

# 階層構造ハイドロゲルの潤滑特性に関する研究

## Lubrication Properties of Layered Hydrogels

九大・工（学）\*和田 晴翔 九大・工（学）吉田 弘一郎 九大・工（正）新盛 弘法

九大・工（正）鎗光 清道 九大・工（正）澤江 義則

Haruto Wada, Koichiro Yoshida, Hironori Shinmori, Seido Yarimitsu, Yoshinori Sawae

Kyushu University

### 1. 緒言

生体の関節軟骨は体重の数倍程度の大きな荷重を支えながら卓越した潤滑機能を発揮することが可能であり、そのメカニズムを解明するために様々なアプローチから研究が行われている。軟骨は 70~80 %の水分と、コラーゲン繊維やプロテオグリカン等の細胞外基質、軟骨細胞からなる高含水性軟組織で構成されている。関節軟骨のコラーゲン繊維の配向やプロテオグリカン濃度は深さや部位によって異なり、その構造や分布から一般的に表層、中間層、深層の3層に識別される<sup>1)</sup>。関節軟骨は関節の荷重支持能力と低摩擦特性を実現するために重要な役割を担っていると考えられるが、関節軟骨の階層構造と摩擦特性の関連について詳細は明らかになっていない。関節軟骨の階層構造が摩擦特性に与える影響を検証するにあたり、生体由来の関節軟骨を用いる場合、個体差や採取後の変性、劣化などが実験結果に影響を与える懸念がある。そこで、本研究では軟骨と類似した物性を有するポリビニルアルコール(Poly(vinyl alcohol):PVA)ハイドロゲルにより階層構造を有するハイドロゲルを作製し、階層構造と摩擦特性の関連を検討することとした。上層側の弾性率が低いという軟骨の特徴に着目し<sup>4)</sup>、軟骨と同様に上層側の弾性率が低い階層構造ハイドロゲルを作製した。そして、その上層厚さを変化させ、階層構造の有無および軟質上層の厚さが摩擦特性に及ぼす影響について検討した。

### 2. 実験方法

#### 2.1 試験片作製

本研究では、PVA ハイドロゲルの作製法としてキャストドライ法を採用した。キャストドライ法により作製したPVA ハイドロゲル (CD ゲル) は、軟骨と同等の透水性を持たせることが可能であり<sup>2)</sup>、作製時の温度や湿度を変化させることで様々な物性を有するゲルを作製することができる<sup>3)</sup>。本研究では、平均重合度 1,700, けん化度 98.0~99.0 mol% の PVA 粉末 (28-98, 株式会社クラレ) を用いた。直径 90 mm のポリスチレンシャーレに 15 wt%PVA 水溶液を 30 g 流し込み、60°C, 80 %PH の環境下で 1 日乾燥処理を施し、階層ゲルの下層を作製した。その後、この層の上から新たに 15 wt%PVA 水溶液を流し込み、8°C, 50 %RH の環境下で乾燥させ、上層を作製した。なお、上層仕込み用の PVA 水溶液量は、30, 15, 7.5 g の 3 条件を設定した。また、15 wt%PVA 水溶液 30 g を 8°C, 50 %RH 環境下で乾燥させて作製した単層ゲルを比較対象として準備した。以降の図中では、各サンプルを示す際に TL-○ (△;□) (○; サンプルの番号, △; 下層の仕込み量, □; 上層の仕込み量) と表記する。また、単層ゲルについては下層にあたるものを SL-L, 上層にあたるものを SL-U と表記する。

#### 2.2 往復動摩擦試験

往復動摩擦試験には摩擦摩耗試験機 (トライボギア Type38, 新東科学株式会社) を用いた。TL-1~3, SL-U の各サンプルの試験片を用意し、円筒状の金属にシアノアクリレート系瞬間接着剤 (アロンアルファ, 東亜合成株式会社) で接着した。スライドガラスをバス内に固定し、潤滑液である純水をバス内に注いだ。そして、2.94 N の荷重を付与してゲル試験片をスライドガラスに接触させ、10 秒後に往復動を開始した。摩擦速度は 10 mm/s, 往復動ストロークは 15 mm, 総摩擦距離は 6.0 m で行った。試験は全て室温環境で行った (Fig. 1)。

#### 2.3 応力緩和試験

応力緩和試験により透水率の推定を行った。試験機として卓上形精密万能試験機 (AGX-X, SHIMAZU) を用いた。10 × 20 mm の単層ゲルシートを純水中に設置し、直径 30 mm のアルミニウム合金製円柱圧子を、圧縮ひずみが 0.3 に達するまで降下し、6 時間保持した (Fig. 2 (a))。得られた試験結果に Yamaguchi らの提唱した数値モデル<sup>5)</sup>をフィッティングすることにより透水率を算出した。

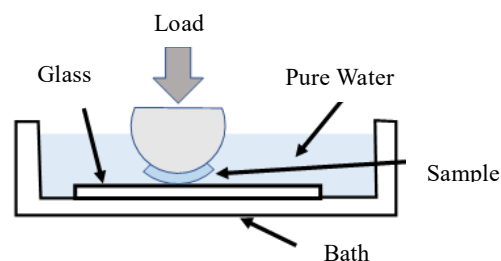


Fig. 1 Schematic image of friction test

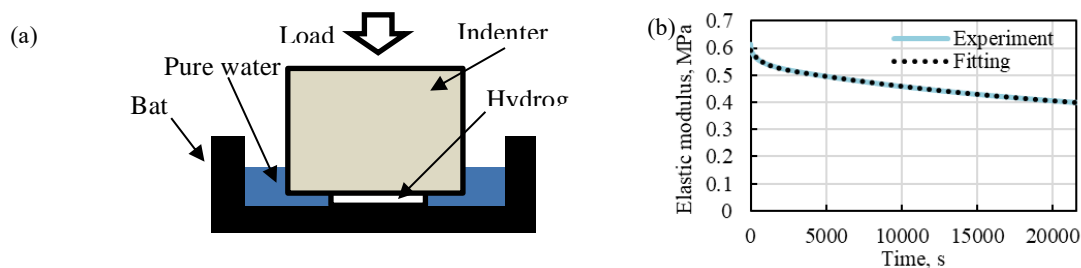


Fig. 2 Estimation of permeability of hydrogels; (a) Schematic image of stress relaxation test, (b) Fitting of experimental and theoretical curve

