

図3 コーティングを施していない UHMWPE、PEEK、CFR-PEEK の摩擦係数。

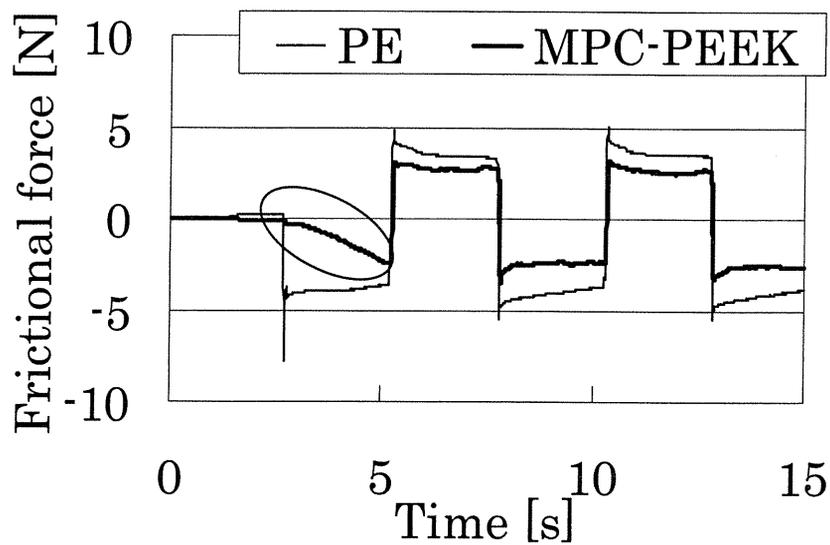


図4 UHMWPE と PMPC-PEEK の摩擦力の測定結果の比較。
 PMPC-PEEK の摩擦力は楕円で示す1サイクル目で次第に上昇し、
 ここでコーティングが剥離したことを示唆している。
 PMPC-CFR-PEEK でも同様であった。

