

## 滑り摩擦測定装置によるムチン懸濁液の潤滑能評価

田中 孝国<sup>1\*</sup>, 大関 康生<sup>1</sup>, 矢島 夏海<sup>1</sup>, 酒井 洋<sup>1</sup>, 大岡 久子<sup>2</sup>,  
桑原 敬司<sup>3</sup>, 那須 裕規<sup>4</sup>

<sup>1</sup>小山工業高等専門学校 物質工学科 (〒323-0806 小山市中久喜 771)

\*tanakatakuni@oyama-ct.ac.jp

<sup>2</sup>群馬工業高等専門学校 物質工学科 (〒371-8530 群馬県前橋市鳥羽町 580)

<sup>3</sup>長岡技術科学大学 生物機能工学専攻 (〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町 1603-1)

<sup>4</sup>小山工業高等専門学校 機械工学科 (〒323-0806 小山市中久喜 771)

## Evaluation of the lubrication ability of the mucin suspension using a sliding friction-measuring apparatus

Takakuni TANAKA, Kosei OZEKI, Natsumi YAJIMA, Hiroshi SAKAI,  
Hisako OOKA, Takashi KUWAHARA and Yuki NASU

National Institute of Technology, Oyama College  
(771 Nakakuki, Oyama City, Tochigi Prefecture 323-0806, JAPAN)

National Institute of Technology, Gunma College  
(580 Toriba, Maebashi, Gunma, 371-8530 Japan)

Nagaoka University of Technology, Department of Bioengineering  
(1603-1 Kamitomioka, Nagaoka, Niigata 940-2188, JAPAN)

(Received May 6, 2021; Accepted June 4, 2021)

Mucins are glycoproteins present in almost all animals and many microbes as the main component of mucus. Mucins have a friction-reduction role and are barriers to the invasion of pathogens into epithelial cells. The sliding friction of rubber-covered nitrile butadiene was measured as an experimental model for evaluating the friction properties of a mucin suspension. Their starting friction coefficients were obtained from a simple inclination method using an inclined board made of various metals (copper, aluminum, stainless, titanium, galvanized iron), where the friction coefficient was defined by the angle at which a nitrile butadiene rubber began to slide down. The influence of setting metal board materials on friction property was also evaluated. [Note: Do you mean, “The influence of the various types of metals on the friction property...”?] The obtained data were treated statistically. Marked differences in friction were found depending on the concentration of Mucin suspension. By measuring the contact angle, the addition of the wet properties to the surface of metals was shown in the mucin suspension.

**Key words:** mucin / friction / viscosity / inclination method

### 1. 背景

生体から分泌される粘液は、外来抗原の透過防止、上皮細胞の修復、摩擦の低減による機械的外傷からの防御の役

割を持つ[1]。人体における粘液は、唾液、関節間液、涙腺液、気道壁粘液、消化管壁粘液などの多数の器官から分泌されており、生体面の摩擦低減を行っている[2]。また、関節の軟骨部分の関節液による液体潤滑及び境界潤滑は摩

摩擦低減のほか、耐衝撃の役割も担っている。膝関節では数 10 MPa の圧力が常にかかっているが、このような強い圧力条件下でも、関節間の滑り摩擦係数は 0.001~0.03 に抑えられている。この関節の潤滑性は、関節表面と関節液の組成が低摩擦となるための最適な構造によるものであるとされ、その結果、滑り摩擦係数は荷重に関わらず安定であると考えられている [3,4]。この関節液に含まれる主要な構成成分として、糖タンパク質ムチンが知られている。ムチンは、1 本鎖のペプチド骨格に多数の糖鎖が結合した構造を持つ糖タンパク質であり、分子量は数 100 万~数 1000 万である。生体内では上皮細胞から分泌されており、上皮細胞の境界面において摩擦低減や保湿、粘性保持などの役割を果たしている。また、その化学構造から、ウイルスからの物理的防御も行っている [5]。更に、有機/無機素材からなる板状素材にムチンコーティングを行うことで、単層構造を示すことが知られている。この単層構造は、濡れ特性を持ち、摩擦を低減することが知られている [5,6]。これらの特性から、ムチンを二物体間に塗布することで、ムチンの潤滑能を物体間に付与できると考えられる。我々も前報でムチン懸濁液による摩擦低減効果に関する基礎研究を実施した。その結果、ムチン懸濁液は金属の摩擦低減に有効な液体であり市販の潤滑油や切削油に近い効果を示すことが判明した[6]。

