

令和 6 年 6 月 6 日現在

機関番号：12701

研究種目：若手研究

研究期間：2022～2023

課題番号：22K14169

研究課題名（和文）超分子のホスト-ゲスト相互作用による自己修復-超低摩擦型トライボシステムの創製

研究課題名（英文）Self-healing and ultra-low friction tribo-systems through supramolecular host-guest interactions

研究代表者

大久保 光 (Okubo, Hikaru)

横浜国立大学・大学院環境情報研究院・助教

研究者番号：50906352

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、超分子材料とりわけホスト-ゲスト相互作用自己修復ゲルに着眼し研究を進めた。作製した超分子ゲルは、刃物により切断した場合においても、切断面を接触させることで、即座に切断面は自己修復した。また、ゲルのトライボロジー特性及び摩擦場における自己修復能を確認した。創製した自己修復ゲルは、摺動初期において超低摩擦性を発現した。また、予め摩擦面中心を切断した状態で摩擦実験を実施した場合、弾性変形に伴うゲルの形状変化により、切断部分が接触する事で、摩擦場にて切断面は自律的に修復することが確認された。従って、超分子ゲルは「超低摩擦性」と「自己修復性」を兼備した次世代材料として期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

生体材料の代替材料として期待される「ハイドロゲル」は、その優れたトライボロジー特性から「人工関節」への応用が期待されている。しかし、ハイドロゲルは耐久性に乏しく、応用に際しては種々の課題がある。本研究では、損傷面の自己修復を可能とする「超分子ゲル」に着眼し、そのトライボロジー応用すなわち「人工関節」への応用を見え据えて、超分子ゲルの「摩擦特性」と「自己修復性」を確認した。その結果、超分子ゲルは、ある特定の摩擦場において「超低摩擦性」を発現し、予め付与した損傷は摩擦時の弾性変形により自己修復可能であることを見出した。このことは、超分子ゲルの生体材料応用を加速させるブレイクスルーとなり得る。

研究成果の概要（英文）：In this study, we focused on supramolecular materials, especially host-guest interaction self-healing gels. The prepared supramolecular gels self-repaired immediately after contact with the cut surface, even when the cut surface was cut by a blade. The tribological properties of the gels and their self-healing ability during friction were also confirmed. The self-healing gel exhibited ultra-low friction in the initial stage of sliding. When friction experiments were conducted with the center of the friction surface cut off in advance, it was confirmed that the cut surface was self-repairing during friction by contacting the cut portion due to the shape change of the gel caused by elastic deformation. Therefore, supramolecular gels are expected to be next-generation materials with both "ultra-low friction" and "self-healing" properties.

研究分野：トライボロジー

キーワード：超分子 トライボロジー 超低摩擦 自己修復

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

生物の筋骨格系の滑らかな運動を実現する生体関節は、過酷な摺動状態に置かれながらも、生体の寿命程度の長期間の運転時間を、表向きは「メンテナンスフリー」で作動する。これは、生体関節が「超低摩擦特性」を有した「ソフトマター」で構成されるばかりでなく、仮に軽度の損傷が生じた場合でも、そのような損傷を「自己修復」する機能をシステムとして有するからである。このような生体特有の自己修復機能を人工物に持たせ、「メンテナンスフリーな機械摺動面」を実現することは、トライボロジーの究極の目標の一つといえる。

近年、分子間の相互作用を利用した化学的手法による自己修復材料開発の進展が著しい。中でも、ホスト分子であるシクロデキストリン (CD) と様々なゲスト分子の組み合わせにより発現する超分子 (非共有結合相互作用で結びつけられた分子群) の「ホスト-ゲスト相互作用」すなわち「分子間の認識機能」を利用した自己修復超分子ゲル・エラストマは、損傷界面においてホスト分子とゲスト分子が「包接錯体 (アセンブリ)」を可逆的に形成する事で、際限のない自己修復を実現する。この自己修復超分子材料は、特別なトリガーなしに損傷部が接触することで即時修復が可能であり、広範な応用が期待されている。しかしながら、現在まで、自己修復超分子材料が機械要素とりわけ過酷な運転条件での使用が想定される摺動機械要素への応用が学術的に検討された事例はない。このことは一方で、自己修復超分子材料の摺動機械要素への応用が実現すれば、「自己修復機能を有したトライボロジーシステムの構築」を加速させるブレイクスルーと成り得る。

