

令和 4 年 6 月 17 日現在

機関番号：13701

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02094

研究課題名(和文) コンポジットとスーパーキャパシタによるソフトアクチュエータ高発生力化技術の開発

研究課題名(英文) Technological enhancement of force generation of composite-based supercapacitor-type soft actuator

研究代表者

佐々木 実 (Sasaki, Minoru)

岐阜大学・航空宇宙生産技術開発センター・特任教授

研究者番号：20183379

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,900,000円

研究成果の概要(和文)：チタン酸バリウム(BaTiO₃)を充填しナノクレイ(NC)を添加した誘電エラストマー(ポリウレタン：PU)において、界面活性剤の添加がBaTiO₃やNCの分散性、誘電率や絶縁破壊電場、DEA性能に与える影響に関し調査した。チタン酸バリウム充填ポリウレタン(BaTiO₃/PU)の8V/μmでのひずみは、界面活性剤添加系においてBaTiO₃の複合によって無充填PUのそれよりも大きくなることが分かった。また、NCを添加したチタン酸バリウム充填ポリウレタン(BaTiO₃/NC/PU)の絶縁破壊電場は、界面活性剤無添加系においてNCの添加によってBaTiO₃/PUのそれよりも高くなることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、ソフトアクチュエータの一種である誘電エラストマーアクチュエータ(DEA)の実用化を阻む本質的問題点(低発生力)を解決することを目的に、「高剛性化」、「低起動電界化」、「高絶縁耐力化」に基づく入力電界範囲拡張を目指すものである。また、同時に機械的動特性と電気的特性も明らかにし、セルセンシング・アクチュエーションの可能性も明らかにした。これらの得られた知見は複合系DEAの現象理解を促進するものであり、センサーとアクチュエータ両方の機能をもった革新的なソフトアクチュエータとしての可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：In a dielectric elastomer (polyurethane: PU) filled with barium titanate (BaTiO₃) and added with nanoclay (NC), the effect of the addition of a surfactant on the dispersibility, dielectric constant, insulation breakdown electric field, and DEA performance of BaTiO₃ and NC. Was investigated. It was found that the strain of barium titanate-filled polyurethane (BaTiO₃ / PU) at 8 V / μm was larger than that of unfilled PU due to the composite of BaTiO₃ in the surfactant-added system. It was also found that the insulation breakdown electric field of barium titanate-filled polyurethane (BaTiO₃ / NC / PU) with NC added was higher than that of BaTiO₃ / PU with the addition of NC in the system without surfactant.

研究分野：ソフトアクチュエータ

キーワード：ソフトアクチュエータ 誘電エラストマーアクチュエータ マイクロ・ナノコンポジット スーパーキャパシタ 高発生力化

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ソフトアクチュエータの一種である誘電エラストマーアクチュエータ (DEA, 図1) は他のアクチュエータに比べ柔軟かつ軽量という利点を有しているが、起動に必要な電圧 (起動電圧) が非常に高いうえに、発生力が小さいため、実用化には程遠い。現状、前記問題の解決に向けた研究の主流は、変形層薄膜化 (下記の式(1)参照) や素子構造の工夫であり、これまでに数多くの研究が実施されてきたが、いずれの研究結果も実用レベルには遠く及んでいない。

$$F = \frac{1}{2}QE = \frac{1}{2}\epsilon A \cdot E^2 \quad \left(E = \frac{V}{d} \right) \quad \dots (1)$$

F [N]: 静電引力 (発生力), Q [C]: 電荷, E [V/m]: 電界
 ϵ [F/m]: 誘電率, A [m²]: 電極の表面積, V [V]: 電圧
 d [m]: 電極間距離 (変形層の膜厚)

