.45, 31.92, 30.48, 30.25, 30.11, 30.05, 29.69, 29.66, 29.62, 29.53, 29.40, 29.36, 29.01, 28.88, 26.31, 23.64, 23.42, 22.96, 22.69, 20.13, 18.43, 14.12, 14.07, 14.04, 13.87, 10.94, 10.89, 10.85, 10.78	
m/z (ESI, cation)	Calc.: 449.4214	Found: 449.4210 [C ₁₂ H ₂₃ N ₄ O] ⁺
m/z (ESI, anion)	Calc.: 421.2260	Found: 421.2274 [C ₂₀ H ₃₇ O ₇ S] ⁻

2.2 热稳定性

图 2 为甘油及包含不同浓度功能化咪唑盐离子液体的甘油润滑体系的热重曲线, 表 2 为各体系的热失重

数据。结合图 2 和表 2 的数据可以看出, 少量 M-16-DOSS 的加入导致甘油的热稳定性略有下降, 但随着添加量逐渐增大, 甘油润滑体系的分解温度逐渐升高, 离子液体的加入有助于提高甘油自身的热稳定性。

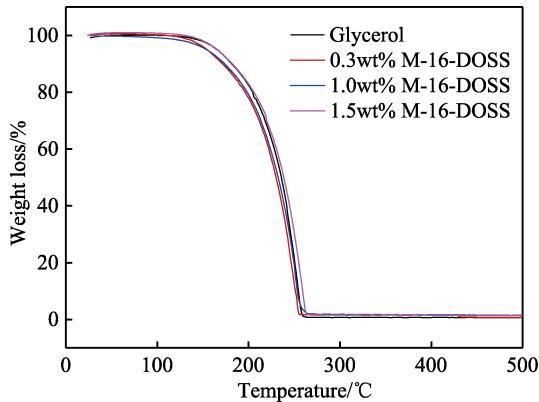


图2 不同浓度甘油的TG曲线

Fig.2 TG curve of different concentrations of glycerin

表2 不同浓度甘油热失重温度

Tab.2 Thermogravimetric temperature of different concentrations of glycerin °C

Sample	10% loss	20% loss	50% loss
Glycerol	181.72	203.71	235.72
0.3wt% M-16-DOSS	170.62	195.63	229.76
1.0wt% M-16-DOSS	173.34	198.52	232.56
1.5wt% M-16-DOSS	181.96	204.81	238.67

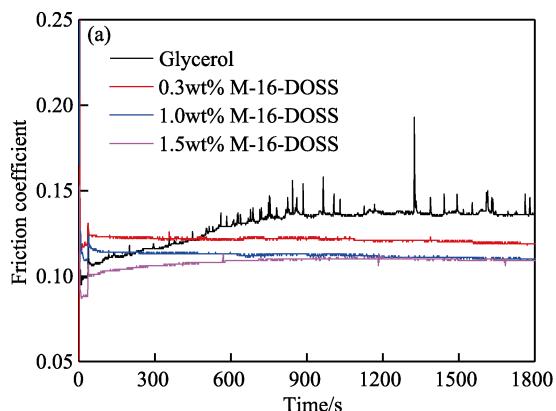
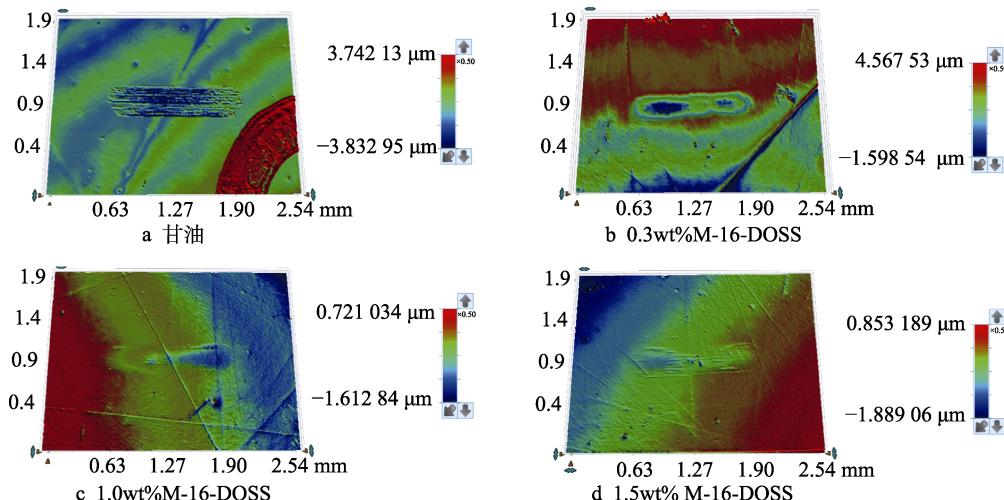


