

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 12 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2022

課題番号：17K05983

研究課題名(和文) 空中駆動する透明導電性高分子・ナノカーボンハイブリッドアクチュエータの研究

研究課題名(英文) Study of transparent conductive polymer/nanocarbon hybrid actuator

研究代表者

寺澤 直弘 (Naohiro, Terasawa)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・主任研究員

研究者番号：10357543

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：透明性、優れた耐熱性と安定性を有する、空中で駆動可能な、主に酸化・還元型の PEDOT・PSS イオン液体(IL)ゲルアクチュエータを開発した。次に申請者が研究してきた、電気二重層型、ナノカーボン/IL/BP(ベースポリマー)ゲルアクチュエータを参考に、PEDOT・PSS/ナノカーボン/ILハイブリッドアクチュエータ(酸化・還元型及び電気二重層型)を開発した。本研究の結果、ハイブリッドアクチュエータや透明電極アクチュエータ素子を開発する設計指針を示すことが可能になり、指触ディスプレイ等の開発において、画期的な成果が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

誘電エラストマーや圧電アクチュエータが数kVの高電圧で駆動するのに対し、PEDOT・PSSハイブリッドアクチュエータは100分の1の低電圧で駆動する。加えて、電磁アクチュエータやピエゾアクチュエータに比べ構造が単純なことから、微細化、軽量化、薄型化に適しており、イオン液体ゲルにすることにより、空气中で駆動する新規なEAPアクチュエータや人工筋肉として、センサやバルブ、スイッチ、ポンプ(工学)の他、能動カテーテルやガイドワイヤー(医療)、指触ディスプレイ(福祉)、パワーアシストスーツ(介護)等への応用が見通された。

研究成果の概要(英文)：This research presents the development of new hybrid-type poly(3,4-ethylenedioxythiophene) (PEDOT) actuators produced, in which both electrostatic double-layer (EDLC) and faradaic capacitors (FCs) occur simultaneously. The electrochemical and electromechanical properties of PEDOT:poly(4-styrenesulfonate)(PSS):PSS/ionic liquid (IL), and PEDOT:PSS/single-walled carbon nanotubes (SWCNTs)/IL actuators were developed. It is found that the PEDOT:PSS/SWCNT/IL actuator provides a better actuation strain performance, as its electrode is an electrochemical capacitor (EC) composed of an EDLC and FC. The PEDOT:PSS polymer helps produce a high specific capacitance, actuation strain and maximum generated stress that surpass the performance of a conventional PVdF(HFP) actuator. The flexible and robust films created by the synergistic combination of PEDOT and SWCNT may therefore have significant potential as actuator materials for wearable energy-conversion devices.

研究分野：electrochemical materials

キーワード：actuator

1. 研究開始当初の背景

近年、急速に進む少子高齢化の中、介護、福祉分野での人手不足は深刻な社会問題となっている。介護者を助け、また、被介護者の QOL (Quality of Life) を向上させるため、介護ロボットの開発、普及に大きな期待が寄せられている。これら介護ロボットは介護をする人間あるいは介護をされる人間と接する場面で使われることが多く、よりヒューマンフレンドリーなものが望まれる。このような観点から、従来の金属製のモーターやロボットアーム等に比べ、軽量で柔らかく、人間の筋肉のようにしなやかに作動することが可能な高分子アクチュエータがロボットの指や足等を動かす人工筋肉材料として注目されている。また、"Active Click"と呼ばれている、タッチパネルに触れたり、スイッチを操作したりした際に、クリック感をユーザーが感じられるようにして、操作時の信頼感を高める技術にも、アクチュエータ技術が注目されている。

