

高含水ハイドロゲルの摩擦特性に対するすべり速度と関節液成分の影響

Effect of sliding velocity and synovial constituents on the friction of high water content hydrogel

九大（正）*新盛 弘法 九大（非）原 和世 九大（正）森田 健敬

九大（正）鎌光 清道 九大（正）澤江 義則

Hironori Shinmori*, Kazuyo Hara*, Takehiro Morita*

Seido Yarimitsu*, Yoshinori Sawae*

*Kyushu University

1. 緒言

生体関節は、低速・高圧と言う厳しい摺動条件にも関わらず、80年以上もの長期間にわたって低摩擦・低摩耗を維持する。関節の高度な潤滑機能には、表層を覆う軟骨組織や周囲を満たす関節液中の生体高分子が密接に寄与しているとされる。これまでに、固液二相性や最表面での水和層の形成、関節内を満たす関節液中の成分による境界潤滑膜形成など様々な潤滑メカニズムが提唱されている。そしてこれらの潤滑特性は、関節の動きのような、不規則・不連続に速度が変化状況下でも機能する。このような関節の潤滑機能は、軟骨組織の材料特性や周囲の関節液中の成分、運動条件など複雑な要因が重なり合っているため、完全なメカニズムの解明には至っていない。特に関節軟骨は“生きた”材料であり、軟骨組織が有する構造・特性を再現することは困難である。また軟骨組織のような高含水ソフトマターは、特有の摩擦・速度依存性を有することが知られている^[1]。しかしながら、この速度変化と関節液成分を同時に考慮した知見は未だに乏しい。そこで本研究では、同様の性質を有する高含水ハイドロゲルを軟骨組織のモデル材として用い、関節液成分が摩擦挙動に及ぼす影響を、速度変化の観点から調査した。

2. 試験方法

本研究では、Ball-on-plate型往復摩擦試験を行い、関節液成分を含む試験溶液中での軟骨モデルと相手面間の動摩擦係数を測定した。軟骨モデルには柔軟性と高含水性を持つ点から、ポリビニルアルコール（Polyvinyl alcohol, PVA）ハイドロゲル（含水率：80%，弾性率：1.2 MPa）を採用した。プレート試験片として厚さ2 mmのPVAハイドロゲルを、相手面としてガラスレンズ（曲率半径50 mm）を用いた。試験溶液には、リン酸緩衝生理食塩水（PBS）をベースに、タンパク質（アルブミン：1.4 wt%，γ-グロブリン：0.7 wt%，Protein），ヒアルロン酸（0.5 wt%，HA），リン脂質（0.01 wt%，DPPC）を添加した溶液と精製水を使用した。荷重は500 gで設定し、速度の影響を検討するために、滑り速度を1～100 mm/sで変化させた。さらに一部条件の摩擦試験後のPVAハイドロゲルに対し、FT-IR分析装置で表面の化学分析を行った。

また、ball-on-plate型の接触形態であることから、接触面間に形成される流体膜厚が滑り速度とともに変化する。この流体膜厚の変化とハイドロゲルの摩擦の関係性を評価するために、各条件下における流体膜厚の理論計算を行った。通常の弾性流体力論ではなく、Dowsonらの軟質材を有する剛体の点接触の式を用いた^[2]。中心膜厚の無次元量をH_{cen}とすると、

$$H_{cen} = \frac{h_{cen}}{R_x} = 3.66 U^{0.54} L^{0.37} W^{-0.18} (1 - 0.61 e^{-0.12 k}) \quad (1)$$

で表すことができる。ここで、kは楕円率（等価半径Rx=Ryの場合、k=1）、U、L、Wはそれぞれ速度、軟質材料の厚さおよび荷重の無次元パラメータである。U、L、Wはそれぞれ等価弾性率E'、E''[Pa]と等価半径Rx[m]で除しており、両面に張り付けられている軟質材料の弾性率E_{1,2}、ポアソン比ν_{1,2}、および厚さht_{1,2}とすると、

$$\frac{1}{E'} = \frac{1}{2} \left(\frac{(1-\nu_1)^2}{E_1} + \frac{(1-\nu_2)^2}{E_2} \right) \quad (2)$$

$$\frac{1}{E''} = \left[\frac{(1+\nu_1)(1-2\nu_1)}{(1-\nu_1)E_1} \left\{ \frac{(h_t)_1}{(h_t)_2} \right\} + \frac{(1+\nu_2)(1-2\nu_2)}{(1-\nu_2)E_2} \right] \times \left\{ \frac{(h_t)_2}{(h_t)_1 + (h_t)_2} \right\} \quad (3)$$

となる。またUは粘度ηを含むため、各溶液の粘度測定を行った。その結果、HAを含む場合は非ニュートン性が顕著に表れ、それ以外は水の粘度である1 mPa*sと同程度の値が得られた。そこで、本研究では、HAを含む場合と含まない場合に分けて理論膜厚を行った。