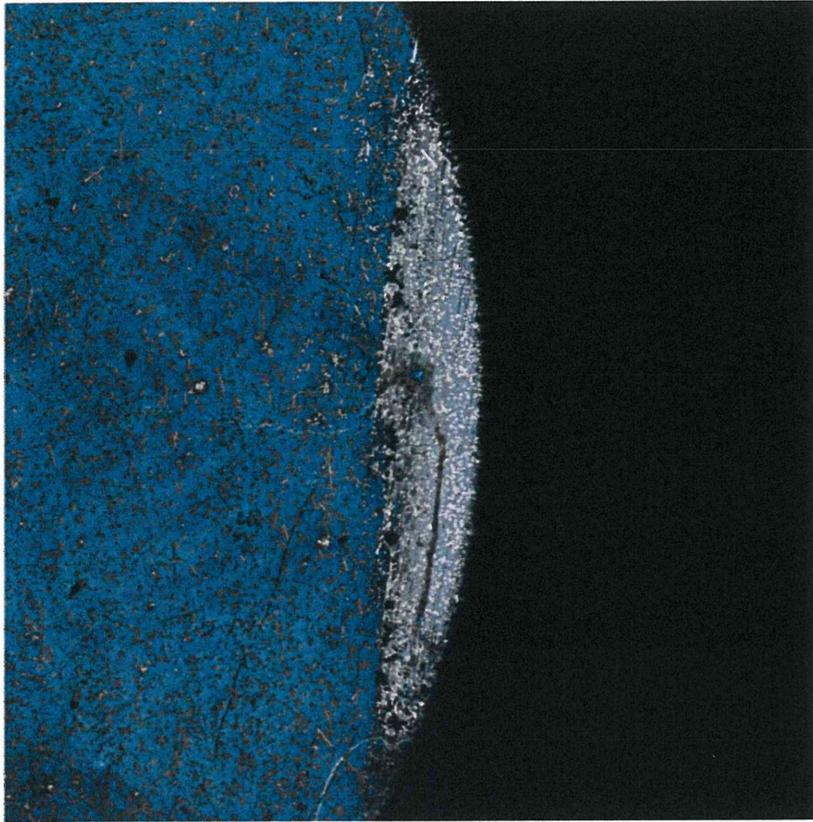


図5 PMPC-CFR-PEEKの摩擦係数測定後の摺動面。
 辺縁部でコーティングが剥離している。PMPC-PEEKでも同様であった。

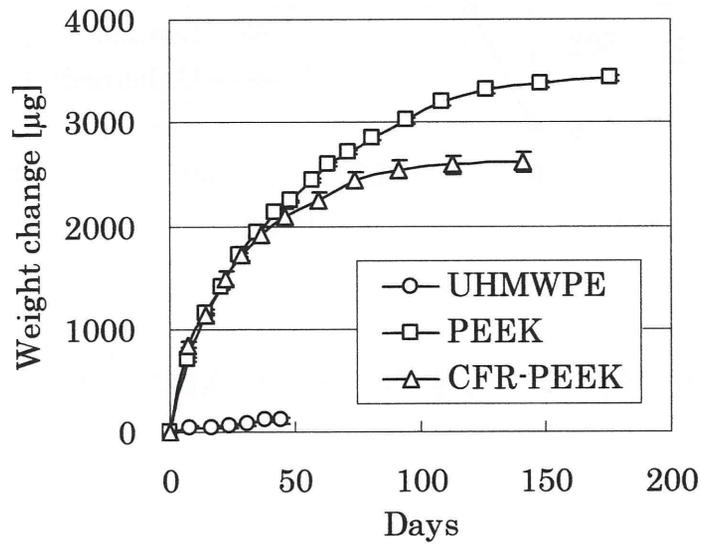


図6 UHMWPE、PEEK、CFR-PEEKの潤滑液浸漬による重量変化。

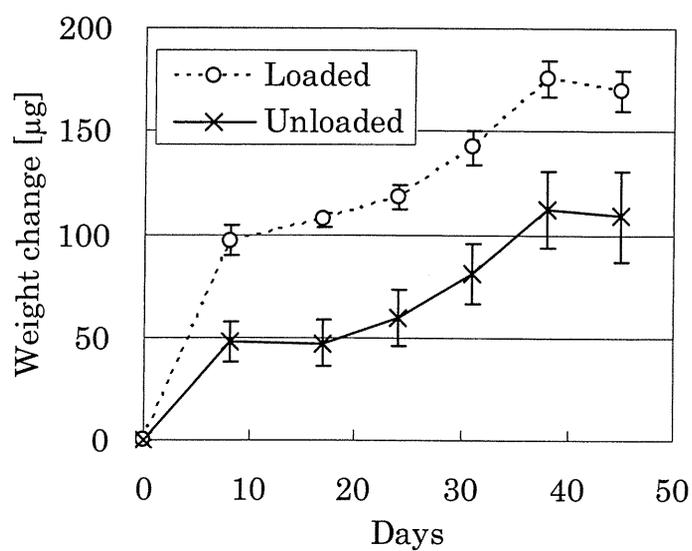


図7 UHMWPE ピンの荷重下と非荷重での重量変化の比較。

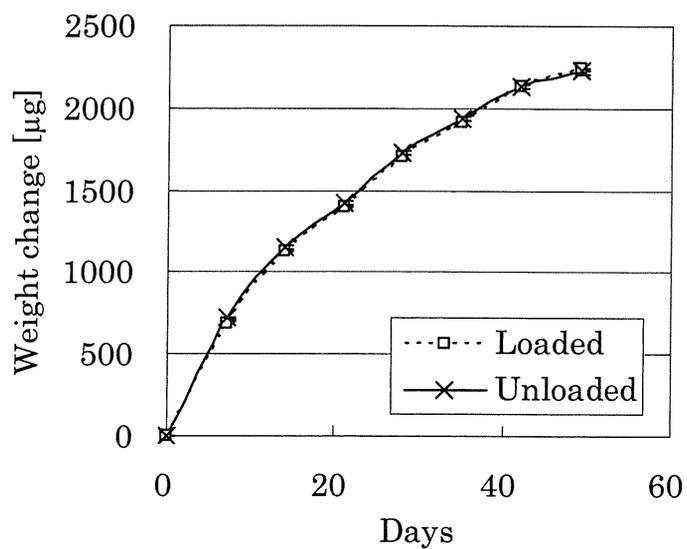


図8 PEEK ピンの荷重下と非荷重での重量変化の比較。

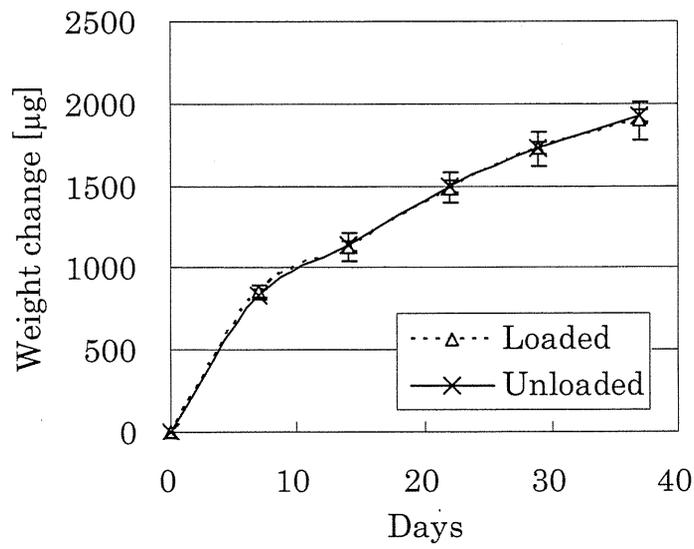


図 9 CFR-PEEK ピンの荷重下と非荷重での重量変化の比較。

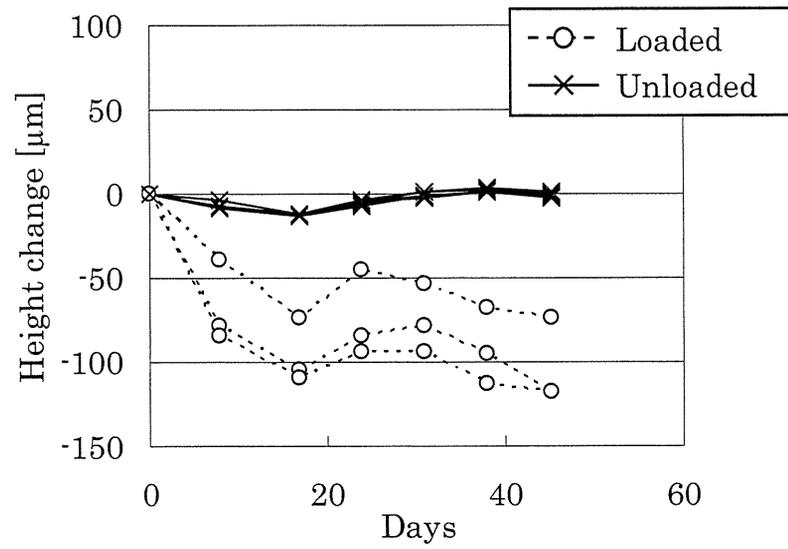


図 10 UHMWPE ピンの荷重下と非荷重での寸法変化。

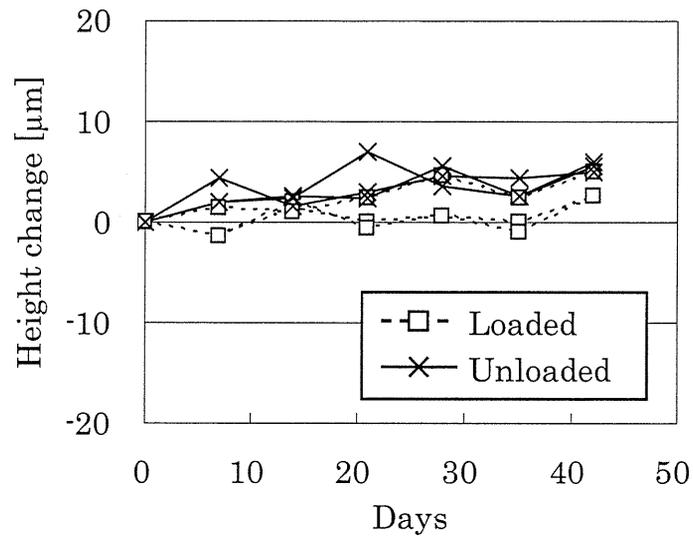


図 11 PEEK ピンの荷重下と非荷重での寸法変化。

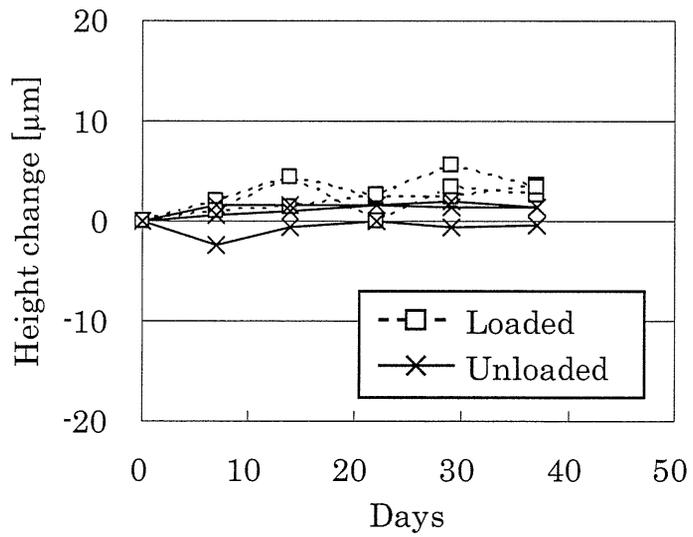


図 12 CFR-PEEK ピンの荷重下と非荷重での寸法変化。

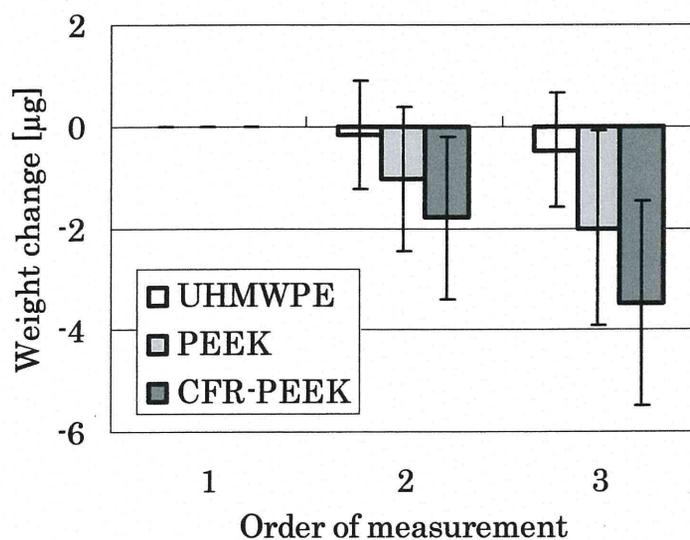


図 13 UHMWPE、PEEK、CFR-PEEK ピンの重量測定中の重量変化。

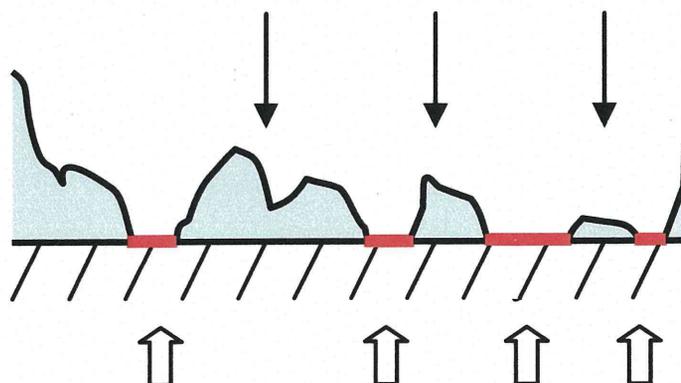
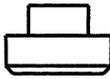
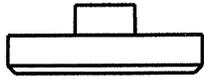


図 14 高接触応力下における摩擦係数の低下を説明する模式図。

接触応力が高くなるにつれ、白い矢印で示す真の接触面積が次第に増大し、その部分に囲まれて潤滑液が外に出ることができない部分（黒い矢印で示す。）も次第に増加する。潤滑液が支持する荷重分だけ、見かけの摩擦係数は低下する。

表 1 摩擦係数測定に使用した試料ピンの寸法と荷重を加えた際の公称接触応力[MPa]。

ピン径 荷重	 φ 6 mm	 φ 12 mm	 φ 24 mm
2 kg	0.34	0.09	0.02
5 kg	1.38	0.34	0.09
10 kg	3.11	0.78	0.19
20 kg	6.58	1.64	0.41

分担研究報告書
厚生労働科学研究費補助金
医薬品・医療機器等レギュラトリーサイエンス総合研究事業
「材料／細胞・組織界面特性に着目した医用材料の新規評価方法の開発に関する研究」

分担研究課題名
分子シミュレーションを用いた材料表面水和状態の検討

研究分担者	植松美幸	国立医薬品食品衛生研究所医療機器部
研究協力者	薮島由二	国立医薬品食品衛生研究所医療機器部
研究協力者	中岡竜介	国立医薬品食品衛生研究所医療機器部
研究協力者	瀬川勝智	国立医薬品食品衛生研究所医薬安全科学部
研究協力者	中野達也	国立医薬品食品衛生研究所医薬安全科学部

研究要旨

医療機器に用いられる高分子材料の材料開発や評価指標作成に向け、材料表面と生体との相互作用について調査する。ここで、医用高分子材料表面における水分子構造の違いが高分子の安定性に与える影響に着眼し、分子動力的シミュレーションに基づく、解析を試みている。今年度は、比較的血液適合性が高いといわれる高分子材料であるPMEA (Poly(2-methoxyethyl acrylate)) を対象に高分子の大きさや立体構造の違いによる検討を行ったので報告する。

A. 研究目的

体内に埋込む医療機器は生体への高い適合性が求められる。これまでに様々な医用高分子材料が開発されているが、長期的な埋込みによる生体適合性の評価以外に、評価指標を提示できれば、材料をより迅速に患者へ普及させることができる。そのひとつの手段とするため、本研究ではコンピュータシミュレーションによる評価指標の開発に取り組んでいる。