图3 25 °C时甘油及M-16-DOSS-甘油润滑体系作为钢/钢摩擦副润滑剂的摩擦系数和下试样钢块的磨损量

Fig.3 Friction coefficient of the samples applied on steel/steel friction pairs and wear volume of the lower steel block at 25 °C



2.3 摩擦学性能

图3a及图3b分别为甘油及添加不同浓度的M-16-DOSS的甘油润滑体系在室温、载荷100 N下的摩擦系数曲线和相应的磨损体积。由图3可看出，在实验给定的测试条件下，甘油润滑下的摩擦系数波动较大，平均摩擦系数约为0.15，且下试样钢块的磨损体积较大，约为 $1 \times 10^{-4} \text{ mm}^3$ 。加入离子液体后，摩擦系数降低并保持平稳，波动明显减少。随着加入离子液体的浓度逐渐增加，甘油润滑体系的摩擦系数逐渐降低，相应的磨损体积也明显降低。当M-16-DOSS的添加量为1.5%时，甘油润滑体系的平均摩擦系数降低到0.1左右，对应的磨损体积降低80%左右，表明离子液体的加入能够有效地提高甘油体系的减摩及抗磨性能。

2.4 磨斑表面形貌

为进一步验证离子液体的加入能够有效地提高甘油润滑体系的抗磨性能，利用三维轮廓仪对摩擦后的磨斑表面形貌进行了光学测量，结果如图4所示。图4a是纯甘油摩擦过后的表面三维轮廓，可以看出

图4 不同甘油润滑体系下的磨斑三维形貌
Fig.4 3D morphologies of wear scar lubricated by different samples: (a) glycerol

磨斑的磨损较为严重, 典型犁沟较多, 磨痕宽而深。图 4b、c 和 d 依次为加入不同浓度离子液体进行摩擦学实验后的表面三维形貌图, 随着加入离子液体浓度的增加, 磨斑明显变小, 典型犁沟减少, 磨损明显减轻。尤其对 1.5wt% M-16-DOSS-甘油体系(图 4d)而言, 磨痕变得浅而窄, 证明离子液体具有优异的抗磨性能。

2.5 润滑机理

为进一步研究 M-16-DOSS 作为甘油润滑添加剂的减摩抗磨机理, 在磨损形貌分析的基础上, 对甘油

以及含不同质量分数的 M-16-DOSS 的甘油体系摩擦后的磨斑表面进行了 EDS 元素分析, 结果如图 5 所示。从图 5a 可知, 对于纯甘油润滑摩擦后的表面, EDS 分析仅仅表征出一些轴承钢的本征元素。而对于加入不同质量分数的 M-16-DOSS 的甘油摩擦后的磨斑表面, 能够明显观察到 S 元素的存在, 而且随着 M-16-DOSS 的含量增加, EDS 图谱中的 S 元素峰值明显增加, 如图 5b、c、d 所示。EDS 谱图表明, M-16-DOSS 离子液体中的 S 元素与金属基底发生化学反应, 且随着离子液体含量的增加, 生成含硫化合物的量增多, 含硫化合物存在起到了抗磨损作用。