3. 試験結果

摩擦試験の結果の結果をFig.1に示す。精製水中の結果を基準に比較すると、HAでは摩擦の低下がすべての速度域

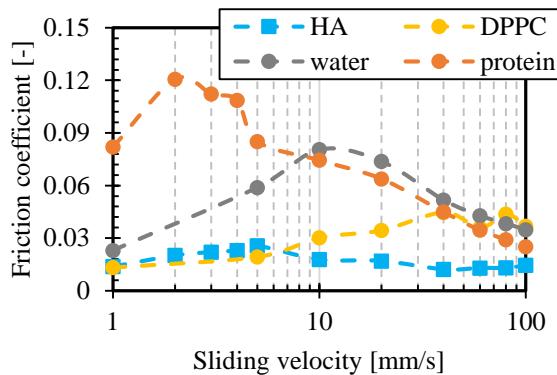


Fig. 1 The results of friction tests function of sliding velocity

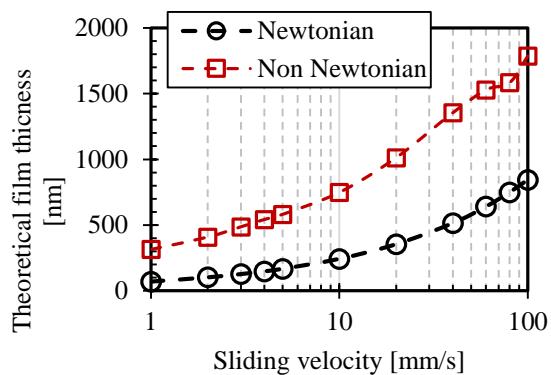


Fig. 2 The theoretical film thickness at each sliding velocity

で確認された。Protein では、5 mm/s 以下の低速度域で摩擦の増大が確認された。10 mm/s 以降は精製水中と同程度の摩擦の推移が確認された。DPPC では逆に、低速度域で摩擦の低下が確認された。そして、速度増加とともに摩擦係数が増大する傾向が見られ、40 mm/s 以降からは Protein と同様に精製水中と似た挙動が見られた。また、各滑り速度における理論膜厚を Fig. 2 に示す。非ニュートン性 (HA を含む場合) の条件では、全ての速度域で膜厚の増大が確認された。

4. 考察

まず精製水中の結果から、摩擦係数が上昇から減少に転ずる挙動が確認された。これはハイドロゲル特有の摩擦挙動であり、ハイドロゲル表面の高分子鎖の凝着および速度差による分子鎖の延伸によって生じたと考えられる^[1]。

Protein の効果を検証するために、滑り速度 3 mm/s および 80 mm/s で試験したハイドロゲル表面に対して FT-IR 分析を行った。結果として、滑り速度 3 mm/s ではタンパク質の凝着・変性に由来するピークが検出されたのに対し、80 mm/s では検出されなかった。また、Fig. 3 に理論膜厚と摩擦係数の関係を示す。Proteinにおいて、膜厚 150 nm を境に摩擦が減少に転じた。本研究で使用したタンパク質の分子サイズは 10 nm 程度であるが、溶液中ではタンパク質は凝集体を形成していると考えられる。このことから、流体膜厚が十分に形成されず直接接触が支配的な低速度域では、せん断によるタンパク質の構造変化およびハイ

ドロゲル表面への凝着が生じることで、摩擦面内の凝着力が増加し摩擦が増大したと考えられる。そして、十分な流体膜厚が形成された高速度域では、潤滑液の粘性が支配的となり、精製水中と同程度の摩擦挙動になったと言える。

DPPC は試験溶液中にリポソームとして分散させている。先行研究により、リポソームの大きさは数百 nm ほどと報告されている^[3]。DPPC はせん断により展開させられたリポソームがハイドロゲル表面に吸着膜を形成することで摩擦を低減させたと考えられるが、この効果は protein 同様に、摩擦面間の流体膜厚に依存していると Fig. 3 から推察される。

HA に関しては、前述の通り一定の膜厚になると潤滑液の粘性が支配的になるため、高速度域で摩擦が低減したのは HA の増粘効果に由来すると言える。加えて、HA は 600 nm 以下でも低い摩擦係数を示すことが Fig. 3 から分かる。この領域では直接接触が生じていると考えられるため、HA には増粘効果に加え、境界潤滑域でも摩擦を低減させる効果を有することが示唆される。

5. 結言

本研究では、速度変化による高含水ハイドロゲルの摩擦挙動に対する関節液成分の影響を調査した。結果として、各関節液成分の効果は、潤滑液の粘性および成分の分子サイズと形成される流体膜厚によって、摩擦挙動に反映されることが明らかになった。

文献

- 1) J. P. Gong, Soft matter, 2 (2006), pp. 544-552
- 2) D Dowson, et al, Proc Instn Mech Engrs, Vol 208, 43-52, 1994
- 3) S. Yarimitsu, et al, Journal of Biomechanical Science and Engineering, Vol. 8, No.3, 2013

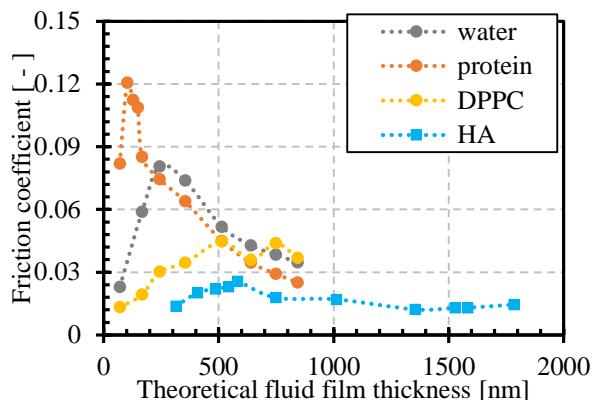


Fig. 3 The relation between friction coefficient and theoretical film thickness