導電性高分子を用いた電子素子の研究開発では、軽量でフレキシブル、安価なプラスチック・エレクトロニクスという新分野を拓いた[1]。現在、安定な導電性高分子材料の開発が盛んに行われており、プリントド・エレクトロニクスへの応用が期待されている。これまでに、ポリピロロールやポリアニリン、ポリチオフェン等さまざまな導電性高分子とその誘導体について系統的な研究が行われている[2]。例えば、Poly (3,4-ethylenedioxythiophene) /poly (4-styrenesulfonate) (PEDOT・PSS) (Fig.1)は代表的な導電性高分子であり、高い導電性と透明性、優れた耐熱性と安定性を有することから、帯電防止材や固体電解コンデンサー、有機ELのホール注入層などに幅広く用いられている。また、PEDOT、ポリピロロール(PPy)などの導電性高分子材料は、簡易なプロセスで合成が可能であり、また空気中においても比較的安定で取扱いの自由度が大きいことから、様々な分野でその応用が検討されており、これら導電性高分子は、高導電率、電気化学的に活性でドーブ/脱ドーブによる特性制御が可能という特徴がある。

このような背景の中、これまでに、SWCNT (単層カーボンナノチューブ) /IL/BP からなる複合体が、低電圧で空中駆動が可能な電気二重層型アクチュエータとして機能できることを見出し、研究を行ってきた[3-4]。このアクチュエータ素子は、IL と BP により調製されるゲル電解質膜を SWCNT/IL/BP からなる 2 枚の電極膜で挟んだ三層の素子構造を有している。そして両電極に電圧を印加すると、電解質ゲル中の IL の正、負イオンが各電極層に分かれて移動し、電極層が膨潤、伸縮して体積変化が起こり、駆動すると考えられている。またこれまでに、アクチュエータ素子に用いカーボン、IL や BP の種類を変えて素子を作製し、応答速度に優れ、大きな曲げや発生力を示す等の、高機能化の方法について検討してきた[5-7]。

[1] A. G. MacDiarmid, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 40 (2001) 2581-2590. [2] H. Okusaki, N. Ikeda, I. Kubota, T. Kuwabara, *Macromolecules*, 39 (2006) 4276-4278. [3] T. Fukushima, K. Asaka, A. Kosaka, T. Aida, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 44 (2005) 2410-2413. [4] K. Mukai, K. Asaka, K. Kiyohara, T. Sugino, I. Takeuchi, T. Fukushima, T. Aida, *Electrochim. Acta*, 53 (2008) 5555-5562. [5] I. Takeuchi, K. Asaka, K. Kiyohara, T. Sugino, N. Terasawa, K. Mukai, T. Fukushima, T. Aida, *Electrochim. Acta*, 54 (2008) 1762-1768. [6] N. Terasawa, I. Takeuchi, H. Matsumoto, K. Mukai, K. Asaka, *Sensors and Actuators B*, 156 (2011) 539-545. [7] N. Terasawa, N. Ono, Y. Hayakawa, K. Mukai, T. Koga, N. Higashi, K. Asaka, *Sensors and Actuators B*, 160 (2011) 161-167.

2. 研究の目的

高導電率、電気化学的に活性でドーブ/脱ドーブによる特性制御が可能という特徴がある、導電性高分子、PEDOT(ポリエチレンジオキシチオフェン)・PSS(ポリスチレンスルホン酸)に注目し、透明性、優れた耐熱性と安定性を有する、空中で駆動可能な、主に酸化・還元型の PEDOT・PSS イオン液体(IL)ゲルアクチュエータを開発する。次に申請者が研究してきた、電気二重層型、ナノカーボン/IL/BP(ベースポリマー)ゲルアクチュエータを参考に、PEDOT・PSS/ナノカーボン/IL ハイブリッドアクチュエータ(酸化・還元型及び電気二重層型)を開発する。本研究の結果、ハイブリッドアクチュエータや透明電極アクチュエータ素子を開発する設計指針を示すことが可能になり、指触ディスプレイ等の開発において、画期的な成果が示されると考えられる。

3. 研究の方法

・空中で駆動可能な、主に酸化・還元型の PEDOT・PSS イオン液体ゲルアクチュエータ及び PEDOT・PSS/IL/ナノカーボンハイブリッドアクチュエータ(酸化・還元型及び電気二重層型)の開発のため、市販の PEDOT・PSS、ナノカーボン及びイオン液体を用い、指触ディスプレイ等のアクチュエータに適用可能な、応答速度に優れ、大きな曲げや発生力を示す等の、優れたアクチュエータ素子を開発する。