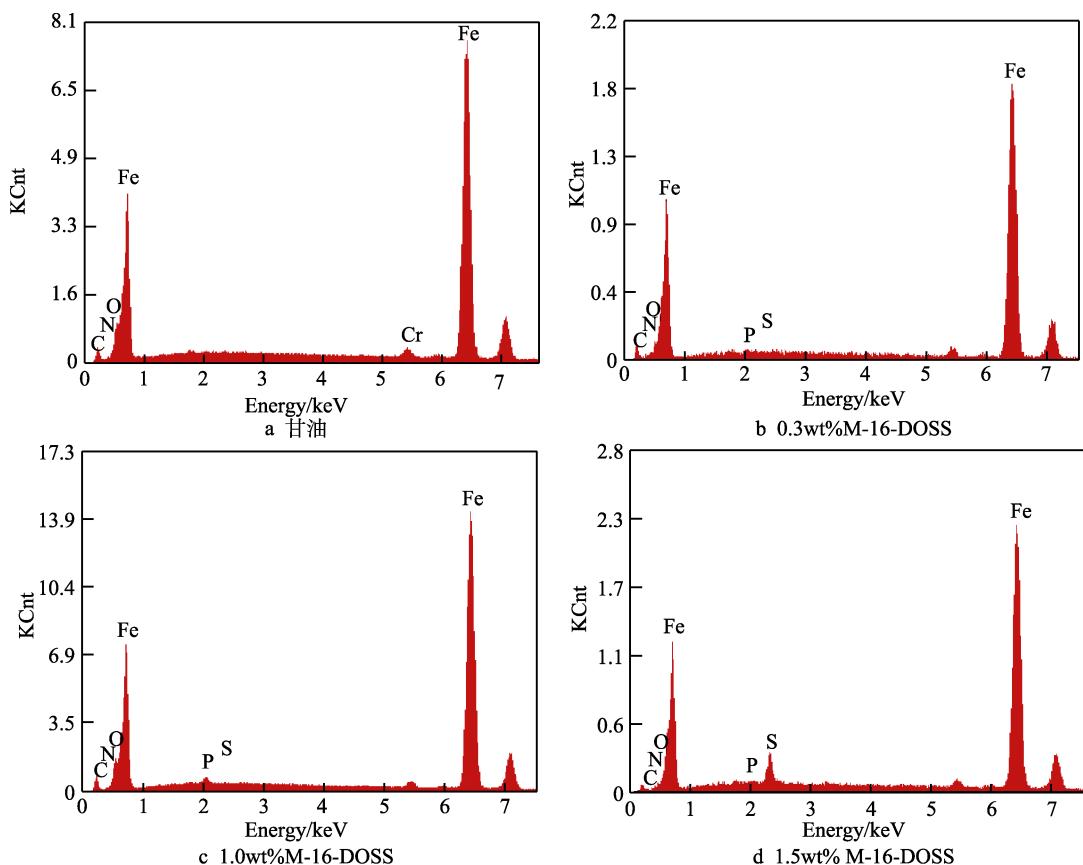


图 5 不同试样润滑下的磨斑表面的元素分析

Fig.5 EDS analysis of wear scar lubricated by different samples: (a) glycerol

为进一步表征磨斑表面元素的化学形态, 对甘油和含 1.5% M-16-DOSS 的甘油体系摩擦后的磨斑表面进行了 XPS 分析, 结果如图 6 所示。对于 N1s 谱图, 纯甘油润滑后没有峰, 而含 1.5% M-16-DOSS 的甘油体系摩擦后的磨斑能谱的结合能峰出现在 400.2 eV, 可能对应于硝酸盐以及氮氧化物^[24]。对于 O1s 谱图, 能谱的结合能峰值在 533、536.5 eV, 表明磨斑表面可能存在 C—O 和 C=O^[23]的化学态形式; 对于 S2p 谱图, 峰值特别明显, 位置在 163.1~162.4 eV 处, 结合 Fe2p 的结合能在 710.8、724.9 eV 有两个明显的峰, 可以推测 Fe 元素可能以氧化物、