ここでは、特に、医用高分子材料の血液適合性を評価する上での新たな指標作成を目指している。血液適合性のよさは材料表面における血漿タンパク質の吸着挙動によるといわれている。そして、材料表面が血液に接触した場合、タンパク質が吸着する前に水が吸着することが知られている。血液が材料表面に付着する際の、材料の界面における水の構造を知ることができれば、血液適合性との関係を解明する一歩となるのではないかと考えている。

血液適合性は血液／材料界面における水の構造が関連するとの研究が進められており、Differential Scanning Calorimetry (DSC) によって計測される cold crystallization の有無が材料と水分子の結合状態と関連があることが示されている¹⁾。

この考えにもとづき、本研究では高分子材料と水分子の相互作用を分子動力的シミュレーションにより可視化することを目標とする。本シミュレーションでは、材料表面近傍に存在する水分子について、または、存在する水分子を想定し、その水分子が材料に対してどの程度の動きやすさを持つのかについて、分子動力的計算に基づいて表現する。

材料表面近傍の水分子の運動を考える上で、材料そのものの構造が重要である。高分子材料の実際の構造を精密に把握することは難しいが、おおよその検討をつけることはできる。一方で、重合度が100以上とされる高分子材料の精密な構造をそのままコンピュータ上で再現し、解析することは極めて困難である。

そこで、昨年度は構造の似通った 11 種類の医用高分子材料を対象にし、モノメトリックな構造について調査した。ここでの初期的見解ではモノメトリックな構造からも表面近傍の水分子の拡散係数と cold crystallization の存在とに相関が見出せるのではないかという可能性を得た。

これをもとに今年度は重合度を増加させ、配置や温度等の条件を変えたときのシミュレーションを行い、立体構造に生じる違いについて調査する。

B. 研究方法

1. 分子動力学的シミュレーション

1.1 シミュレーション手順

シミュレーションを行うにあたっては、Discovery Studio (Accelrys 社) を用いる。シミュレーションの手順²⁾は次の通りである。

1) 材料の初期構造を構築し、Molecular Dynamics 計算で構造エネルギーを最小化する。

2) Discovery Studio で読み込み、力場 (CHARMm: Chemistry at HARvard Molecular Mechanics³⁾) を与えた上で、Smart Minimizer アルゴリズム (最急降下法・準ニュートン法・Truncated ニュートン法を用いた方法) により最小化する。

3) 材料の周りに TIP3P water を配置し、初期構造を Smart Minimizer アルゴリズムで決定する。

4) Standard Cascade Dynamics を行う。尚、Standard Cascade Dynamics の内容は次の通りである。

i) 最急降下法による最小化

ii) 共役勾配法による最小化

iii) 加熱

iv) 平衡化

v) 構築

5) 周りの水の挙動を調べるため、エネルギーが安定となるステップの Trajectory を抽出し、保存する。

6) 材料近傍の水の挙動については、材料表面の水について、表面からの距離に応じた拡散係数の算出によって、求める。

1.2 条件設定

1) 溶媒

高分子材料の表面に存在する水分子構造を知るため、材料の周りを取り巻く溶媒として水を設定する。水分子のモデルは種々提案されているが、分子動力学的計算に用いられ、CHARMM 力場用に調整されている TIP3P を用いた。

2) 境界条件

境界条件は、非周期境界条件と周期境界条件に分けられるが、対象材料の表面からの距離に応じた水の動きやすさを知るために、境界での拘束条件を受けないバルク水で満たされた状態を周期境界条件により設定した。

C. 実験

PMEA: Poly(2-methoxyethyl acrylate) を対象とする。これは血液適合性が高いとされ、すでに医療機器に利用されている高分子材料のひとつである。化学式は図 1 で示されるが、実際は立体的な構造をもつ。現実の分子構造を全てコンピュータ上で再現することは難しいため、絞った条件下での分子構造について論じることとする。