本報ではムチンの潤滑能を更に評価するために海野 [7] の報告を基に作製した簡易実験装置を用い、静摩擦係数の測定を行うことで、二物体間に働くムチン懸濁液の摩擦低減効果の評価を試みた。続いて、金属板の各々にムチン懸濁液を滴下し、接触角を測定することで、ムチン懸濁液の材料に及ぼす濡れ特性の付与についても評価を行ったので報告する。

## 2. 実験

### 2-1 手動静摩擦係数測定装置の作製

斜面上の物体には静摩擦が働いていると考えられる。その為、斜面上の物体が滑り始める際の斜面角度の測定を行うことで静摩擦係数を算出し、ムチンの潤滑能の評価が可

能と考えた。そこで海野の文献 [7] を参考に、まず傾斜角測定を行う実験装置を作製した(図 1)。実験装置は取り付けられた滑車によってワイヤーを手動で巻き取り、平板を傾斜させることで傾斜板上に設置したモデルの滑り始めの角度をデジタル水平傾斜計により測定した。実験装置の本体材料にはステンレス鋼を使用し、滑車によって巻き取られるワイヤー部にはピアノ線を使用した。

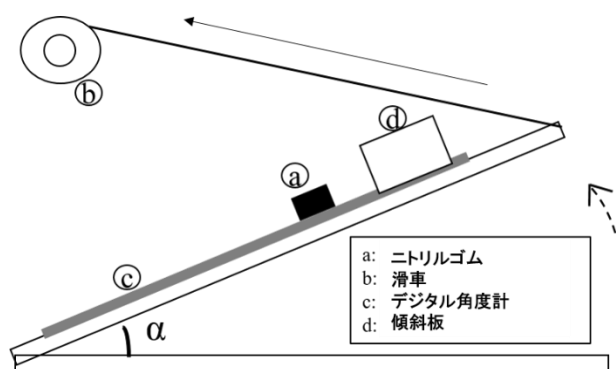


図 1 手動静摩擦係数測定装置

### 2-2 物体間の静摩擦係数測定

手動静摩擦係数測定装置に設置する傾斜板として、銅板、アルミニウム板、ステンレス板、トタン板、チタン板を使用した。使用した傾斜板の内、金属板はアセトンによる脱脂処理を実施した。尚、本研究では各金属板は市販された状態のまま使い、表面粗さなどについては調整していない。それぞれの傾斜板上を滑らせるモデルとして、ニトリルゴムを用いた。ニトリルゴムは、アクリルニトリルとブタジエンの共重合で生成できる代表的な合成ゴムの一種である。ニトリルゴムは、耐油性に優れた特殊ゴムであり、加工性、耐摩耗性などの機械的特性に優れていることが知られており、産業界で広く使用されている [8]。従って、本研究ではニトリルゴムを滑らせモデルとして採用した。尚、実験には、100 [mm] × 7 [mm] × 4 [mm] のサイズのニトリルゴムを使用した。

ニトリルゴムと傾斜板間には空気、水、ムチン懸濁液(ムチンは水に懸濁状態、10, 25, 50, 100 [g/L])を添加し、各条件それぞれ 100 回ずつの測定を行った。ニトリルゴムは 100 [mm] × 7 [mm] の面を傾斜板に設置した。空気以外の

条件では、水及び懸濁液に 100 [mm]×7 [mm] の面を付着させ、一度ニトリルゴムを垂直にして、余分に付着した懸濁液の除去を行った。その後、実験装置上の傾斜板に懸濁液を付着させたニトリルゴムを置き、斜面を傾斜させることでニトリルゴムの滑り始めの傾斜角を測定した。実験に使用したムチンは、豚胃由来ムチン (Sigma-aldrich M2378, Mucin from porcine stomach type II)を使用した。尚、実験時の温度は 25±2 [°C]、湿度は 50±10 [%] で実施した。