2. 研究の目的

自己修復超分子材料の摩擦材料への応用を考えた場合、超分子の摩擦場におけるトライボロジー現象・自己修復機構の把握やホスト-ゲスト相互作用を積極的に利用したトライボロジー特性制御のための材料の再設計・再構築・手法開拓が必要不可欠となる。本研究では、自己修復性超分子ゲル・エラストマの摩擦場における自己修復性及びその潤滑性能を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、自律的な自己修復を可能とする「超分子のホスト-ゲスト相互作用自己修復ゲル」に着眼し、その検討を実施した。自己修復超分子ゲルは、ホスト分子修飾モノマーとゲスト分子修飾モノマーの包接錯体を架橋ユニットとして導入し重合することで、超分子ゲルを調整した。

摩擦試験機は一般的な「ボール・オン・ディスク型摩擦試験機」を用いて、種々の負荷荷重・摺動速度で実験を実施した。摩擦材料には完全膨潤状態の超分子ゲルと SUS316 球を使用した。

また、上述の摩擦試験機とは別に、超分子ゲルの潤滑機構を解明することを目的として、摩擦場における「界面厚み」・「分子情報」・「粘弾性情報」をそれぞれ同時に取得可能な「摩擦場のその場計測装置」の構築を試みた。

4. 研究成果

(1) 自己修復ゲルの創製

本研究では、自律的な自己修復を可能とする「超分子のホスト-ゲスト相互作用自己修復ゲル」に着眼し、その検討を実施した。創製したゲルの外観と自己修復能を図 1 に示す。図 1 に示すようなゲル成型体を作製し、その自己修復能を確認した。ゲル成型体の一部を切断し、直後に切断面を接触させた場合、即座に自己修復した。従って、本自己修復ゲルを用いて研究を進めた。

(2) 自己修復ゲルの創製

図 2 に本研究での摩擦試験形態及び創製した自己修復材料のトライボロジー特性を示す。本研究では、ボール・オン・ディスク試験により、その摩擦特性を評価した。本研究で創製した自己修復ゲルは、摺動初期において超低摩擦性 (摩擦係数: 0.01 以下) を発現した。一方、潤滑剤の「水」が乾く事で、徐々に摩擦係数は上昇した。また、摩擦場における自己修復能を確認するため、予め摩擦面に切断点を設けた「予き裂付与摩擦試験」を実施した。図 3 に摩擦前後の予き裂周辺の顕微鏡画像とその断面プロファイルを示す。図 3 より、摩擦面中心に付与した予き裂は、

