

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 9 日現在

機関番号：11501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2011

課題番号：22656041

研究課題名（和文）全反射光学系によるソフト&ウェット界面の in-situ 観察法の開発

研究課題名（英文）In-situ observation of soft and wet interface via total reflection

研究代表者 古川 英光 (FURUKAWA HIDEMITSU)

山形大学・大学院理工学研究科・准教授

研究者番号：50282827

研究成果の概要（和文）：

全反射プリズムと回転型レオメーターを組み合わせることにより、ゲル-ガラス摩擦界面の in-situ 観察を可能にする観察装置の開発を行った。開発した観察装置を利用し、ゲルの表面摩擦現象における潤滑層形成の様子を直接観察に成功した。さらに、ゲル表面の物性（弾性率や表面ラフネス）を変化させることにより、潤滑層形成がどのように変化するかを調べた。ゲルの厚さによって潤滑層の形成過程に違いが見られた。

研究成果の概要（英文）：

By combination of a total reflection prism and a rotary rheometer, we developed a novel apparatus for the in-situ observation of the frictional interface between gel and glass. By using the apparatus, the formation process of the lubrication layer under gel frictional phenomena was successfully observed. Further, by altering the surface properties of gels (elastic modulus and surface roughness), the change in the lubrication layer was studied. The formation process of the lubrication layer depends on the thickness of gels.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,700,000	0	1,700,000
2011 年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,100,000	420,000	3,520,000

研究分野：工学

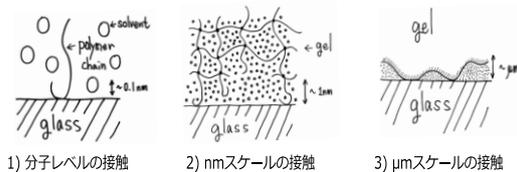
科研費の分科・細目：機械工学、設計工学・機械機能要素・トライボロジー

キーワード：ゲル、摩擦、全反射、PVA、界面、接触、薄膜干渉流動画像法、乱流

1. 研究開始当初の背景

生体内に存在する組織の多くは、ソフト&ウェットマターであるゲルで構成されている。そのひとつ、関節軟骨は骨同士の摩擦を大きく低減し、滑らかな運動を可能にしている。ソフトでウェットな軟骨組織はどのような戦略で界面における表面摩擦をかくも巧みに低減しているのだろうか？連携研究者

の龔は、世界に先駆けて、ゲルの摩擦実験を系統的に行い、ソフト&ウェットな界面に特有な表面摩擦現象を見出してきた[J. P. Gong, *Soft Matter*, 6, 1 (2006)]。ソフト&ウェットな界面における摩擦現象が、固体基板同士の摩擦と大きく異なる点の一つとして、例えばゲルとガラス基板の間の摩擦現象を考えると、異なる空間スケールにおける多様な接触



ソフト&ウェットな界面における階層的な接触構造

構造が考えられる（上図）：

- 1) ゲル表面の高分子鎖がガラス基板の表面に分子レベルで物理吸着し、吸着の寿命が支配的な領域。高分子鎖や基板表面の化学構造が強く効果を及ぼすと考えられる分子レベルの接触構造。
- 2) ゲル表面の数 nm～数十 nm の網目サイズによる凹凸により、nm スケールの疎密をもってゲル表面とガラス基板が接触している領域。ゲルの網目構造の不均一性が強く影響を及ぼすと考えられるナノやサブミクロンスケールのメゾスコピックな接触構造。
- 3) ゲル表面や摩擦相手基板の μm の凹凸により、ミクロンスケールの疎密をもって、ゲル表面とガラス基板が接触している領域。流体潤滑層形成に強く影響を及ぼすと考えられるマクロな接触構造。

ソフト&ウェットな界面における摩擦現象の特徴的は、まさにこのような階層的な接触構造が、階層を越えて相互に関わり合いながら多様な摩擦挙動を生み出しているということである。そして分子レベルの接触構造だけに注目するのではなく、メゾスコピックやマクロスコピックな接触構造にも同時に網羅的に注目することがソフト&ウェットな界面における摩擦挙動を理解する上で非常に重要であるという着想に至った。