1. 立体的な分子構造の付与

コンピュータ上での立体的な分子構造の描画には無数のパターンが考えられる。そのうち、側鎖の立体的配置の違いによるパターンわけとして、イソタクチック (同一方向)、シンジオタクチック (左右逆向き)、アタクチック (ランダム) がある。

アタクチックについては、様々なパターンが考えられるため、まずは、それぞれの原子間距離や配置し得る角度を考慮しながら、イソタクチックとシンジオタクチックの立体構造の比較をする。それぞれの構造を ChemDraw (Cambridge Soft 社) で作図し、Chem3D (Cambridge Soft 社) で三次元化した。

重合度は現在の比較的高機能なデスクトップ型 PC で計算ができる程度のものとする。

PC の主な構成は下記の通りである。

DELL Precision T5500

- OS: Windows 7 Professional (32bit)
- CPU: Intel Xeon X5680 (12MB L3 キャッシュ, 3.33GHz, 6.4GT/s, 6 コア)
- チップセット: Intel X5520
- メモリ: 4GB

2. シミュレーテッドアニーリング法による分子構造の予測

高分子材料の初期構造は自明ではない。

Chem3D 等のソフトウェアで作図によって与えた構造は理論的にとりうる可能性の高い構造であるが、実際の状態を知ることは難しい。実験的に求めることを予定していたが、材料の調整が十分に行えなかったこともあり、シミュレーション的なアプローチを試みた。

ここでは、シミュレーテッドアニーリング法を用いる。アニーリング法では対象を高温状態に加熱して、原子が動きやすい状態を作り、冷却して原子が安定な状態にするものである。溶媒内での分子構造のシミュレーションには Explicit 法と Implicit 法があるが、Implicit 法を用いた。この方法では、連続誘電率として溶媒を扱い、水を直接配置することはない。静電エネルギーは誘電定数の関数として表現される。大量の分子間の状態をシミュレーションしなくてよいので、計算コストが少なく済むという利点がある。

初期温度を 50K とし、上昇させていったときの最高温度を 300K, 400K, 500K, 600K, 700K, 800K, 900K, 1000K とし、分子のポテンシャルエネルギーとの関係を調べた。また、再度 300K に冷却し、平衡化させたときの分子構造について比較検討した。

3. 材料表面の水分子の動き

高分子材料のオリゴマーに対し、水分子を配置し、B の手順で分子動学的シミュレーションを行った。力場は CHARMM Polar H とし、このときの Production パラメータは下記の通りである。

Production パラメータ

Production Steps	200,000
Production Time Step	0.001 [nsec]
Production Target Temperature	300.0 [K]
Production Type	NVT
Nonbond List Radius	14.0 [Å]
Nonbond Higher Cutoff Distance	12.0 [Å]
Nonbond Lower Cutoff Distance	10.0 [Å]
CPU 数は同時に使用可能な最大数: 4 コア	

D. 実験結果と考察

1. 分子構造の付与

図 2、図 3 はイソタクチックの例、図 4、図 5 はシンジオタクチックの例である。ある程度重合させていくと、主鎖は長く伸びていくが、捻りを持ちながら、周期的に繰り返されると考えられた。イソタクチックの構造で 1 周期は重合度 12、シンジオタクチックの構造では 1 周期が重合度 6 であった。立体構造を論じる上で周期性も重要であるという考えから、2 周期以上の繰り返しとなる重合度 25 を基本単位として設定することにした。

2. シミュレーテッドアニーリング法による分子の立体構造の予測

図 6 は Implicit 法で溶媒中の材料の温度をあげたときのポテンシャルエネルギーの関係である。温度を上昇させることは、計算上、分子内の原子の運動性を高めることはできるが、現実的には分子間の結合が切れるなどし、分子構造が存在できないと考えられる。

本モデルでは、温度をパラメータとしながらも、エネルギー状態を高めるという捉え方をし、図 7 に示すように、初期構造 A として与えたときに安定構造 1 しか得られないのではなく、分子動学的シミュレーションでは、エネルギー状態を上昇させることで、安定構造 2 を探すことができる。

温度を上昇させて平衡化した後の分子構造とさらに 300K に冷却させて平衡化させたときの分子構造の比較を行った結果を図 8、図 9 に示す。500K 以上にあげたときには図 8 に示すように主鎖が伸びるような構造になった。本対象のオリゴマーでは、初期的な構造を与

えるには 500K 程度に上昇させて平衡状態を見出せばよいと考えられた。さらに図 9 のように冷却による平衡を行ったときには、主鎖が曲がる状態となった。

オリゴマーの初期構造は主鎖がなるべく一方方向に伸びるように配置すると想定し、次の実験では 300K で冷却したときのオリゴマーでなく、500K に上昇させたときのオリゴマーを初期構造として用いることにする。

3. 材料表面の水分子の動き

図 10、図 11 にイソタクチックの PMEA オリゴマーを対象にした例を示す。図 10 は Chem3D で作製した初期構造を対象に与えたもの、図 11 はさらに最小化した構造を対象に与えたものを B.方法の流れに則って、水分子を配置したときの分子動力的シミュレーションを行った結果を時系列 (20 ns ごと) に示したものである。

図 10 では、エネルギー状態もほぼ安定し、主鎖の動きもある程度おさえられており、側鎖が互いに動きやすい関係にあった。図 10-b の主鎖を奥行き方向に見た場合の結果からも、らせん状に主鎖が巻き付くような構造を維持していることがわかる。

図 11 では、エネルギー状態はほぼ安定したが、主鎖自体にも動きがあり、さらに側鎖も動くという関係であった。図 10-a の主鎖を奥行き方向に見た場合の結果からも、主鎖はらせん状とはいえ、主鎖は伸びきった状態にある。これは主鎖が一方方向に伸びるような配置になっているが、側鎖がアンバランスな配置になっている。

オリゴマーの初期構造は主鎖がなるべく一方方向に伸びるように配置することを想定し、ソフトウェアによる作図によって得た構造とシミュレーテッドアニーリングによって得た構造とのシミュレーション比較をしたが、どちらが想定に近い状態であるかを推定するには十分な情報が得られなかった。

もし、仮に図 10 で得られるようなある程度周期的な構造を維持したまま、高分子材料が存在しているならば、前年度行ったモノメ

リックな構造からも表面近傍の水分子の拡散係数と cold crystallization の存在とに相関が見出せるのではないかという考えが導けそうである。

また、一方で、図 11 で示したような主鎖は一方方向に伸びつつも、側鎖がアンバランスとなる場合にはある程度、部位ごとでシミュレーション特性を調べるなどの方法も考えられる。これは、アタックチックで考えるときも同様であると考えている。

図 10 でみられたようにエネルギー状態が安定すると、局所的な動きが生じることになるが、任意の重合度 n 分をひとつの部位であるとみなす。側鎖の向きなどによって異なる重合度 m 分をまた別の部位として考える。これらいくつかのパターンを想定してシミュレーションした結果の組み合わせの結果を現実の現象と突き合わせていくことで、評価するといった方法である。