・上記のアクチュエータ素子の電気化学的評価を行うことにより、シナジー効果を含めた、応答メカニズムを解明して、素子の高機能化の方針を示し、さらにアクチュエータ素子を総合的に検討し、指触ディスプレイ等のアクチュエータに適用可能な、素子を開発する設計指針を示す

4. 研究成果

1) 空中で駆動可能な、主に酸化・還元型の PEDOT・PSS イオン液体ゲルアクチュエータ及び PEDOT・PSS/IL/ナノカーボンハイブリッドアクチュエータ(酸化・還元型及び電気二重層型)の開発のため、市販の PEDOT・PSS、ナノカーボン及びイオン液体を用い、指触ディスプレイ等のアクチュエータに適用可能な、応答速度に優れ、大きな曲げや発生力を示す等の、優れたアクチュエータ素子を開発した。上記のアクチュエータ素子の PEDOT・PSS/ナノカーボン/IL ゲル、アクチュエータ素子電気化学的データを中心として、IL の導電率や粘度等の基礎物性、IL のサイズや解離度等を考察して、応答メカニズムについて考察した。さらに、上記のアクチュエータ素子の電気化学的評価を行うことにより、シナジー効果を含めた、応答メカニズムを解明して、素子の高機能化の方針を示し、さらにアクチュエータ素子を総合的に検討し、指触ディスプレイ等のアクチュエータに適用可能な、素子を開発する設計指針を示せた。また、誘電エラストマーや圧電アクチュエータが数 kV の高電圧で駆動するのに対し、PEDOT・PSS ハイブリッドアクチュエータは 100 分の 1 の低電圧で駆動する。加えて、電磁アクチュエータやピエゾアクチュエータに比べ構造が単純なことから、微細化、軽量化、薄型化に適しており、イオン液体ゲルにすることにより、空气中で駆動する新規な EAP アクチュエータや人工筋肉として、センサやバルブ、スイッチ、ポンプ(工学)の他、能動カテーテルやガイドワイヤー(医療)、指触ディスプレイ(福祉)、パワーアシストスーツ(介護)等への応用が見通せた。

2) 今までのナノカーボン/IL/PEDOT・PSS ゲルアクチュエータに用いられたイオン液体等を勘案し、市販等の PEDOT・PSS 及びイオン液体、加えて、研究室合成したイオン液体を用いて、最適の組み合わせ及び構成比を示した。次に PEDOT・PSS/ナノカーボン/IL/エチレングリコールゲルアクチュエータを用いて、シナジー効果が期待できる空中駆動可能なハイブリッドア

クチュエータ(酸化・還元型及び電気二重層型)の開発のため、市販等の PEDOT・PSS、ナノカーボン及びイオン液体を用い、指触ディスプレイ、パワーアシストスーツ等のアクチュエータに適用可能な、応答速度に優れ、大きな曲げや発生力を示す等の、優れた透明アクチュエータ素子の一例を開発できた。左記の実験の中で得られる、PEDOT・PSS/ナノカーボン/ILゲル及び PEDOT・PSS/ナノカーボン/IL/エチレングリコールゲルアクチュエータ素子を電気化学的データを中心として、ILの導電率や粘度等の基礎物性、ILのサイズや解離度等を考察して、応答メカニズムについて考察した。さらに、上記のアクチュエータ素子の電気化学的評価を行うことにより、シナジー効果を含めた、応答メカニズムを解明して、素子の高機能化の方針を示し、さらにアクチュエータ素子を総合的に検討し、指触ディスプレイ等のアクチュエータに適用可能な、素子を開発する設計指針を示せた。また、誘電エラストマーや圧電アクチュエータが数kVの高電圧で駆動するのに対し、PEDOT・PSSハイブリッドアクチュエータは100分の1の低電圧で駆動する。加えて、電磁アクチュエータやピエゾアクチュエータに比べ構造が単純なことから、微細化、軽量化、薄型化に適しており、イオン液体ゲルにすることにより、空気中で駆動する新規なEAPアクチュエータや人工筋肉として、センサやバルブ、スイッチ、ポンプ(工学)の他、能動カテーテルやガイドワイヤー(医療)、指触ディスプレイ(福祉)、パワーアシストスーツ(介護)等への応用が見通せた。

