

Tribological Properties of Hydrogels with Hemispherical Surface Dimples

竹藤, 春菜

<https://hdl.handle.net/2324/7363592>

出版情報 : Kyushu University, 2024, 博士 (理学), 課程博士
バージョン :
権利関係 :



氏 名	竹藤 春菜			
論 文 名	Tribological Properties of Hydrogels with Hemispherical Surface Dimples (表面に半球状くぼみ形状をもつハイドロゲルのトライボロジー特性)			
論文調査委員	主 査	九州大学	教 授	安中 雅彦
	副 査	九州大学	教 授	水野 大介 (物理学部門)
	副 査	九州大学	准教授	秋山 良
	副 査	九州大学	准教授	槇 靖幸

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

本研究者、竹藤春菜はハイドロゲルの表面にくぼみの形状を導入し、その摩擦や摩耗の挙動について研究を行った。

ハイドロゲル(以下、ゲル)は高分子の 3 次元ネットワーク構造が水で膨潤した物質であり、生体モデルや生体代替物質など、生物科学分野や医療材料分野への応用展開が期待されており、例えば、ゲルを人工関節軟骨へ応用するための研究は多くの報告がある。一方で、ゲルの摩擦や摩耗などのトライボロジー特性を理解することは重要であるにも関わらず、ゲルの摩擦研究そのものの歴史が浅く、さらにその表面形状に着目した例は少ない。本研究では、自然界で究極の摩擦・摩耗特性を有する生体組織であると考えられる関節軟骨に存在する表面くぼみ形状に着目し、ゲルの表面形状と摩擦特性の相関の解明、さらに、生体表面、組織界面で観測される滑らかな運動特性の原理の確立を目的とした。

本研究と同じく、ゲル表面の低摩擦化を目指す研究は国内外に多くあり、これらは基本的にゲルの濃度を下げ、ゲル表面の高分子密度を小さくすることで低摩擦化を実現している。ゲル濃度の低減で摩擦係数は低下する一方で、ゲル強度は損なうことになる問題点があった。ゲル自体の低摩擦化を達成しながら、かつ強度などの物性を変化させないという点で、表面形状を変化させる本研究は過去の類似する研究と異なっている。

本研究では、ゲル表面にくぼみ形状を施すことで、くぼみから潤滑液が摩擦界面に供給されることや、摩耗粉などの異物がくぼみに捕集される効果により潤滑が促進されることで低摩擦化することが可能となるという仮説を立て、以下の 3 つの研究を行った。ゲル表面にくぼみを導入することは、くぼみ部分による接触面積の低下と接触部の圧力上昇が同時に生じると見込まれるが、これまでの検討からゲルの摩擦応力(τ)の圧力(σ)依存性を $\tau \propto \sigma^\alpha$ としたとき、 α は 1 より小さいという結果が得られているため、結果的に摩擦力が低減すると期待される。従って、潤滑状態に移行する高い速度領域だけでなく、低速度領域においてもくぼみによって摩擦応力が低下することが期待される。

本研究では、まず表面にくぼみ形状をもつ PVA ゲル(DG)の接触状態および凝着強さについて検討した。上述のようにくぼみの形状による接触面積の低下は凝着力を下げると予測される一方で、既往研究において六角形パターンなどの表面テクスチャを施したゲルでは、平坦なゲルよりも接触面積が小さいにも関わらず、圧力上昇や水の排出効果によって凝着力が向上する事例が報告されている。半球状のくぼみ形状を導入したゲルでは、くぼみ内の水が排出されにくいことが想定されるが、これが接触や凝着力にどのような影響を及ぼすかは明確でなかった。そこで、Chaudhury らに

より開発された水滴形状を転写する技法をゲルに応用し作製した DG に対して、ガラス基板と DG の接触状態を評価したところ、表面くぼみ形状は圧縮下でも保持され、ゲル/基板の接触面積が、表面が平坦なゲル(FG)と比べて約 50%減少することを確認した。また、くぼみ内に存在する水は荷重を支持せず、FG より局所的な接触圧が上昇することを見出した。更に、DG とガラスが接触した状態から剥離させ、ゲル/ガラス間にはたらく凝着力を測定した結果、FG に比べ、DG は凝着力が減少することを見出した。以上の結果から、ゲル表面にくぼみ形状を付与することで、局所的な接触圧の上昇、凝着力が低下させることを実験的に明らかにした。さらに、凝着力が低下は、くぼみ内の水が界面へ供給され、剥離を促進したことに起因することを明らかにした。