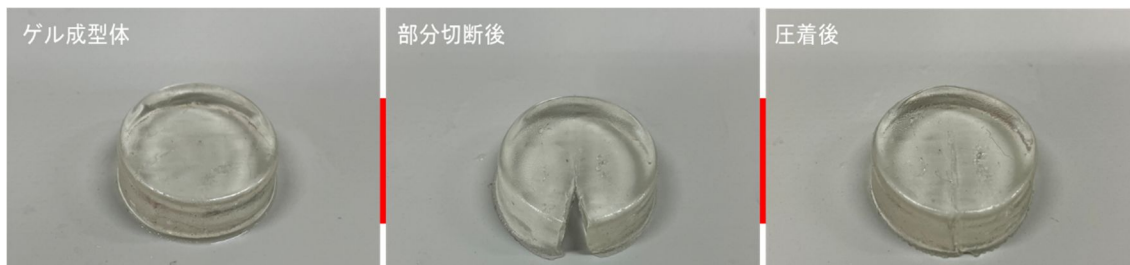


図 1 超分子ゲルの外観と自己修復能

摩擦試験後、その傷口は修復した。これは、摩擦時の弾性変形に伴うゲルの形状変化により、切断部分が接触する事で、摩擦場にて切断面が自律的に修復したものと推察される。

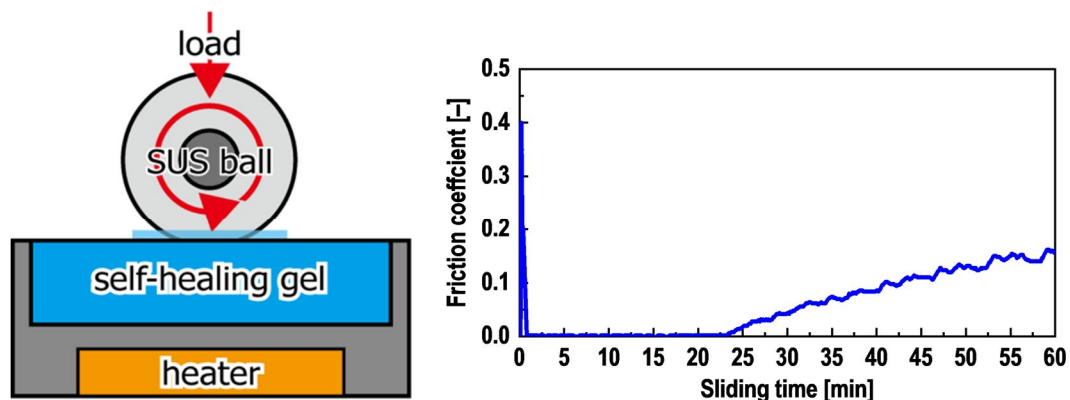


図 2 摩擦試験形態の概要図と超分子ゲルの摩擦特性

(3) 超分子材料のためのマルチモーダルオペランド計測装置の開発

超分子ゲルの自己修復性・分子動態を把握可能なその場計測装置：マルチモーダルオペランド計測装置を開発した。図 5 に開発した装置の外観図及び概要図を示す。本装置は、「力学情報 (sub-mm)」、「潤滑油膜情報 (sub- μm)」、「固液界面情報 ($\sim \text{nm}$)」の「その場同時計測」を実現可能な装置である。ピエゾステージへの正弦波加振信号の印加により、摩擦界面の粘弾性計測を実施すると共に、レーザー走査型 Raman 計測装置により分子動態の時空間分布を計測可能である。今後は、本装置の運用により、超分子ゲルの潤滑機構と自己修復機構を解明する。