3) 半透明で空中で駆動可能な、応答速度に優れ、大きな曲げや発生力を示す等の、優れた PEDOT・PSS/イオン液体/セルロースナノファイバーハイブリッドアクチュエータ(酸化・還元型及び電気二重層型)アクチュエータ素子を開発した。さらに、上記のアクチュエータ素子の電気化学的評価を行うことにより、応答メカニズムを解明して、素子の高機能化の方針を示し、さらにアクチュエータ素子を総合的に検討し、指触ディスプレイ等のアクチュエータに適用可能な、素子を開発する設計指針を示せた。また、誘電エラストマーや圧電アクチュエータが数kVの高電圧で駆動するのに対し、PEDOT・PSSハイブリッドアクチュエータは100分の1の低電圧で駆動する。加えて、電磁アクチュエータやピエゾアクチュエータに比べ構造が単純なことから、微細化、軽量化、薄型化に適しており、イオン液体ゲルにすることにより、空気中で駆動する新規なEAPアクチュエータや人工筋肉として、センサやバルブ、スイッチ、ポンプ(工学)の他、能動カテーテルやガイドワイヤー(医療)、指触ディスプレイ(福祉)、パワーアシストスーツ(介護)等への応用が見通せた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 11件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Terasawa Naohiro	4. 巻 343
2. 論文標題 High-performance TEMPO-oxidised cellulose nanofibre/PEDOT:PSS/ionic liquid gel actuators	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Sensors and Actuators B: Chemical	6. 最初と最後の頁 130105 ~ 130105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.snb.2021.130105	査読の有無 有
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 Terasawa Naohiro	4. 巻 261
2. 論文標題 Effect of ruthenium on superior performance of cellulose nanofibers/poly(3,4-ethylenedioxythiophene):poly(4-styrenesulfonate)/ruthenium oxide/ionic liquid actuators	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Synthetic Metals	6. 最初と最後の頁 116306 ~ 116306
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.synthmet.2020.116306	査読の有無 有
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 Terasawa Naohiro	4. 巻 36
2. 論文標題 Self-Standing High-Performance Transparent Actuator Based on Poly(dimethylsiloxane)/TEMPO-Oxidized Cellulose Nanofibers/Ionic Liquid Gel	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 6154 ~ 6159
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.0c00559	査読の有無 有
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 Terasawa Naohiro, Asaka Kinji	4. 巻 8
2. 論文標題 Performance enhancement of PEDOT:poly(4-styrenesulfonate) actuators by using ethylene glycol	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 17732 ~ 17738
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8ra02714e	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Terasawa Naohiro, Asaka Kinji	4. 巻 8
2. 論文標題 Self-standing cellulose nanofiber/poly(3,4-ethylenedioxythiophene):poly(4-styrenesulfonate)/ionic liquid actuators with superior performance	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 33149 ~ 33155
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8ra06981f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Terasawa Naohiro, Asaka Kinji	4. 巻 9
2. 論文標題 High-performance cellulose nanofibers, single-walled carbon nanotubes and ionic liquid actuators with a poly(vinylidene fluoride-co-hexafluoropropylene)/ionic liquid gel electrolyte layer	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 8215 ~ 8221
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8ra10221j	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Terasawa Naohiro	4. 巻 95
2. 論文標題 Electrochemical and electromechanical properties of high-performance fluoropolymer/ionic liquid (with wide electrochemical window of 6?V) gel hybrid actuators based on single-walled carbon nanotubes	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Diamond and Related Materials	6. 最初と最後の頁 77 ~ 82
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.diamond.2019.04.002	査読の有無 有
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 Terasawa Naohiro, Asaka Kinji	4. 巻 248
2. 論文標題 Superior performance of PEDOT:Poly(4-styrenesulfonate)/vapor-grown carbon fibre/ionic liquid actuators exhibiting synergistic effects	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Sensors and Actuators B: Chemical	6. 最初と最後の頁 273 ~ 279