### 2-3 静摩擦係数の計算

本研究では、斜面上に設置したモデルが滑り始める際の摩擦係数、すなわち、静摩擦係数をモデルが滑り始めた時の傾斜角  $\alpha$  から算出した。まず、静摩擦は図 1 のような斜面上で、物体が滑らずに済む最大の角度で定義できる。静摩擦の式は(1)式で表される。

$$F_0 = \mu \times N \dots (1)$$

(1)式の  $F_0$  は最大静摩擦力  $N$ 、 $N$  は垂直抗力  $N$ 、 $\mu$  は静摩擦係数である。(1)式を用いて、静摩擦係数を算出するには、作用反作用の法則を用いて最大静摩擦力  $F_0$  と垂直抗力  $N$  を求める必要がある。斜面上の物体には重力が働いており、質量  $m$  [kg] と重力加速度  $g$  [m/s<sup>2</sup>] の積で表すことが出来る。斜面上では、この重力の分力が最大静摩擦力  $F_0$  と垂直抗力  $N$  の大きさと等しくなる。このことを式で表すと(2), (3)式で示すことができる。

$$F_0 = m \times g \times \sin\alpha \dots (2)$$

$$N = m \times g \times \cos\alpha \dots (3)$$

ここで(2), (3)式の中の  $\alpha$  は、斜面上の物体が滑り始めた際の斜面角度である。この式を静摩擦の式(1)に代入することで静摩擦係数を下の(4)式で簡易的に示すことができる。

$$\mu = F_0/N = (m \times g \times \sin\alpha) \div (m \times g \times \cos\alpha) = \tan\alpha \dots (4)$$

以上、(4)の式から、静摩擦係数は  $\tan\alpha$  で表すことが可

能である [7]。本研究では、(4)式より静摩擦係数を計算した。

### 2-4 金属板に滴下した水滴の接触角測定

接触角の測定は傾斜板として使用した金属板 (銅, ステンレス, アルミニウム, チタン, トタン板) に水及び各濃度のムチン懸濁液を 2 [ $\mu$ L] 滴下し、それぞれ測定を行った。接触角の測定は、接触角計 (アイリス株式会社製) を使用した。表面粗さは表面粗さ測定機 (株式会社東京精密製)を用い、開封時に測定を実施した。その結果を表 1 にまとめた。

表 1 金属板の表面粗さ (開封時)

	表面粗さ (算術的平均粗さ Ra [ $\mu$ m])
銅	0.073
アルミニウム	0.222
ステンレス	0.049
チタン	0.759
トタン板	0.152

## 3. 実験結果および考察

### 3-1 静摩擦係数の評価

図 2 はニトリルゴムと各傾斜板間に空気, 水, ムチン 10 [g/L] 懸濁液を付着させた際の静摩擦係数を各傾斜板の種類ごとに比較したグラフである。このグラフより、ムチン懸濁液塗布時の静摩擦係数がチタン板を除き、空気よりも 0.10~0.22, 水よりも 0.20~0.46 小さくなることが判明した。これはムチン懸濁液を物体間に塗布することで、境界潤滑状態が付与されたことが示唆される。境界潤滑状態は、物体同士が一部接触しているが、官能基を持つ流体分子が表面に吸着あるいは反応することで膜を生成しているため摩擦係数が 0.01~0.2 を示すことが知られている [9]。この境界潤滑における膜は、材料表面へ吸着している極性基の種類と個体の種類によって物理吸着膜と化学吸着膜に分けられる。本研究で使用したムチンはヒドロキシ基(OH基)を持つため、金属板表面とのファンデルワールス力に

よる物理吸着膜が生成したと考えられた [9]。一方で、チタン板のみ空気条件時の傾斜角が一番小さい値を示した。チタン板における挙動については、現時点では不明である。

チタン板を除く他の傾斜板においては、物体間にムチン懸濁液を添加することで、潤滑能を付与できることが示唆された。ムチンは、懸濁液中で疎水性表面に吸着し、粒子塊となって二物体間(本報では傾斜板とニトリルゴム間)に挟まることで物体同士の接触面積を減少させる[10]。その結果、ムチン粒子の大きさの変化による潤滑作用が物体表面に生じたことが考えられた [10,11]。一般的に、液体で材料表面が濡れと潤滑作用が生じ、乾燥状態よりも摩擦は小さくなることが知られている [12]。しかし、高分子素材であるナイロンを用いた実験において水を添加することで逆に摩擦係数が上昇したことが報告されている。これは水が個体内部に浸透したことで、接触面積が上昇したことが原因と考えられている。Tabor らの研究において、ナイロン間の摩擦係数が  $\mu=0.45$  となったのに対し、水による潤滑を行うことで  $\mu=0.67$  となることから認められている [13]。高分子素材を滑らせモデルとして用いた本研究においても、水を物体間に塗布した場合は空気(乾燥時)よりも高い摩擦係数を示したことから、同様の結果が得られたと考えられた。また、表面粗さの違いにおける差は見られなかった。