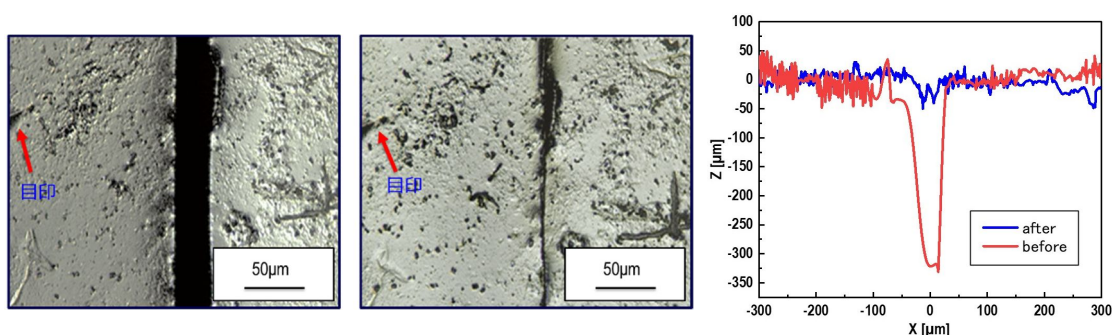


図 3 予き裂付近の摩擦前後の顕微鏡画像とその断面プロファイル

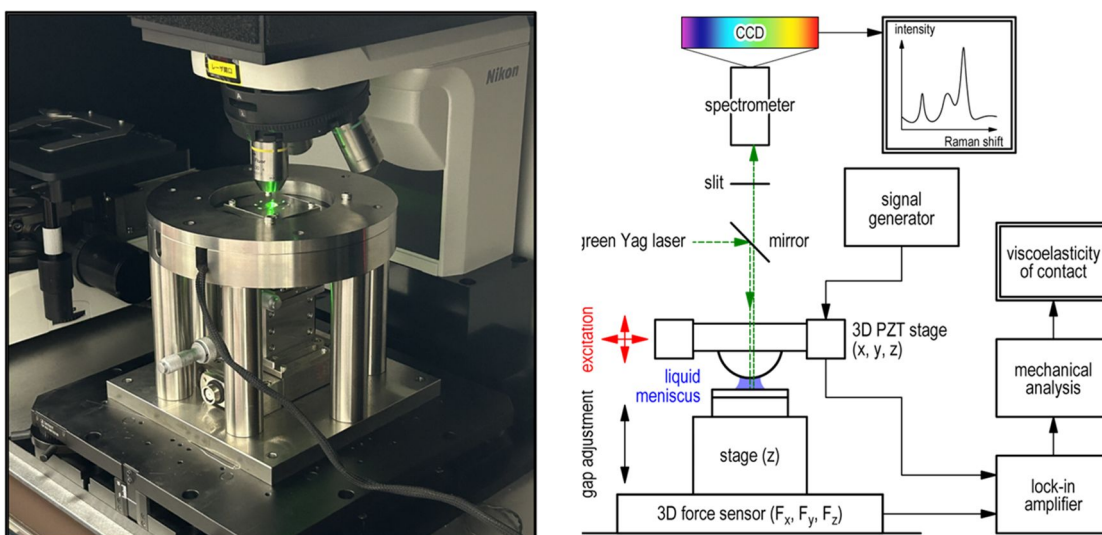


図 4 マルチモーダルオペランド計測装置

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 0件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Okubo Hikaru, Kagiwata Daiki, Nakano Ken, Tsujii Yoshinobu	4. 巻 39
2. 論文標題 Layered Structure and Wear Mechanism of Concentrated Polymer Brushes	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 18458 ~ 18465
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.3c02751	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Okubo Hikaru, Kagiwata Daiki, Sasaki Shinya, Tsujii Yoshinobu, Nakano Ken	4. 巻 127
2. 論文標題 Operando tribo-Raman spectroscopic observation for wear processes of superlow frictional concentrated polymer brushes at frictional interface	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Polymer Testing	6. 最初と最後の頁 108170 ~ 108170
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.polymertesting.2023.108170	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Okubo Hikaru, Hashiba Hiromi, Inamochi Toru, Sato Kaisei, Sasaki Shinya, Yamada Kazushi, Nakano Ken	4. 巻 71
2. 論文標題 Novel Environmentally Superior Tribomaterial with Superlow Friction: 100% Cellulose Nanofiber Molding	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Tribology Letters	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11249-023-01754-z	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Hikaru Okubo
2. 発表標題 Operando-Raman Observation for Frictional Interface Structure of Concentrated Polymer Brushes
3. 学会等名 International Tribology Conference, Fukuoka 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 大久保 光
2. 発表標題 濃厚ポリマーブラシの固液界面構造と潤滑機構
3. 学会等名 第22回境界潤滑研究会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 大久保 光
2. 発表標題 超潤滑性SRT 材料の潤滑機構と新たな環境適合型SRT 材料の提案
3. 学会等名 東海トライボロジー研究会（第113回）（招待講演）
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関