いずれにしても、今回のシミュレーション結果のみでは判断がつかないのであるが、シミュレーションによる方法のアプローチについてはより具体化したと考えている。

E. 結論

今回得られた結論は下記である。

- 1) PMEA のオリゴマーに対して、立体的構造の違いをシミュレーションした。
- 2) イソタクチックとシンジオタクチックの作図を行ったところ、シミュレーション初期状態の構造が大きく異なった。
- 3) 主鎖、側鎖の運動性は温度などの状態によって変わる。
- 4) 初期構造は重要であるが、シミュレーションでの判断は難しかった。

前年度のモノメリックのシミュレーション結果が応用できそうな期待を持ちつつも、NMR などでの実験値との比較により考えていきたい。

F. 参考文献

- (1) 田中賢：水分子の構造制御による血液適合性発現機構の解明，バイオマテリアル，28(1)，34-45，2010
- (2) 古明地勇人、上林正巳、長嶋雲兵：生体分子の分子動力学シミュレーション (1) 方法，J. Chem. Software，6(1)，1-36，2000
- (3) BR. Brooks, RE. Brucoleri, BD. Olafson,

DJ. States, S. Swaminathan, M. Karplus:
"CHARMM: A program for macromolecular
energy, minimization, and dynamics
calculations", J. Comp. Chem. 4, 187-217,
1983

- (4) CL 3rd. Brooks, M. Karplus: "Solvent effects on protein motion and protein effects on solvent motion, Dynamics of the active site region of lysozyme", J. Mol. Biol., 208(1): 159-81, 1989
- (5) 上田 顯: 分子シミュレーション-古典系から量子系手法まで-, 裳華房, 2003

G. 研究発表

1. 学会発表

- (1) 植松美幸, 坂本 怜, 市橋琢弥, 梅津光生, 松岡厚子, 青見茂之, 飯村 浩, 中村亮一, 鈴木孝司, 村垣善浩, 伊関 洋, 大血管手術用 TAAA Navigator の構築と臨床に向けた評価, 第 20 回日本コンピュータ外科学会大会, 横浜, 11 月 22-24 日, 2011, 日本コンピュータ外科学会誌 13(3):404-5, 2011
- (2) 植松美幸, 中野達也, 瀬川勝智, 薮島由二, 中岡竜介, 松岡厚子, 分子動力的シミュレーションを用いた医用高分子材料表面の水和状態の可視化, 第 33 回日本バイオマテリアル学会大会, 京都, 11 月 21-22 日, 2011, 第 33 回日本バイオマテリアル学会大会予稿集:398, 2011
- (3) 許家群, 植松美幸, 坂本 怜, 市橋琢弥, 梅津光生, 東隆, 青見茂之, 中村亮一, 鈴木孝司, 村垣善浩, 伊関洋, 大血管ステントグラフト留置のための血管位置同定システム, 第 50 回日本生体医工学会大会, 東京, 4 月 29 日-5 月 1 日, 2011, 生体医工学 49(Supple1):91, 2011