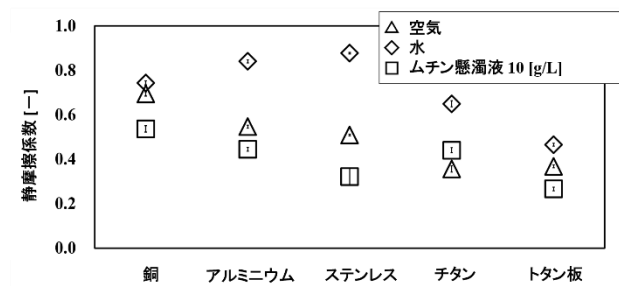


図2 各傾斜(金属)板とニトリルゴム間の静摩擦係数

続いてムチン懸濁液の濃度による潤滑能への影響を評価するために、懸濁液濃度を変化させ、ニトリルゴムと傾斜板間におけるムチン懸濁液の潤滑能への影響を調査した。図3より、ムチン懸濁液濃度を上昇させるにつれ

て静摩擦係数の減少傾向が観察された。ムチン濃度 50 [g/L]の静摩擦係数は、ムチン濃度 10 [g/L]の時と比較して、0.49~0.79 倍となり、物体間へ付与された潤滑能が向上したことが示唆された。一方で、ムチン懸濁液濃度 50 [g/L]と 100 [g/L]の条件では、静摩擦係数に大きな差は見られなかった。静摩擦係数の変化が小さくなったのは、ムチンの潤滑状態が境界潤滑状態から、流体潤滑状態へと推移したためと考えられた [9]。流体潤滑状態では、2物体は非接触であり、物体間に塗布した溶液のせん断力が摩擦係数を示す。10~50 [g/L] の条件下では静摩擦係数が変化していることから、混合潤滑状態であることが予想される [14]。傾斜板の中で、トタン板の変化量が少ないことが観察された。トタン板は一般に撥水加工されている。そのため、液体が付着してもその撥水効果を示され、このような結果が得られたことが考えられた。この実験結果からも表面粗さの違いによる差は見られなかった。

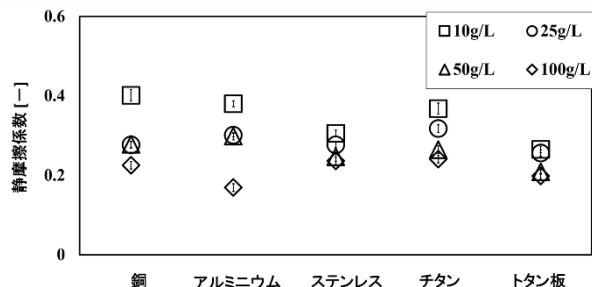


図3 ムチン濃度を変化させた時の各傾斜(金属)板とニトリルゴム間の静摩擦係数

以上の結果から、ムチン懸濁液の潤滑能は、濃度上昇に伴い向上するが、ある濃度からは潤滑能の変化が無くなることが示された。本研究における濃度の上昇による潤滑能向上効果は、懸濁液中のムチンの凝集作用によって境界潤滑状態から流体潤滑状態へ変化したと考えられる。おそらくムチン同士が凝集することで、物体の細かな隙間にムチンが入り込みにくくなり、潤滑層が大きくなることで流体潤滑状態へと推移し、潤滑能が向上したことが考えられた。また、今回の表面粗さの範囲では差は見られないことが判

明した。

### 3-2 接触角の評価

図4は、水及びムチン懸濁液を滴下したときの接触角を金属板の種類ごとにプロットしたグラフである。尚、トタン板に滴下した水は90°を超えてしまい測定不能であった。トタン板を除く金属板に、ムチン懸濁液を滴下した際の接触角は、水を滴下した場合よりも10~25°の減少が観察された。このことからムチン懸濁液は金属板への吸着が行われ、水よりも強い濡れ特性を持つことが示唆された。水潤滑下におけるゴム材料の静摩擦係数は、水の広がりやすさである拡張係数が影響していることが知られている。従ってこの結果から、ムチン懸濁液は水よりも高い拡張係数を持つため、水よりも低い摩擦係数を示したことが考えられた。同時に、懸濁液中の懸濁ムチン濃度の違いによる接触角の変化は見られなかったため、ムチン濃度による濡れ特性への影響は見られないことが判明した。このことから、ムチン懸濁液の濃度による潤滑能の変化は、ムチン懸濁液が金属板におよぼす濡れ特性によるものではないことが示唆された。トタン板における接触角の差は小さく、静摩擦係数の際と同様に、トタン板表面の撥水効果により、全ての溶液が撥水効果を受け、このような結果が得られたことが考えられた。本結果においても、表面粗さの違いにおける差は見られなかった。

