

## Double Network Gel の超低摩擦と耐摩耗性に及ぼす溶液中有機分子の影響

### Effect of Organic Molecules in Solution on Ultra-Low Friction and Wear Resistance of Double Network Gel

東北大・工（院）\*多田 梢哉太 東北大・工（正）足立 幸志 東北大・工（正）村島 基之

Teita Tada, Koshi Adachi, Motoyuki Murashima

Tohoku University

#### 1. 結言

ダブルネットワークゲル（DN ゲル）は、その高含水性と高強度によりしゅう動部材として有望であり、生体材料などのバイオインターフェイスへの応用が期待されている。従来は水を含有した DN ゲルを水中摩擦させる研究が主であったため、水以外の物質を含有した DN ゲルを水以外の溶液中で摩擦させたときの摩擦係数への影響の解明が望まれる。

そこで本研究では、DN ゲル内外の溶液中に存在する有機分子が DN ゲルの超低摩擦と耐摩耗性に及ぼす影響を実験的に明らかにすることで、その潤滑機構の解明を目的とする。

#### 2. 実験方法

本研究では、ボールオンディスク試験機により摩擦を評価した。試験機の概略図を Fig. 1 に示す。第 1 ネットワークゲルとして 2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸、第 2 ネットワークとして N,N-ジメチルアクリルアミドを用いた DN ゲルシートを直径 10 mm、厚さ 3 mm の円板形状に切り出し自然乾燥によって内部の水分を蒸発させたものを液体中に 12 時間以上浸漬することで DN ゲル内にそれらの液体を含有させ、それを直径 8 mm の炭化ケイ素（SiC）ボールを覆うように治具に取り付けたものをボール試験片として用いた。含有させる液体は、精製水、乳酸  $10^{-5}$  M 水溶液、MRS、グリセリン 80 wt% 水溶液、グリセリン原液の 5 種である。ディスク試験片には SiC を用いた。荷重は 5 N、すべり速度は 100 mm/s、すべり距離は 30 m とし、ディスク上に液体を滴下し摩擦試験を実施した。滴下した液体は、精製水、乳酸  $10^{-5}$  M 水溶液、MRS、グリセリン 80 wt% 水溶液、グリセリン原液の 5 種である。なお、DN ゲルの SEM 像取得の際は t-ブタノール凍結置換法により処理した。

#### 3. 実験結果および考察

##### 3.1 DN ゲルの摩耗抑制に対する DN ゲル中有機分子の影響

精製水、乳酸水溶液および MRS 培地を含有させた DN ゲルを外部液体なしで摩擦させた際の摩擦係数の経時変化を Fig. 2 に、SiC ディスクに付着した DN ゲルの凝着物の光学顕微鏡像を Fig. 3 に示す。いずれの液体を包含させた場合においても摩擦係数 0.3 以上の高摩擦が継続した。また精製水を含有させた DN ゲルで摩擦した SiC ディスク上には移着物が認められた一方で、乳酸水溶液を包含させた DN ゲルを用いた際には移着物は認められなかつた。精製水を含有した DN ゲルを乳酸水溶液中で摩擦した後の SiC ディスク表面をフーリエ変換赤外分光分析した結果を Fig. 4 に示す。この図から、乳酸由来の C=O 伸縮振動の吸収スペクトルである  $1725-1700\text{ cm}^{-1}$  と C-O 伸縮運動の吸収スペクトルである  $1320-1211\text{ cm}^{-1}$  の範囲内においては変化がみられず、ディスク表面上に乳酸が吸着していないことがわかる。このことから、乳酸分子を含有した DN ゲルが SiC ディスク表面へ境界潤滑膜などを形成しているわけではなく、DN ゲルネットワーク中で摩耗を抑制する効果を発現している可能性が示された。

##### 3.2 DN ゲルの摩擦挙動に及ぼす DN ゲル含有物の影響

各種液体を含有した DN ゲルを用いて外部液体を精製水とした際の摩擦挙動を Fig. 5 に示す。いずれの DN ゲルにおいても初期

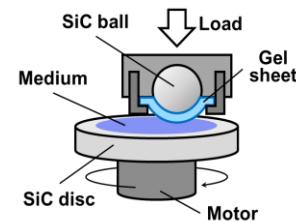


Fig. 1 Schematic diagram of testing machine for friction test.