$\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ 、 FeS 或 FeS_2 的化学态形式存在^[25-26]。而纯甘油润滑后, $\text{Fe}2\text{p}$ 在 707.3 eV 位置处出现了一个较为明显的单质铁峰。甘油润滑后, 主要以铁氧化物和单质形式存在的润滑膜, 不能起到减摩和抗磨作用。

根据 EDS 和 XPS 分析表明, 和纯甘油相比, 由于功能化咪唑离子液体在摩擦过程中与钢摩擦副表面 N/S 协同作用并且发生了摩擦化学反应, 形成了一层含有 Fe、O、N、S 等元素的化学反应保护膜。保护膜的形成在钢/钢摩擦副表面可以起到优异的润滑效果, 表现出良好的摩擦学性能。

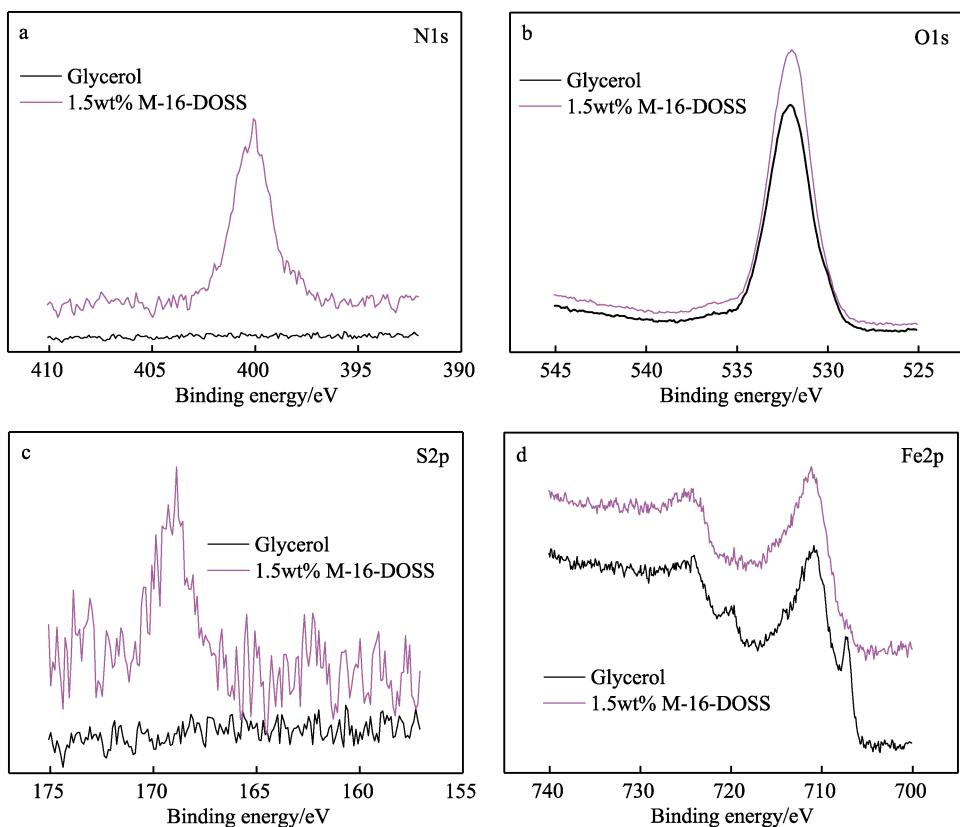


图6 含1.5%M-16-DOSS的甘油润滑体系的磨斑表面XPS谱图
Fig.6 XPS analysis of wear scar lubricated by glycerin with 1.5wt%M-16-DOSS as additive

3 结论

1) 合成了一种新型功能化咪唑离子液体(M-16-DOSS)，作为甘油的润滑添加剂能够提高甘油体系的热稳定性。

2) 通过对样品摩擦系数、磨损量和磨斑表面形貌进行分析，M-16-DOSS作为甘油的润滑添加剂可显著改善甘油的摩擦学性能，添加量达到1.5%时，摩擦系数下降到0.1，磨损体积降低了80%。