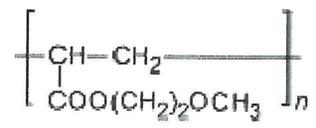


図1 PMEАの化学式

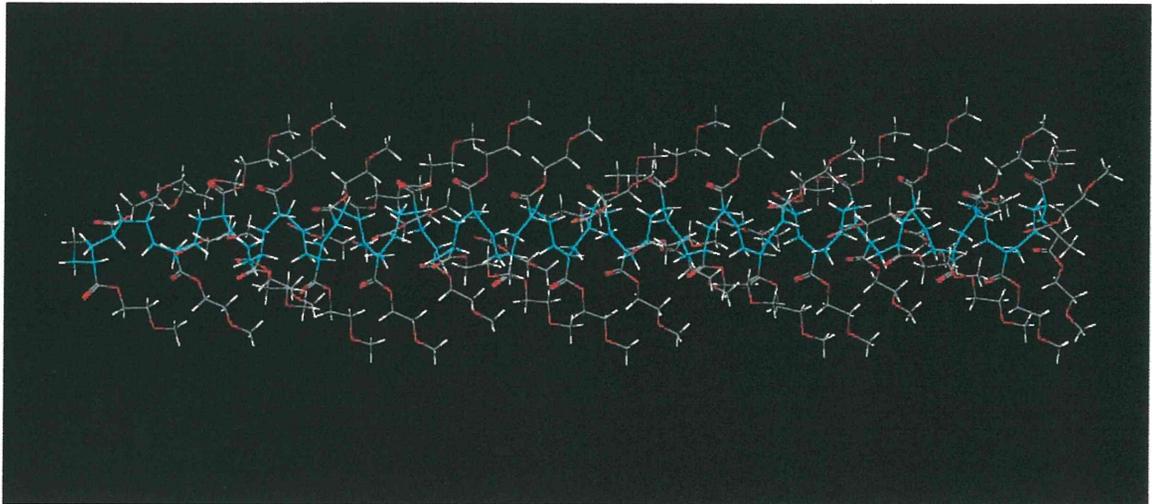


図2 PMEАのオリゴマーの一例:isotactic - view1

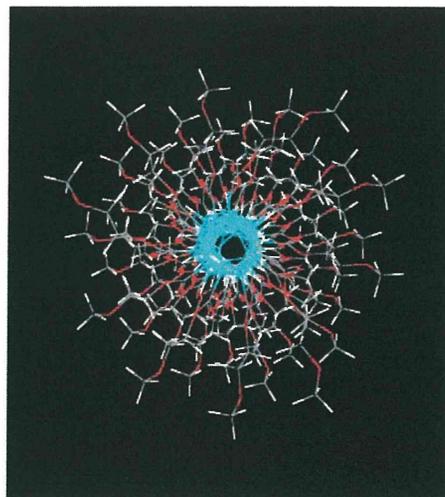


図3 PMEАのオリゴマーの一例:isotactic - view2

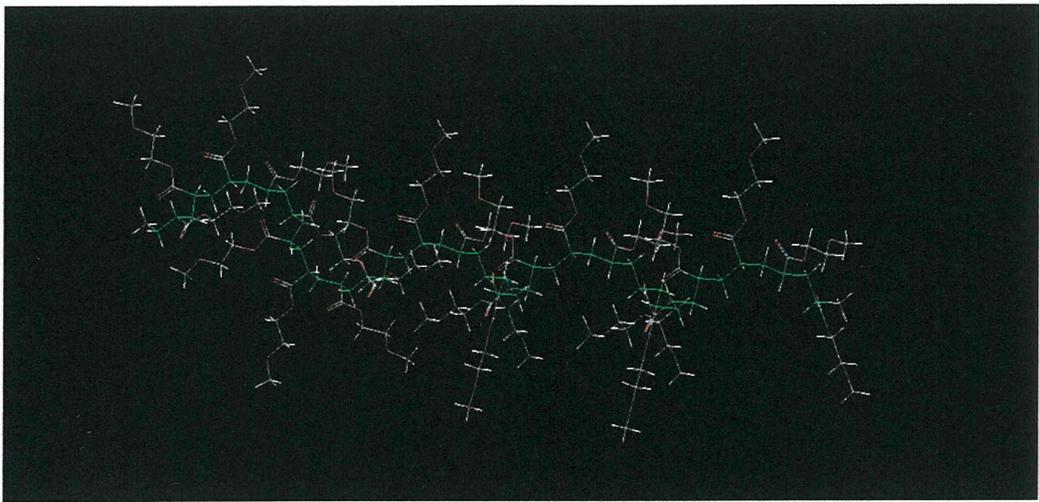


図4 PMEA のオリゴマーの一例:syndiotactic - view1

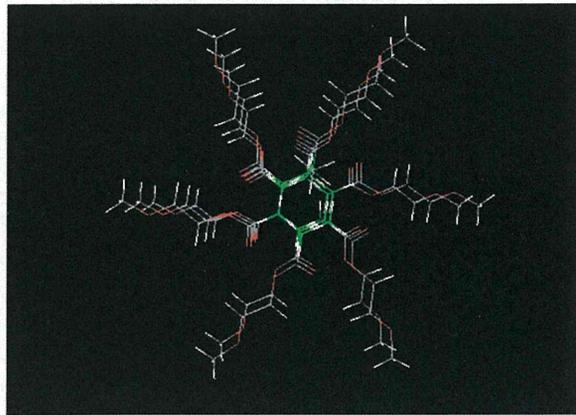


図5 PMEA のオリゴマーの一例:syndiotactic - view2

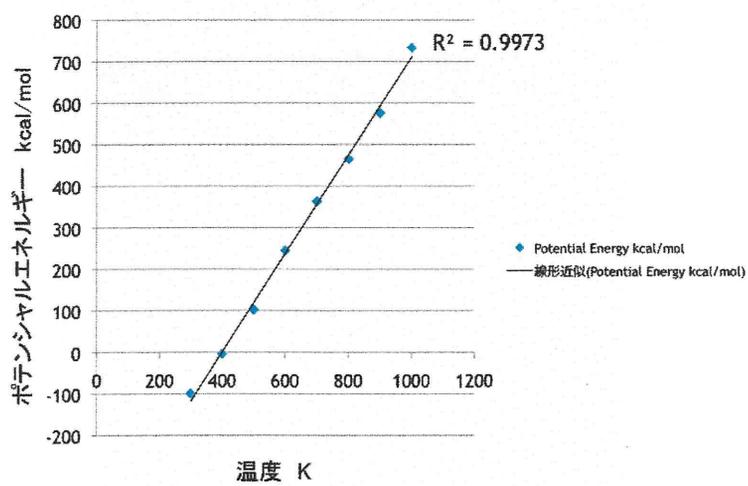


図6 温度とポテンシャルエネルギーとの関係

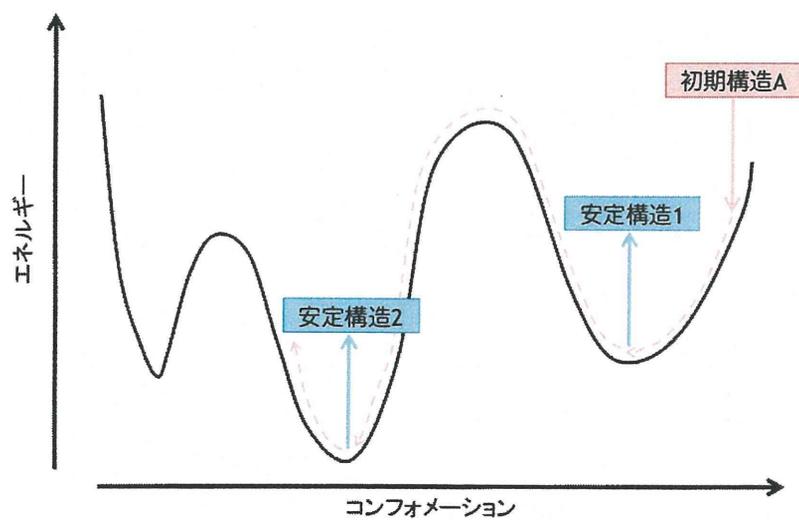


図7 エネルギーの状態と安定構造

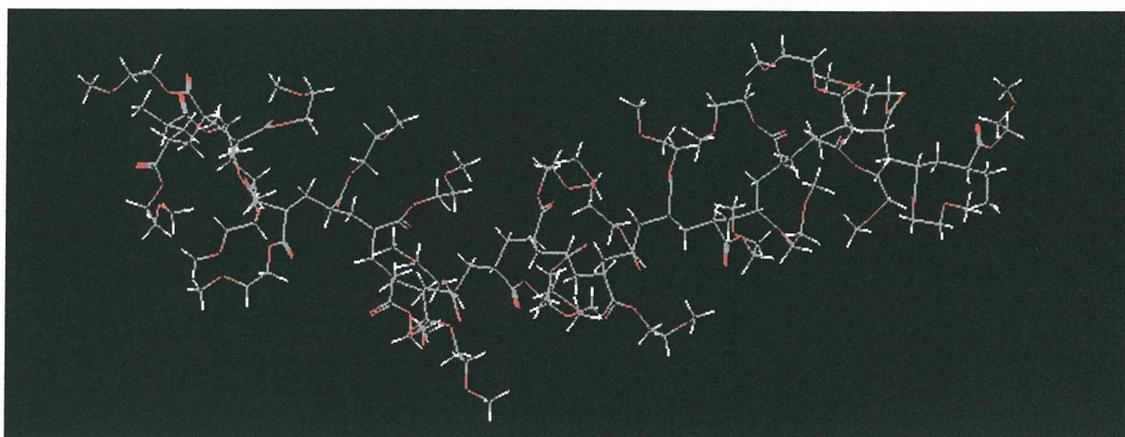


図8 PMEА のオリゴマーの例 (500K で平衡化)

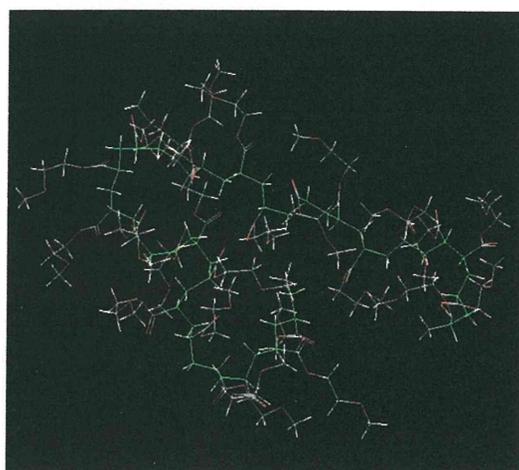


図9 PMEА のオリゴマーの例 (500K で平衡化後に 300K で平衡化)

分担研究報告書

厚生労働科学研究費補助金

医薬品・医療機器等レギュラトリーサイエンス総合研究事業

「材料／細胞・組織界面特性に着目した医用材料の新規評価方法の開発に関する研究」

分担研究課題名

表面処理を行った整形インプラント材料の潤滑状態の検討

研究分担者 石川格 国立医薬品食品衛生研究所医療機器部

研究要旨

昨年度に引き続き、ポリマーブラシを表面に持つ整形インプラント材料の潤滑状態をシミュレーションすることを目標に研究を行った。ただし、昨年度にシミュレーション手法として採用した散逸粒子動力学法では、計算結果の妥当性の判断が難しいという欠点があり、そのため今年度は計算モデルを連続体モデルで構築することに方針を改めた。この方針変換により、新しい計算モデルの考案とその定式化を進めたが、今年度では計算結果を得るところまで完了しなかった。そのため本報告では、連続体モデルでの潤滑シミュレーションに必要な基礎的な方程式群について整理し報告する。