次に本研究では、DG のガラス基板に対する摩擦特性について検討した。くぼみの平均半径が 90~820 μm の大きさの異なる 4 種類の DG、表面の濡れ性の異なる 3 種類のガラス基板を調整し、摩擦挙動のガラス表面の濡れ性依存性について検討を行った。DG は基板濡れ性に応じて異なる摩擦挙動を示した。最も濡れ性の良い基板(接触角 $\theta < 10^\circ$)ではゲルと基板の接触が弱く、潤滑しやすいため低速度領域において摩擦力が小さく、FG と DG では大きな差が見られない一方で、高速度領域では FG の摩擦力は潤滑液の粘性抵抗により上昇するが、DG ではくぼみ部分が厚い水層であるため粘性抵抗の上昇が抑えられ、FG の 1/5 程度に低摩擦化した。中間の濡れ性($\theta \sim 70^\circ$)では低速から中速度領域で DG は FG よりも 1/2 程度に低摩擦化する結果となり、この領域では、ゲルの凝着力が高く、ゲル/基板の接触面積減少(約 50%)による摩擦低下することを示唆する結果を得た。一方、高速度領域では DG の摩擦低減はみられず、これは DG の接触部の圧力が高いことによると予測された。さらに、接触角 $\theta \sim 110^\circ$ の疎水性基板においては測定した全速度範囲で摩擦が低下することを確認した。低速から中速域では接触面積減少に応じた摩擦応力の低下が確認された。一方、高速域では DG は FG より低摩擦である一方で、速度に対する減少率は FG のほうが大きく、FG は潤滑領域に移行していることが示された。DG は接触圧力が高いため潤滑に移行しにくいことを示唆する結果を得た。これらの結果はどのくぼみサイズにも共通して観測されたが、唯一の例外として、くぼみの平均半径 820 μm の DG では、高速度領域で FG と同程度の速度依存性で摩擦の低減が観察され、潤滑が示唆された。ハイスピードカメラによる摩擦界面の観察から、くぼみから界面に水が供給される確認された。以上の結果から、本研究により、ゲルに導入したくぼみ形状により濡れ性や速度に応じた摩擦の低減が起きることを示し、それらは接触面積の減少とくぼみからの水の染み出しによることが明らかになった。

さらに、PVA ゲルの定量的な摩擦評価を行った。ゲル表面の摩擦現象により生じるでは摩擦の評価は重要であり、これまで摩擦表面の顕微鏡観察が主として行われてきたが、摩擦したゲルは膨潤や乾燥の影響を大きく受けるため、定量性を欠く評価にとどまってきた。そこで、摩擦試験の際の潤滑液が摩擦粒子を含むことに着目し、紫外可視分光法および全有機炭素測定を行うことで、定量的にかつ高精度で摩擦量を評価する新たな方法論を確立した。本手法によりガラス基板に対するゲルの摩擦量は、表面が平坦なゲルに比べ表面にくぼみ形状をもつゲルで低下することが、初めて確認できた。ゲルは、潤滑領域では低摩擦であると考えられるため、本手法により摩擦量を定量化することで、観測するゲルの摩擦現象が、接触摩擦領域、潤滑領域のどの領域にあるのかを判断することが可能になった。

以上の結果、本研究者の研究によって、ハイドロゲル表面へのくぼみ形状の付与により、ガラス基板に対して表面が平坦なゲルに比べて低摩擦になることを明らかにされ、その要因がハイドロゲルと相手基板との接触面積の減少、及びくぼみ形状内にトラップした水の界面への供給による潤滑の促進であることを実験的に初めて定量的に明らかになった。また、新たなゲル摩擦量の測定法の確立により、従来よりも高精度で定量的なゲルの摩擦解析を可能にした。本研究で成果は、高分子

ゲルの表面科学という新たな研究領域を開拓し，これらの知見は，生体組織の滑らかな運動・変形挙動の物理化学的の理解明，さらに次世代人工医療機器を創製する重要な戦略指針を与えるものである。

よって，本研究者は博士（理学）の学位を受ける資格があるものと認める。