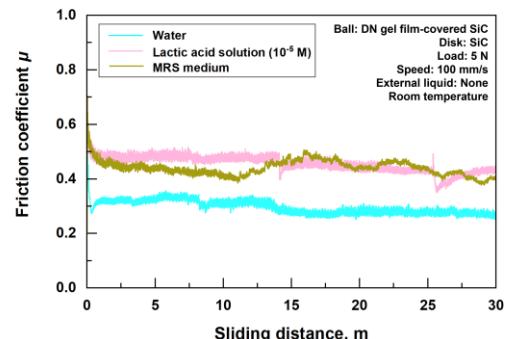


Fig. 2 Friction properties of two types of DN gel.

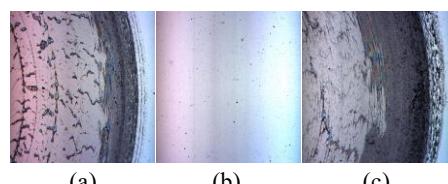


Fig. 3 Optical microscope images of adhesion on SiC disk fritated with (a) pure water-immersed DN gel, (b) lactic acid solution-immersed DN gel and (c) MRS medium-immersed DN gel.

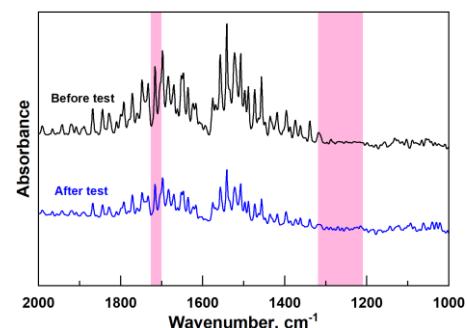


Fig. 4 Absorbance of fourier transform infrared spectroscopy analysis on SiC disk before/after friction test with lactic acid-immersed DN gel.

摩擦係数は 0.1 以上であったが、最終的には、精製水およびグリセロールを含有した DN ゲルは 0.1 程度の摩擦係数を示した一方で、乳酸水溶液や MRS を含有した DN ゲルは 0.02 以下の低摩擦を発現した。またいずれの条件下においても SiC ディスク上には DN ゲルの移着物は認められなかった。摩擦していない DN ゲルの SEM 像を Fig. 6 (a) に、摩擦後の DN ゲルの摩擦面の SEM 像を Fig. 6 (b) – (e) に示す。精製水を含有した DN ゲルを摩擦させると平滑な面が形成され、乳酸およびグリセリン原液を含有した DN ゲルにおいては初期表面からの変化が観察されず、また MRS 培地を含有した DN ゲルは 1~2  $\mu\text{m}$  以下の多数の pore が形成されることが明らかとなった。従来の研究によると、外部液体が精製水である場合においては適度な表面損傷が摩擦係数の低減に有効であることが示されている。これは、DN ゲル内部への給水作用やゲル内部から摩擦面への水分供給作用が、流体潤滑状態に遷移させるために有効であるためと考えられている。本実験条件においては、精製水含有状態で Fig. 6 (b) のような平滑面が形成されており、また摩擦係数も 0.1 程度の比較的高い摩擦係数を示していることから、流体潤滑状態にはないことが明らかである。ここにおいて、MRS 培地を外部液体として用いる場合には、Fig. 6 (e) のように表面に適度な損傷が発生し、また、摩擦係数も最大で 0.01 まで低減していることがわかる。従来の知見に照らし合わせれば、DN ゲル表面が適度に損傷することで、流体潤滑に移行した状態にあることが考えられる。そのため、ゲル内部に含有させる液体を変化させることで表面損傷を制御し、それとともに潤滑状態や摩擦係数が制御することが可能であることが示された。一方で、乳酸を含有させた場合には、摩擦係数は 0.02 まで低減するが、表面はほとんど初期のものと同じであり、明確な損傷は確認されなかった (Fig. 6 (d))。この乳酸含有 DN ゲルが摩耗しないという現象は、Fig. 3 (b) で得られた結果と類似している。水を含有および外部液体としていた従来の研究では、表面損傷が観察されないような状況での低摩擦は観察されなかつたが、本研究では、含有液体を制御することで、表面損傷がなくとも同じ摩擦試験条件において摩擦係数を低減させることができることが示された。