3) 根据EDS和XPS分析，表明在摩擦过程中发生了摩擦化学反应，通过硫氮的协同作用与铁和氧等元素形成了化学反应保护膜，有效地阻止了摩擦副之间的直接接触和碰撞，提高了甘油的减摩抗磨性能。

参考文献：

- [1] 韩露, 程传杰, 陈晨, 等. 剂量对润滑条件下氮离子注入316L不锈钢摩擦学行为的影响[J]. 摩擦学学报, 2019, 39(6): 43-49.
HAN Lu, CHENG Chuan-jie, CHEN Chen, et al. Effect of dose on tribological performance of N^+ implanted stainless steel under lubrication conditions[J]. Tribology, 2019, 39(1): 43-49.
- [2] 凡明锦, 张朝阳, 文平, 等. 氨基酸离子液体润滑剂的

结构与摩擦学行为的关系[J]. 中国表面工程, 2017, 30(3): 148-158.

FAN Ming-jin, ZHANG Chao-yang, WEN Ping, et al. Relationship between molecular structure and tribological performance of amino acid ionic liquid lubricant[J]. China surface engineering, 2017, 30(3): 148-158.

[3] SHI Yi-jun, MINAMI I, GRAHN M, et al. Boundary and elastohydrodynamic lubrication studies of glycerol aqueous solutions as green lubricants[J]. Tribology international, 2014, 69: 39-45.

[4] 周广运, 栗心明, 郭峰, 等. 表面速度异向条件下定量脂润滑特性试验观察[J]. 摩擦学学报, 2019, 39(5): 635-642.

ZHOU Guang-gyun, LI Xin-ming, GUO Feng, et al. Experimental observation of single-charging grease lubrication with different directions of surface motion[J]. Tribology international, 2019, 39(5): 635-642.

[5] 郭效军, 蒲茂杰, 杨志刚, 等. 石墨烯/LaF₃的制备及其作为水基润滑剂的摩擦学性能研究[J]. 摩擦学学报, 2019, 39(1): 35-42.

GUO Xiao-jun, PU Mao-jie, YANG Zhi-gang, et al. Synthesis, structure and tribological properties of graphene/LaF₃ composites as water-based lubricant additives[J]. Tribology, 2019, 39(1): 35-42.