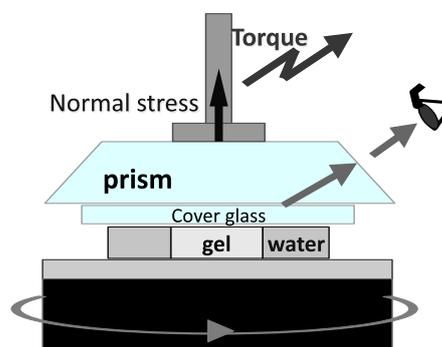
2. 研究の目的

ゲルの表面摩擦は、摩擦係数にすると 0.0001 という驚異的な低摩擦を実現している。前述の用にこれまでの一連の研究成果から、ゲルのようなソフト&ウェットな界面における摩擦現象には、分子レベルの接触構造に加え、ナノやサブミクロンスケールのメゾスコピックな接触構造、さらに mm スケールにおよぶマクロな接触構造までもが強く関係していることがわかってきた。申請者らはソフト&ウェットな界面であるからこそ、分子レベルの接触構造だけに注目するのではなく、メゾやマクロの接触構造にも同時に網羅的に注目することが驚異的な低摩擦挙動の全容を理解する上で非常に重要であると考える。そこで本研究では、「メゾ・マクロスケールでソフト&ウェット摩擦界面を直接観察する」ことを目的として、全反射光学系を活用した世界初の観察装置を開発し、その装置を適用する最初の研究対象として、ゲルの摩擦挙動において高い摩擦速度領域に

おける流体潤滑形成プロセスを直接観察することを旨す。

3. 研究の方法

ゲルとガラス基板における摩擦挙動においては、ガラス基板の親水性と疎水性の違いが、潤滑層形成に大きな影響を与えるという知見が得られている。しかし、潤滑層形成を直接観察した例はなく、推測の域を出ない。したがって、基板の違いによる潤滑層形成の様子を直接観察することが非常に重要である。そこで、全反射プリズムと回転型レオメーターを組み合わせることにより、ゲル-ガラス摩擦界面の in-situ 観察を可能にする世界初のシステムの開発を行う（下図）。



光学プリズムと回転式レオメーターを組み合わせ、ソフト&ウェットな界面を直接観察する新装置。

具体的には下記の項目を実施する。

- 1) 全反射プリズムの設計と作製
全反射によるゲルとガラス基板の接触を直接測定するため、ガラス基板としての役割を備えた台形プリズムを設計する。設計に基づいて台形プリズムを試作し、実際にゲルとガラス基板の接触の観察を試しながら、最適なプリズムを作製する。
- 2) in-situ 観察用の全反射光学系の設計と構築

前項 1) の台形プリズムの試作と平行して光学系の設計と構築を行う。摩擦をさせながら界面を観察するため、ゲルとガラス基板の摩擦測定に適したレオメーターに、台形プリズムを取り付ける。その状態で、ゲルとガラス基板の接触を直接測定するために、適した照明法や、CCD カメラの設置位置、適したレンズの選択を行う。

3) 摩擦測定用ゲルの調製

これまでの研究成果により、ゲルの種類を変えるとゲルとガラス基板の間の相互作用が変化するため、それによって摩擦挙動が大きく変化することが分かっている。ゲルの調製条件を系統的に広く変えて、たくさんのゲルを調製し、摩擦測定と全反射光学系による in-situ 観察の両方に適した都合の良いゲル試料を作製する。

4) ゲル摩擦界面の in-situ 観察 - 流体潤滑層形成の直接観察

上記の 1)~3) がおよそ上手く行ったところで、実際に摩擦をさせながら、接触面の観察を試みる。特に最初のターゲットとしては、摩擦速度の変化による接触面の変化の in-situ 観察に挑戦する。ゲルとガラス基板の摩擦界面を直接観察した例は、申請者の知る限り全く報告例がなく、これを達成することで、非常に大きな研究成果になる。

5) 摩擦相手ガラス基板の交換を可能にする
ガラス基板の親水性/疎水性を変化させるために、観察用の台形プリズムの表面に薄いガラス基板(カバーガラス)を貼付けて、摩擦基板とすることで、摩擦相手ガラス基板の交換を可能にすることを検討する。

6) 親水性/疎水性基板の作成と接触角の評価

前項 6) が上手く行き始めたら、親水性/疎水性を制御したガラス基板を作製する。作製した基板表面については接触角を測定し、ガラス基板表面を再現性良く作製する方法を確立する。

7) ゲル摩擦界面の直接観察 - プリズムの位置変化への追従

ゲルとガラス基板の摩擦においてはさまざまな観察条件によってプリズムの上下方向の位置が変化することになる。この位置変化に追従できるようにする機構を装置に導入する。この機構の導入により、観察条件を広く変えても正確に摩擦界面の直接観察をすることが可能になる。