A. 研究目的

人工関節の軸受材料として一般的に用いられている超高分子量ポリエチレン (Ultra-High Molecular Weight PolyEthylene, UHMWPE) の表面に 2-methacryloyloxyethyl phosphorylcholine (MPC) のポリマーをブラシ状にグラフトする表面処理を行うことで、ポリエチレンの耐摩耗性を向上できることが報告されている[1]。このようなポリマーブラシの潤滑機構については未だ研究途上の状態にあり、その潤滑状態をコンピューターシミュレーションでよく再現できれば潤滑面の形状設計や摩耗の予測に有用であると考えられる。

そこで、昨年度、散逸粒子動力学法 (Dissipative Particle Dynamics, DPD) という手法により潤滑シミュレーションを行うことを目標に計算プログラムの開発を進め

た。この手法は、対象となる系の原子・分子をある程度ひとまとめにした仮想の粒子 (散逸粒子) を考え、その粒子群の運動を追跡するシミュレーション手法である。この手法は、分子動力学法のように個々の原子・分子を考慮していたのでは計算規模が大きくなりすぎるような、メソスケール領域の計算対象に用いられる。昨年度、この手法による計算プログラムの作成を進めたが、その結果として、この手法には計算結果の妥当性を考える上で、多くの課題があることが分かってきた。まず、計算モデルを構築する上では、ポリマーチェーンを bead-spring モデルでモデル化することの妥当性や、固体壁の境界条件を実現させるための手法の妥当性を示し難いという事が挙げられる。また、計算に必要なパラメータが非常に多く、その適切な値を定めるため

の理論的・実験的手法が明確でないという点も課題だった。このようなことから、この手法による潤滑シミュレーションを実現したとしても、その妥当性を示すことが難しく、計算条件を振った上での定性的な考察しかできない可能性が高かった。

以上のような経過から、今年度は研究手法を改めて、連続体モデルでの潤滑シミュレーションを目指すことにした。連続体モデルは、よりマクロな視点からのモデル化であり、散逸粒子のような粒子はもはや計算モデルの中に存在しない。そのため、ポリマーブラシのブラシ構造をモデルの中で考慮することは難しい。このことは欠点であるが、その一方で、必要となるパラメータが DPD に比べて少なく、さらにそれらを実験的に定めることができる可能性がある。また、潤滑膜厚等の数値がより直接的に得られることから、潤滑状態が考察しやすい。このようなことから、連続体モデルでのシミュレーションを目指したほうが、より有用な結果が得られる可能性があると考えた。ただ、この方針の変更に伴い、計算プログラムを再び作り上げる必要が生じたが、時間上それが行えなかった。そのため、本報告では連続体モデルでのシミュレーションに必要な方程式群についての整理のみを行い報告する。

B. 研究方法

B.1. 記号について

次のように記号を定義して用いる。

x, y, z	: 座標 [m]
u, v, w	: 速度 [m/s]
q	: 流量 [m ³ /s]
r	: 半径 [m]
c	: 半径すきま [m]

a	: 接触円半径 [m]
p	: 圧力 [Pa]
ρ	: 密度 [kg/m ³]
F	: 体積力 [N]
λ	: 体積粘性係数 [Pa·s]
η	: せん断粘性係数 [Pa·s]
α	: 圧力-粘度係数
Z	: 圧力-粘度指数
E	: 弾性係数 [Pa]
ν	: ポアソン比
d	: 表面変形量 [m]
g	: 重力加速度 [m/s ²]
h	: 潤滑膜厚 [m]
W	: 負荷荷重 [N]

B.2. 対象とする問題

親水性ポリマーブラシを付与した整形インプラント材料の潤滑シミュレーションを行うことを目的として、連続体の理論で計算モデルを構成する。理論的な取り扱いの容易さから、人工股関節を対象として球とカップの組み合わせからなる摺動面形状 (ball-in-socket geometry) を考える。

図 1 に計算モデルの模式図を示す。簡単のため、ソケット設置時の傾斜角は考慮しないこととした。

図 1(a) は表面のポリマーブラシが存在しない従来の人工関節の場合について、

図 1(b) はポリマーブラシを持つ人工関節の場合についての模式図である。

図 1(a) のような従来の人工関節については、潤滑シミュレーションに関する多くの研究 (例えば Jalali-Vahid ら [2]) がすでに

存在する。本研究では、

図 1(b)に示すようにカップ表面にポリマーブラシの層を考慮してモデル化する。その際、分子レベルのスケールにおけるブラシ状構造は考慮せず、巨視的なポリマーブラシ層の力学的性質のみを考慮する。この層が存在したときに、存在しない場合に比べて潤滑状態がどのように変化するかを調べることが本研究の目的となる。つまり、ポリマーブラシ層の存在が潤滑膜形成に寄与するかどうか、さらに、歩行周期、負荷荷重、粘性係数などの周囲条件の変化に対する潤滑膜の安定性に寄与するかどうかを調べる。その上で、ポリマーブラシが存在する場合での、骨頭径や半径すきま等の設計諸元の最適化への応用などが考えられる。

EHL のシミュレーションでは、ヘルツ理論 (Hertzian theory) に基づいて、図 2 に示すように ball-in-socket geometry を半無限平面と球との接触 (ball-on-plane geometry) に近似的に置き換えることが行われる。しかし、この置き換えは、本研究で対象としているような UHMWPE と金属とで摺動面が構成されるような soft-on-hard タイプの人工関節には適用できない。なぜなら、UHMWPE の変形量が大きいため、UHMWPE で構成されたカップを半無限平面に置き換えると実際の変形との差が大きくなってしまふからである。このことは、ヘルツ理論で接触域半径を計算することによって以下のように説明される。

図 1(a)のようにヘッドとカップの半径をそれぞれ r_1 , r_2 とし、またそれぞれの軸受材質の弾性係数を E_1 , E_2 , ポアソン比を ν_1 , ν_2 とする。さらに、半径すきま (radial clearance)

c , 等価 (曲率) 半径 (effective radius) r' , 等価弾性係数 (effective elastic modulus) E' を次のように定義する。

$$c = r_2 - r_1$$

$$\frac{1}{r'} = \frac{1}{r_1} - \frac{1}{r_2} = \frac{c}{r_1(r_1 + c)}$$

$$\frac{1}{E'} = \frac{1}{2} \left(\frac{1 - \nu_1^2}{E_1} + \frac{1 - \nu_2^2}{E_2} \right)$$

このとき、ヘルツ理論によれば、静的な荷重 W によって両者がドライコンタクトしている場合の接触円半径 a は次式で与えられる。

$$a = \sqrt[3]{\frac{3WR'}{2E'}} \quad (1)$$

この接触円半径 a を各種組み合わせの人工股関節に対して求めた値を表 1[3]に示す。この表には、各組み合わせの人工関節の骨頭径 r_1 の代表的な値も併せて記載してある。表 1 において接触円半径 a と骨頭径 r_1 とを比較すると、金属と金属の組み合わせや、セラミックスとセラミックスの組み合わせのような hard-on-hard の人工股関節では、 a の値は r_1 の値に対して小さくなっているのに対して、金属とポリマーの組み合わせの人工股関節では a が r_1 を上回っている。この場合、ヘルツ理論の仮定の一つである「接触部分の大きさは物体の大きさに比べて微小である」という条件が満たされない。このことから、ball-on-plane geometry への置き換えが可能であるのは hard-on-hard の人工股関節に限られることが分かる。今回対象としている soft-on-hard の人工股関節の場合には、ball-in-socket geometry を保ったまま、カップ外側の金属ソケット (図 1(a)の Backing) の存在も考慮した上で、変形を考慮する必要がある。特に本研究では、