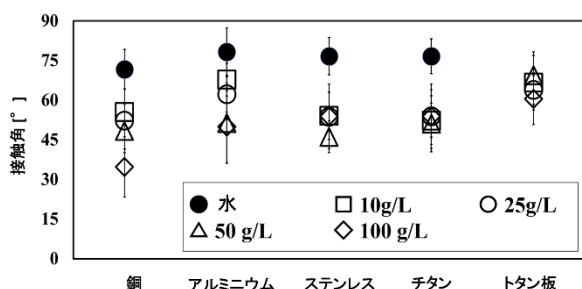


図4 金属板に滴下した水滴の接触角

### 4. まとめ

本研究では、ムチン懸濁液が二物体間におよぼす潤滑能

の評価を実施した。その結果、ムチン懸濁液はムチン濃度10~50 g/Lの範囲で潤滑能の向上に関与すること、接触角による測定により、材質への濡れ特性の付与が示された。

### 謝辞

本研究は、JSPS 科研費 20K04250 および R2 年度 高専一長岡技大共同研究助成金の助成を受けて実施されています。

### 参考文献

- [1] 長谷耕二, 大野博司: 粘膜免疫系の最前線における上皮細胞の生体防御機構, 日本臨床免疫学外会誌, Vol. 29, No. 1, pp.16-26 (2006)
- [2] 海野都久子: どじょう生体面粘液の CCD 顕微鏡による観察と摩擦に関わる考察, トライボロジスト, Vol. 49, No. 4, pp.337-344 (2004)
- [3] 八島慎太郎 他: ゲルの摩擦・潤滑から生体の低摩擦へ, 日本バイオレオロジー学会誌, Vol.22, No. 2, pp.36-50 (2008)
- [4] 森誠之: トライボロジーと表面科学, 表面科学, Vol. 32, No. 5, pp. 270-278 (2011)
- [5] Shi,Lei: Biomimetic Surfaces of Biomaterials Using Mucin-Type Glycoproteins, Trends in Glycotechnology, Vol.12, No. 66, pp. 229-239 (2000)
- [6] 田中孝国 他: ムチン(糖タンパク質)による摩擦力低減効果の基礎検討およびムチン濃度推定法の試み, 技術・教育研究論文誌, Vol.27, No.1, pp.15-19 (2020.06)
- [7] 海野都久子: どじょう生体面の滑り摩擦測定-粘液層を伴う柔らかい生体面のモデルとして-, トライボロジスト, Vol. 46, No. 2, pp.155-161 (2001)
- [8] 原孝美 他: ニトリルゴム(NBR)の表面近傍のオゾン劣化と機械的強度について, マテリアルライフ, Vol.11, No. 4, pp. 175-182 (1999)
- [9] 長谷重蘭: トライボロジーの基礎, 精密工学会誌, Vol.81, No.7, pp. 643-647 (2015)
- [10] Matthias Marczynski, et al.: Charged glycan residues critically contribute to the adsorption and lubricity of mucins,

- Colloids and Surfaces B: Biointerfaces, Vol. 187, Report No.110614 (2020)
- [11] Gleb E. Yakubov, et al. : Aqueous lubrication by fractionated salivary proteins: Synergistic interaction of mucin polymer brush with low molecular weight macromolecules, Tribology International, Vol. 89, pp. 34-45 (2015)
- [12] 広中清一郎: 摩擦と摩耗のはなし, 日本ゴム協会誌, Vol. 72, No. 4, pp. 186-193 (1999)
- [13] S. C. Cohen and David Tabor : The friction and lubrication of polymers, Proceedings of the Royal Society of London, A 291, pp.186-207 (1966)
- [14] Gleb E. Yakubov, et al. : Viscous Boundary Lubrication of Hydrophobic Surfaces by Mucin, Langmuir, Vol. 25, No. 4, pp. 2313-2321 (2009)