### 3. 実験結果

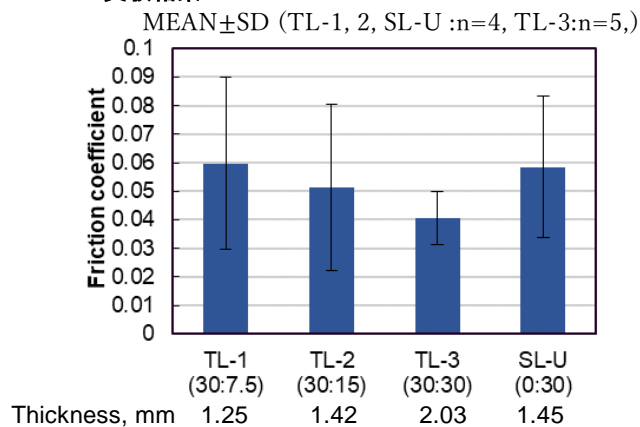


Fig. 3 Friction coefficient of hydrogels

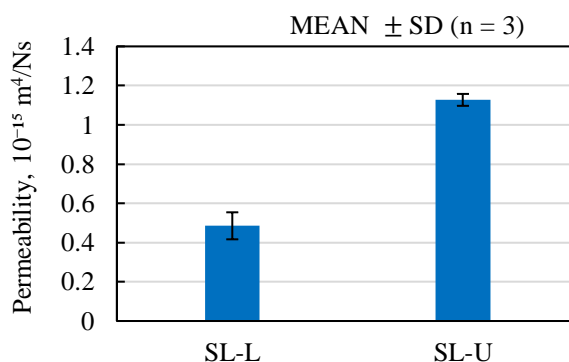


Fig. 4 Permeability of SL-L and SL-U

階層ゲルである TL-1~3 を比較すると上層が厚いほど動摩擦係数が低くなるという傾向がみられた。また単層ゲルの SL-U と階層ゲルである TL-1~3 を比較すると TL-2, 3 は SL-U よりも低くなったが、TL-1 と SL-U の摩擦係数は同程度であった。SL-L, SL-U の透水率は、軟質の上層である SL-L のほうが 2 倍程度大きかった (Fig. 4)。

### 4. 考察

同等のゲル厚さである TL-2 と SL-U は TL-2 のほうが平均値は約 12 % 低くなった。階層構造ゲルの先行研究において吉田らは、上層の軟質層は剛性のより高い下層に側方への変形を抑制され、水分が側方へと逃げにくくなる結果、液相による荷重支持割合が高くなり低摩擦となる可能性を示した<sup>9)</sup>。本研究で確認された TL-2 と SL-U の摩擦係数の相違は同様の原因に加え、透水率の低い下層があることで下層側への水分流出が抑制され、固液二相潤滑効果が高まり、摩擦が低減したと考えられる。階層構造ゲルの軟質上層の厚さの違いに着目すると、軟質上層が薄いほうが高摩擦となった。軟質上層が薄い場合、下層に拘束されることにより剛性が高まり接触面積が小さくなる、すなわち接触面圧が増加する。先述の吉田らの検討はゲルの摩擦接触域が移動する条件であったが、本研究のような接触域の移動しない条件では接触面圧が高まり周囲との圧力差が大きくなった結果、ゲル内部の水分が接触域外に流出しやすくなり、固液二相潤滑の効果が低下して摩擦が高くなったと推察される。

### 5. 結言

本研究では、軟骨の潤滑機能における階層構造の役割の解明を目的とし、実際の軟骨の特徴に着目し、上層側の弾性率が低い階層構造ハイドロゲルを作製した。そしてその上層厚さを変化させ、階層構造の有無および軟質上層の厚さが摩擦特性に及ぼす影響について検討した。その結果、弾性率の低い上層の厚みの違いや階層構造の有無が、摩擦特性に影響を及ぼすことが示唆された。

### 文献

- 1) Pearle, A.D. et al., "Basic Science of Articular Cartilage and Osteoarthritis", Clinics in Sports Medicine, Vol. 24, No.1(2005),
- 2) Yarimitsu, S. et al., "Influence of Dehydration by Pre-loading on Tribological Property of Hydrogel Artificial Cartilage and Articular Cartilage", Proc. 6th World Tribology Congress (2017).
- 3) Otsuka, E. et al., "Effects of Preparation Temperature on Swelling and Mechanical Properties of PVA Cast Gels", Soft Matter, Vol. 8 (2012), pp.8129-8136
- 4) T. Murakami et al. : Depth-Dependent Compressive Behaviors of Articular Cartilage and Chondrocytes, Biomechanics at Micro-and Nanoscale Levels, IV (2007) 36.
- 5) Yamaguchi T, Sato R, Sawae Y. Propagation of Fatigue Cracks in Friction of Brittle Hydrogels. Gels. 2018; 4(2):53.
- 6) 吉田, 鎗光, 澤江, ハイドロゲルの階層化が摩擦特性に及ぼす影響, 2023 年度日本機械学会年次大会予稿集 (2023),