UHMWPE の表面に UHMWPE よりも軟質であることが想定されるポリマーブラシ層を考慮しなければならないので、なおのこと ball-on-plate geometry でのモデル化は適切ではない。

本研究のように、表面に薄膜が存在する場合の EHL シミュレーションについては藤根ら[4-6]による研究がある。ただし、藤根らの研究は、薄膜を等方性の線形弾性体と仮定した上で、ball-on-plate geometry での潤滑をシミュレーションしたものである。上記したように、soft-on-hard の人工関節に対して ball-on-plane geometry への単純化を行うことは実際の変形との誤差が大きくなり適切ではない。しかし、研究の第一段階としては、よりシンプルな構成から始めることが望ましいことから、まずは藤根らの研究を参考に、ball-on-plane geometry でポリマーブラシ層を線形弾性体と仮定してシミュレーションを行うことを目指すのが現実的である。

B.3. 弾性流体潤滑について

人工関節の軸受材料は、多くの場合、金属もしくはセラミックスと UHMWPE との組み合わせで構成されている。UHMWPE は軟質材であるため、体重負荷による摺動面の変形が潤滑に与える影響を無視できない。しかも、本研究は、UHMWPE 表面にさらに軟質であることが想定されるポリマーブラシ層が存在している場合を対象としている。そのため、この潤滑シミュレーションを行うためには、摺動面の変形が潤滑与える影響を考慮する弾性流体潤滑 (Elasto-Hydrodynamic Lubrication, EHL) による必要がある。

一般的に、EHL シミュレーションは次の

方程式群の連立問題になる。

- Reynolds 方程式：摺動面間の隙間におけるニュートン流体 (Newtonian fluid) の流れの方程式であり、流体潤滑の基礎式。
- 軸受材料表面の弾性変形式：潤滑膜圧力による摺動面の形状変形。
- 潤滑液のレオロジー特性式
 - 圧力による粘度変化。
 - せん断速度による粘度変化。
 - 圧力による密度変化。
- 力の釣り合いの式：潤滑膜圧力の積分値と負荷荷重との釣り合いの式。

B.4. Reynolds 方程式[7], [8]

Reynolds らは、粘性流体の運動方程式である Navier-Stokes の方程式を狭いすきまの流れに適用することによって、軸受内のくさび形液膜が流体力学的圧力を発生することを導いた。その方程式は Reynolds 方程式と呼ばれ、今日の流体潤滑理論の基礎となっている。この節では、この方程式の導出過程を示す。その過程において、Reynolds 方程式の適用条件を明らかにする。

流体運動は、連続の式 (質量保存則) と Navier-Stokes の式 (運動方程式) とによって記述される。連続の式は、流体の密度を ρ 、座標 (x, y, z) における流速を (u, v, w) 、時刻を t とすると、

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(\rho u) + \frac{\partial}{\partial y}(\rho v) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho w) = 0 \quad (2)$$

という式で表される。

また、流体がニュートンの粘性法則に従うとすると、Navier-Stokes の方程式は次のような式で表される。

$$\begin{aligned} \rho \frac{Du}{Dt} = F_x - \frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \lambda \left(\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{\partial w}{\partial z} \right) + 2\eta \frac{\partial u}{\partial x} \right\} \\ + \frac{\partial}{\partial y} \left\{ \eta \left(\frac{\partial v}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial y} \right) \right\} \\ + \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \eta \left(\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x} \right) \right\} \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \rho \frac{Dv}{Dt} = F_y - \frac{\partial p}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial y} \left\{ \lambda \left(\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{\partial w}{\partial z} \right) + 2\eta \frac{\partial v}{\partial y} \right\} \\ + \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \eta \left(\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial y} \right) \right\} \\ + \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \eta \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right) \right\} \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \rho \frac{Dw}{Dt} = F_z - \frac{\partial p}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \lambda \left(\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{\partial w}{\partial z} \right) + 2\eta \frac{\partial w}{\partial z} \right\} \\ + \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \eta \left(\frac{\partial w}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial z} \right) \right\} \\ + \frac{\partial}{\partial y} \left\{ \eta \left(\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial y} \right) \right\} \end{aligned} \quad (5)$$

ここで、 p は圧力、 (F_x, F_y, F_z) は体積力、 λ は体積粘性係数、 η はせん断粘性係数である。連続の式(2)と Navier-Stokes の式(3)~(5)から、流体潤滑の状態に則した仮定を設けて簡略化することで、流体潤滑の基礎式である Reynolds 方程式を導出する。

以下、Navier-Stokes の式の左辺を慣性項、右辺第1項を体積力項、第3項以降を粘性項と呼ぶ。体積力項は一般的には重力 ρg のみであり、これは潤滑現象にはほとんど影響しないため無視出来る。また、潤滑膜厚 h は潤滑面の代表寸法 L と比較して極めて小さく、 $\varepsilon = h/L$ は通常 10^{-3} 程度である。した

がって、粘性項のうち $\frac{\partial}{\partial z} \left(\eta \frac{\partial u}{\partial z} \right)$ および $\frac{\partial}{\partial z} \left(\eta \frac{\partial v}{\partial z} \right)$ 以外の項は、これら2項に比較して ε または ε^2 程度の微小項となり無視できる。さらに、膜厚が薄いため、膜厚方向の圧力変化は無視できると仮定すれば、Navier-Stokes の式は次のように簡略化できる。

$$\begin{aligned} \rho \frac{Du}{Dt} &= -\frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial z} \left(\eta \frac{\partial u}{\partial z} \right) \\ \rho \frac{Dv}{Dt} &= -\frac{\partial p}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial z} \left(\eta \frac{\partial v}{\partial z} \right) \\ \frac{\partial p}{\partial z} &= 0 \end{aligned}$$

この第1式・第2式には、左辺に慣性項、右辺に圧力項と粘性項が残っているが、慣性項は粘性項に比べ非常に小さく、慣性項の影響は無視することが可能である。それは次のように示される。まず、各変数の代表量を次のように定義する。

$$[x] = [y] = L : \text{代表寸法 [m]}$$

$$[z] = h : \text{流体膜厚 [m]}$$

$$[u] = [v] = U : \text{壁面速度 [m/s]}$$

$$[\rho] = \rho : \text{平均密度 [kg/m}^3\text{]}$$

$$[\eta] = \eta : \text{平均粘度 [Pa}\cdot\text{s]}$$

このとき、慣性項と粘性項の代表量はそれぞれ、

$$[\text{慣性項}] = \left[\rho \frac{Du}{Dt} \right] = \left[\rho \frac{Dv}{Dt} \right] = \frac{\rho U^2}{L}$$

$$[\text{粘性項}] = \left[\frac{\partial}{\partial z} \left(\eta \frac{\partial u}{\partial z} \right) \right] = \left[\frac{\partial}{\partial z} \left(\eta \frac{\partial v}{\partial z} \right) \right] = \frac{\eta U}{h^2}$$

となり、これらの比は、

$$\frac{[\text{慣性項}]}{[\text{粘性項}]} = \frac{\rho U^2 / L}{\eta U / h^2} = \frac{UL}{\eta} \left(\frac{h}{L} \right)^2$$

である。上述のように、 $\varepsilon = h/L \approx 10^{-3}$ であるから、 $(h/L)^2 \approx 10^{-6}$ となり慣性項が粘