8) 弾性率を変えたゲルの調製とゲル摩擦界面の直接観察

これまでの研究成果から、ゲルの弾性率を変化させることで、ゲルとガラス基板表面の有効な接触面積を制御できるという知見が得られている。さまざまな硬さをもつゲルを調製し、ゲル摩擦界面の直接観察を試みる。

9) 表面ラフネスを変えたゲルの調製とゲル摩擦界面の直接観察

ゲルとガラス基板表面の有効な接触面積を制御するもう一つの方法として、ゲル表面のラフネス(表面粗さ)を変える方法が考えられる。ラフネスを変化させて、ゲルの摩擦界面の直接測定を試みる。

4. 研究成果

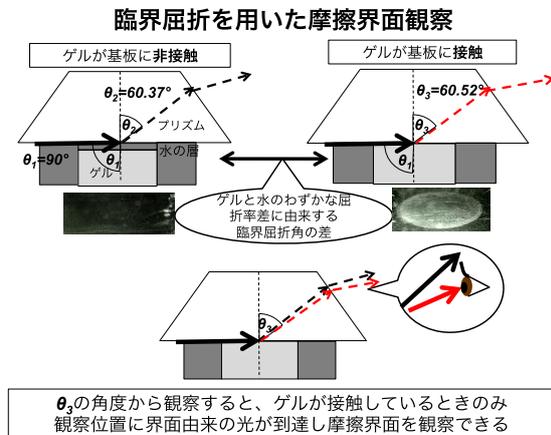
平成22年度は、全反射プリズムと回転型レオメーターを組み合わせることにより、ゲル-ガラス摩擦界面の in-situ 観察を可能にする観察装置の開発を行った。

具体的には下記の項目を実施した。

1) 全反射プリズムの設計と作製

全反射によるゲルとガラス基板の接触を直接測定するため、ガラス基板としての役割を備えた台形プリズムを設計した(材質BK-7、

厚さ22mm、底角70°、底面66mm角)。設計に基づいて台形プリズムを試作し、ゲルとガラス基板の接触の様子を全反射条件近傍で明確に観察できることを確認した(下図)。



2) in-situ観察用の全反射光学系の設計と構築

ゲルとガラス基板の摩擦測定に適したレオメーターとしてARES-2を選択した。円形のLED照明を検討したが、結果的には一方向からの照明が適していることを確認した。高感度白黒CCDカメラを選択し、全反射光学系を構築した。

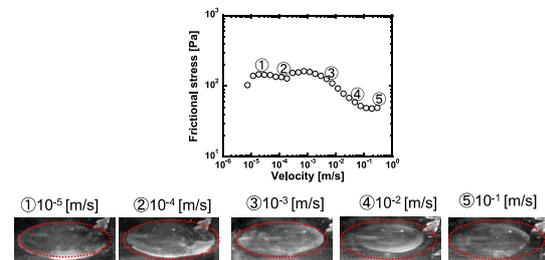
3) 摩擦測定用ゲルの調製

さまざまなゲルを検討し、適度な均一性、透明度と弾性率から、10wt%のPVA物理架橋ゲルを選択した。

4) ゲル摩擦界面の in-situ 観察 - 流体潤滑層形成の直接観察

厚さ2.4mmのPVAゲルを用いたところ、7.6 μ ~ 0.29m/sの摩擦速度範囲で摩擦界面の観察に成功した(下図)。

厚さ2.4mmのPVAゲルの親水性ガラス基板に対する摩擦抵抗力の速度依存性



また、ゲルとガラスの界面に形成される薄い液体層の挙動を調べる為に共焦点レーザー顕微鏡による界面観察を検討した(学会発表③)。さらに、薄膜干渉流動画像法(FIFI)の装置を試作し、高分子添加が薄い液体層に

生じる乱流を抑制する効果があることを観察した（雑誌論文①）。

平成23年度は、前年度に開発した観察装置を利用し、ゲルの表面摩擦現象における潤滑層形成の様子を直接観察した。また、ゲル表面の物性（弾性率や表面ラフネス）を変化させることにより、潤滑層形成がどのように変化するかを調べることにより、広範な知見を得ることを目指す。具体的には下記の項目を実施した。

5) ガラス基板の親水性/疎水性を変化させるために、観察用の台形プリズムの表面に薄いガラス基板（カバーガラス）を貼付けて、摩擦基板とすることで、摩擦相手ガラス基板の交換を可能にできる機構を観察装置に組み込んだ。