### 3.3 DN ゲルの摩擦挙動に及ぼす DN ゲル外部の液体の影響

Fig. 7 は含有液体および外部液体を変化させた時の最終摩擦係数を網羅的に示した図である。概ね 100 mPa·s までは、外部液体の粘度が高くなるにつれて摩擦が低減する傾向にある。また、グリセリン 80 wt% 水溶液を外部液体として用いた場合には摩擦係数が 0.01 以下を示すため、外部液体の粘度上昇が流体潤滑状態への遷移を促していることが示された。一方で、外部液体がグリセリン 80 wt% 条件を除いて、乳酸含有 DN ゲルが各外部液体条件において最も小さい摩擦係数を示すグループに属することが明らかとなった。このことから、従来考えられてきた表面損傷による流体潤滑状態への移行という DN ゲルの低摩擦メカニズム以外にも、Fig. 3 (b) で示されたような DN ゲルの初期表面を維持する含有液体の効果により、流体潤滑への遷移を促すことで超低摩擦を発現させることができることが明らかとなった。

## 4. 結言

1. 乳酸含有 DN ゲルを SiC と摩擦させたとき、外部液体が無い条件では、相手面への凝着が抑制されることが明らかとなった。また、外部液体を精製水とした場合には摩擦係数 0.02 以下の低摩擦を示すことが明らかとなった。
2. MRS 培地を外部液体として用いた場合、表面に適度な損傷が発生し、摩擦係数も最大で 0.01 まで低減した。
3. 外部液体がグリセリン 80 wt% 以外の条件において、乳酸含有 DN ゲルが最も小さい摩擦係数を示すグループに属することが明らかとなった。

## 文献

- 1) R. Zhang, F. Ning, X. Hu, J. Zhen, B. Ge, Z. Jia, Bionic layered hydrogel with high strength for excellent lubrication and load capacity, *Journal of Applied Polymer Science*, 141, 33 (2024).
- 2) Koki Kanda, Koshi Adachi, Running-in of a Double Network Gel for Low Friction in Water, 16, 3 (2021) 170-177.

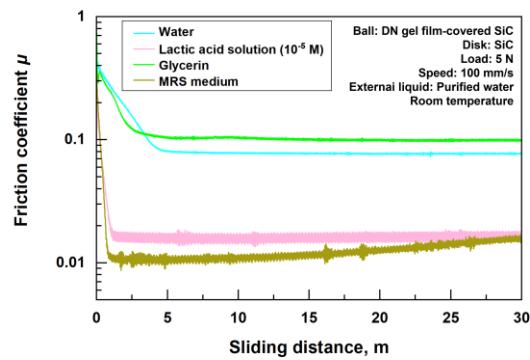


Fig. 5 Friction properties of DN gel immersed in water, glycerin and lactic acid solution.

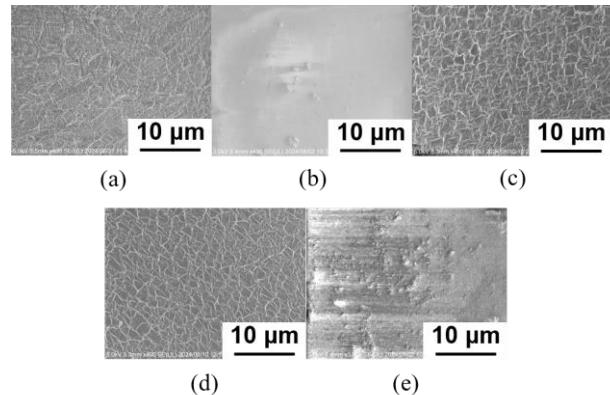


Fig. 6 Surface of DN gel (a) before, (b) – (e) after friction test. (b) water-immersed, (c) glycerin-immersed, (d) lactic acid solution-immersed, (e) MRS-immersed DN gel.

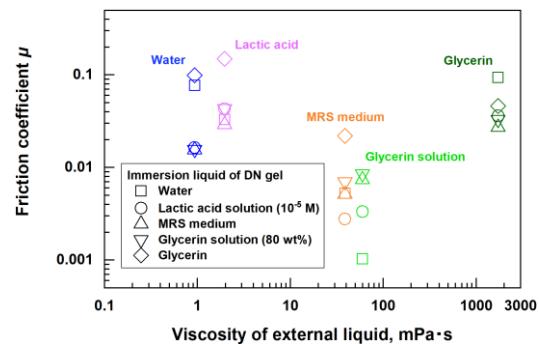


Fig. 7 Friction properties and viscosity of immersed liquid lubricated by water, lactic acid solution, glycerin solution (80 wt%) and glycerin. Color means external liquid and shape means liquid immersed in DN gel