[6] OMG K L, FICKERS P, LIN C. Enhancing succinic acid

- productivity in the yeast *Yarrowialipolytica* with improved glycerol uptake rate[J]. *Science of the total environment*, 2020, 702: 134911.
- [7] MARE S W, VENSKUTONYTE R, ELTSCHKNER S, et al. Structural basis for glycerol efflux and selectivity of human aquaporin[J]. *Structure*, 2019, 27(2): 245.
- [8] BJORLING M, SHI Yi-jun. DLC and glycerol: Superlubricity in rolling/sliding elastohydrodynamic lubrication[J]. *Tribology letters*, 2019, 67(1): 23.
- [9] DENG Ming-ming, LI Jin-jin, ZHANG Chen-hui, et al. Investigation of running-in process in water-based lubrication aimed at achieving super-low friction[J]. *Tribology international*, 2016, 102: 257-264.
- [10] 孙文静, 张帅, 董瑞, 等. 芳基取代羧酸离子液体结构与摩擦学性能的构效关系研究[J]. 表面技术, 2017, 46(11): 212-222.
SUN Wen-jing, ZHANG Shuai, DONG Rui, et al. Relationship between structure and tribological properties of aryl-substituted aromatic acid ionic liquid lubricants[J]. *Surface technology*, 2017, 46(11): 212-222.
- [11] YU Qiang-liang, HUANG Guo-wei, CAI Mei-rong, et al. In situ zwitterionic supramolecular gel lubricants for significantly improved tribological properties[J]. *Tribology international*, 2016, 95: 55-65.
- [12] 张建文, 张朝辉, 刘志杭. 质子型离子液体水基润滑液摩擦学性能研究[J]. 摩擦学学报, 2019, 39(5): 628-634.
ZHANG Jian-wen, ZHANG Chao-hui, LIU Zhi-hang. Lubricating properties of the protic ionic liquids as the water-based lubricating additives[J]. *Tribology*, 2019, 39(5): 628-634.
- [13] YAMAGUCHI T, KATSURASHIMA Y, HOKKIRIGAWA K. Effect of rubber block height and orientation on the coefficients of friction against smooth steel surface lubricated with glycerol solution[J]. *Tribology international*, 2017, 110: 96-102.
- [14] TORTORA A, VEEREGOWDA D. Effects of two sliding motions on the superlubricity and wear of self-mated bearing steel lubricated by aqueous glycerol with and without nanodiamonds[J]. *Wear*, 2017, 386: 173-178.
- [15] JIMENEZ A E, BERMUDEZ M D, IGLESIAS P, et al. 1-N-alkyl-3-methylimidazolium ionic liquids as neat lubricants and lubricant additives in steel-aluminium contacts[J]. *Wear*, 2006, 260(7-8): 766-782.
- [16] QU Jun, BLAU P J, DAI Sheng, et al. Ionic liquids as novel lubricants and additives for diesel engine applications[J]. *Tribology letters*, 2009, 35(3): 181-189.
- [17] CAI Mei-rong, ZHAO Zhu, LIANG Yong-min, et al. Alkyl imidazolium ionic liquids as friction reduction and anti-wear additive in polyurea grease for steel/steel contacts[J]. *Tribology letters*, 2010, 40(2): 215-224.
- [18] NAGENDRAMMA P, KHATRI P K, THAKRE G D, et al. Lubrication capabilities of amino acid based ionic liquids as green bio-lubricant additives[J]. *Journal of molecular liquids*, 2017, 244: 219-225.
- [19] PHAM T, CHO C W, YUN Y S. Environmental fate and toxicity of ionic liquids: A review[J]. *Water research*, 2010, 44(2): 352-372.
- [20] SICILIANO A, RUSSO D, SPASIANO D, et al. Chronic toxicity of treated and untreated aqueous solutions containing imidazole-based ionic liquids and their oxidized by-products[J]. *Ecotoxicology and environmental safety*, 2019, 180: 466-472.
- [21] YU Qiang-liang, WU Yang, LI Dong-mei, et al. Supramolecular ionogel lubricants with imidazolium-based ionic liquids bearing the urea group as gelator[J]. *Journal of colloid and interface science*, 2017, 487: 130-140.
- [22] FAN Ming-jin, YANG De-suo, WANG Xiao-ling, et al. Doss-based QAILS: As both neat lubricants and lubricant additives with excellent tribological properties and good detergency[J]. *Industrial & engineering chemistry research*, 2014, 53(46): 17952-17960.
- [23] WANG Yu-rong, YU Qiang-liang, CAI Mei-rong, et al. Halide-free PN ionic liquids surfactants as additives for enhancing tribological performance of water-based liquid[J]. *Tribology international*, 2018, 128: 190-196.
- [24] OLIVEIRAMAIA D, SOUZACHAGAS A, ARAUJO A, et al. Catalytic pyrolysis of glycerol in the presence of nickel(ii) schiff base complex supported in SBA-15: Kinetic and products(TG-FTIR and PY-CG/MS)[J]. *Thermochimica acta*, 2018, 669: 160-168.
- [25] ZHENG Dong-dong, WANG Xiao-bo, LIU Zhong-guo, et al. Synergy between two protic ionic liquids for improving the antiwear property of glycerol aqueous solution[J]. *Tribology international*, 2020, 141: 105731.
- [26] SUN Ying-nan, HU Jiang-lei, AN Sai, et al. Selective esterification of glycerol with acetic acid or lauric acid over rod-like carbon-based sulfonic acid functionalized ionic liquids[J]. *Fuel*, 2017, 207: 136-145.