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.snb.2017.03.174	査読の有無 有
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 Terasawa Naohiro, Asaka Kinji	4. 巻 255
2. 論文標題 High-performance graphene oxide/vapor-grown carbon fiber composite polymer actuator	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Sensors and Actuators B: Chemical	6. 最初と最後の頁 2829 ~ 2837
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.snb.2017.09.100	査読の有無 有
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 Terasawa Naohiro	4. 巻 257
2. 論文標題 High-performance transparent actuator made from Poly(dimethylsiloxane)/Ionic liquid gel	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Sensors and Actuators B: Chemical	6. 最初と最後の頁 815 ~ 819
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.snb.2017.11.003	査読の有無 有
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 Terasawa Naohiro	4. 巻 126
2. 論文標題 Nanocomposite electrodes using highly conductive sub-millimetre-long single-walled carbon nanotubes pasted with PEDOT:PSS and high-performance actuators	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Diamond and Related Materials	6. 最初と最後の頁 109039 ~ 109039
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.diamond.2022.109039	査読の有無 有
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8件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 寺澤 直弘
2. 発表標題 High Performance of Cellulose Nanofibers/poly(3,4-ethylenedioxythiophene):poly(4-styrenesulfonate)/ ruthenium oxide/ionic liquid Actuators
3. 学会等名 Euro EAP2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 寺澤 直弘
2. 発表標題 High Performance of Cellulose Nanofibers/poly(3,4-ethylenedioxy-thiophene):poly(4-styrenesulfonate)/metal oxide/ionic liquid Actuators
3. 学会等名 SEIA'2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 寺澤 直弘
2. 発表標題 高機能ポリシラン・イオン液体ゲル透明アクチュエータ
3. 学会等名 第28回ポリマー材料フォーラム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 寺澤 直弘
2. 発表標題 Fluoropolymer/ionic liquid (with wide electrochemical window of 6 V) gel hybrid actuators based on single-walled carbon nanotubes
3. 学会等名 第29回日本MRS年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 寺澤 直弘、安積 欣志
2. 発表標題 High-performance ionic and non-ionic fluoropolymer/ionic liquid (with quaternary cation and perfluoroalkyltrifluoroborate anion) gel hybrid actuators with electrochemical window of 6 V
3. 学会等名 ANM2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 寺澤 直弘、安積 欣志
2. 発表標題 Electrochemical and electromechanical properties of high-performance fluoropolymer/ionic liquid (with wide electrochemical window of 6 V) gel hybrid actuators based on single-walled carbon nanotubes
3. 学会等名 The 29th International Conference on Diamond and Carbon Materials (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 寺澤 直弘
2. 発表標題 ポリシラン・イオン液体ゲル透明アクチュエータ
3. 学会等名 第67回高分子討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 寺澤 直弘、安積 欣志
2. 発表標題 Cellulose Nanofibers/Poly(3,4-ethylenedioxythiophene): Poly(4-styrenesulfonate)/Ionic Liquid Actuators
3. 学会等名 第28回日本MRS年次大会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 導電性薄膜、積層体、アクチュエータ素子及びその製造方法	発明者 寺澤直弘	権利者 国立研究開発法人産業技術総合研究所
産業財産権の種類、番号 特許、特願2018-121455	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計1件

産業財産権の名称 透明な積層体及び透明ゲルアクチュエータ素子並びにその製造法	発明者 寺澤直弘	権利者 国立研究開発法人産業技術総合研究所
産業財産権の種類、番号 特許、特 7079463	取得年 2022年	国内・外国の別 国内

〔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
---------	---------