6) シランカップリング剤を用いて、親水性/疎水性を制御したガラス基板を作製した。接触角の測定により、再現性良く作製する方法を確立した。

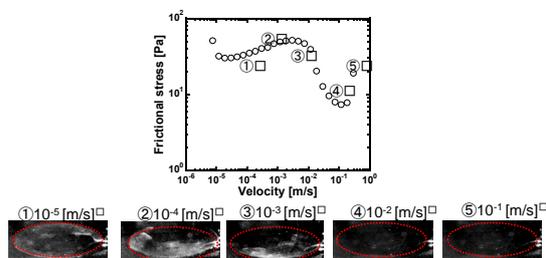
7) 観察条件によりプリズムの上下方向の位置が変化しても追従できる機構を開発した。

8) PVAとポリアクリルアミドゲルについて、濃度や架橋剤の量を変えて、異なる表面硬さをもつゲルを調製し、ゲル摩擦界面を直接観察した。表面硬さの違いにより潤滑層形成が始まる摩擦速度が異なることが観察された。

9) ゲル表面のラフネス（表面粗さ）を変える方法として、磨りガラス・サンドペーパーをテンプレートとしてゲルを調製し、ゲル摩擦界面を直接観察した。ラフネスが強くなるほど、潤滑層形成過程の速度領域が拡大し、転移過程が不明瞭になることが観察された。

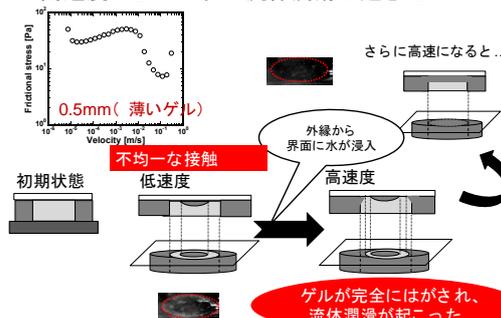
さらに、ゲルの厚さを変化させて潤滑層形成過程を調べたところ、厚いゲルでは観察されなかった流体潤滑層形成過程が厚さ0.5mmの薄いゲルで観測された（下図）。

厚さ0.5mmのPVAゲルの親水性ガラス基板に対する摩擦抵抗力の速度依存性



流体潤滑層の形成には、摩擦界面への水の侵入が必要であり、ゲルの厚さが薄いと接触面が不均一になり易くなって、水の侵入が起こり易くなると考察した（下図）。

高速でどのように流体潤滑は起きたのか



また、昨年度に試作した薄膜干渉流動画像法（FIFI）の装置を利用し、屈曲高分子が薄い液体層の乱流を抑制する効果を調べ、乱流抑制が高分子の伸張による粘度増大に起因する可能性を指摘した。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

[雑誌論文]（計2件）

- ① Ruri Hidema, Hidemitsu Furukawa, Hideharu Ushiki, Polymer Effects on Turbulence in Flowing Soap Films Studied with Film Interference Flow Imaging Method, J. Solid. Mech. Mater. Eng, 査読有, Vol. 5, 2011, pp838-848, DOI:10.1299/jmmp.5.838
- ② Kosuke Kamada, Hidemitsu Furukawa, Takayuki Kurokawa, Tomohiro Tada, Taiki Tominaga, Yukihiro Nakano, Jian Ping Gong, Surfactant-induced friction reduction for hydrogels in the boundary lubrication regime, J. Phys.: Condens. Matter, 査読有, Vol. 23, 2011, No. 284107, DOI:10.1088/0953-8984/23/28/284107

[学会発表]（計18件）

- ① R. Hidema, H. Furukawa, Development of Film Interference Flow Imaging Method (FIFI) Studying Polymer Stretching Effects on Thin Liquid Layer, International Symposium on Surface Science -Towards Nano-, Bio-, and Green Innovation- (ISS-6), December 15, 2011, Tower Hall Funabori, Funabori, Tokyo, Japan
- ② 八島慎太郎, 古川英光, 黒川孝幸, 角五彰, 龔劍萍, ハイドロゲルの表面摩擦~共焦点レーザー顕微鏡を用いたソフト界面の直接観察~, 第59高分子学会討論会,

2010年9月17日, 北海道大学 高等教育機能開発総合センター

- ③ 古川英光, 光学的手法を用いたゲルの構造解析と機能化, 第59回高分子学会年次大会(招待講演), 2010年5月25日, 神奈川・パシフィコ横浜

[その他]

ホームページ等

・山形大学研究者情報

<http://yudb.kj.yamagata-u.ac.jp/index.jsp>

・古川研究室ホームページ

<http://furukawa.yz.yamagata-u.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

古川 英光 (FURUKAWA HIDEMITSU)

山形大学・大学院理工学研究科・准教授

研究者番号: 50282827

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

龔 劍萍 (GONG JIAN PING)

北海道大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号: 20250417