2. 研究の目的

上記の通り、DEA の実用化を阻む本質的な問題は発生力の低さにあり、その要因は DEA の剛性の低さと入力電界範囲の狭さにある。本研究では、これらの問題を抜本的に解決するために、DEA の高剛性化と入力電界範囲拡張 (図2) の同時実現を目指す。具体的には、まず、エラストマーに誘電粉体とナノクレイを複合したマイクロ・ナノコンポジット変形層を作製し、粉体による高剛性化と低起動電界化 (入力範囲下限の拡張, 誘電率上昇に基づく) に加え、クレイによる絶縁耐力向上 (入力範囲上限の拡張) を達成する。一般に高剛性化は変形量低下を招くが、本研究では変形量を維持しつつ高発生力化する。最終的に、本研究では複合形態と誘起電荷・絶縁耐力の関係、ひいては複合形態と変形量との関係を解明する。

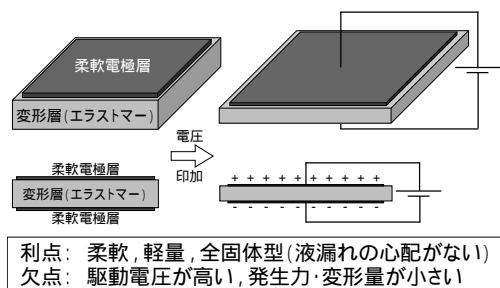


図1 DEA構造と変形 (上: 俯瞰図, 下: 断面図)

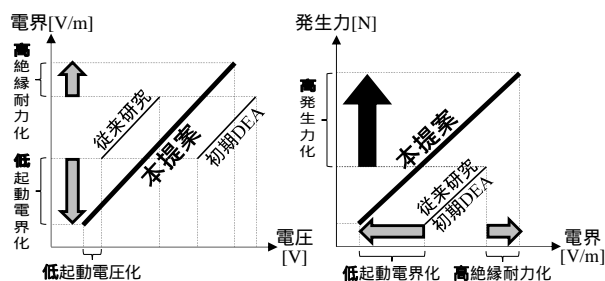


図2 本提案の特長 (左: 電界 vs. 電圧, 右: 発生力 vs. 電界)

3. 研究の方法

(1) 溶媒キャスト法による誘電エラストマー膜の作製

ポリウレタン膜: 誘電エラストマーの1種であるポリウレタン (PU) を 27vol% でクロロホルムに溶解させた溶液 (界面活性剤を添加する場合には TritonX-100 (以降, Triton) をクロロホルムに対し 2wt% 添加) を自転公転ミキサー (THINKY 製: あわとり練太郎: ARE-310) により 2000rpm で 30min 攪拌・混合した。その後、この混合溶液をガラス製容器 (縦: 100mm, 横: 100mm, 高さ: 40mm) 上に流延し、大気中において 24h, 真空乾燥機 (三商製: 真空定温乾燥器: SVD30P) で真空中 (ゲージ圧: -0.1MPa) 50°C において 72h 乾燥させ、膜を得た。

誘電粉体 (チタン酸バリウム) 複合 PU 膜およびナノクレイ複合 PU 膜: PU を 27vol% でクロロホルムに溶解させた溶液 (界面活性剤を添加する場合には Triton をクロロホルムに対し 2wt% 添加) にチタン酸バリウム (BaTiO₃) もしくはナノクレイ (NC) を固体全量 (ここでは, PU+BaTiO₃ もしくは PU+NC の意) に対し任意の体積分率で加えた混合溶液を作製し、これを攪拌・混合, 流延, 乾燥 (条件は上記と同様) することにより膜を得た。なお、チタン酸バリウムを複合した場合、その固体全量に対する体積分率を 15.0 vol%, 20.0 vol%, 30.0 vol%, 40.0 vol% とし、同じくナノクレイの場合には 0.5 vol%, 2.5 vol%, 4.0 vol% とした。

チタン酸バリウム・ナノクレイ複合 PU 膜: PU を 27vol% でクロロホルムに溶解させた溶液 (界面活性剤を添加する場合には Triton をクロロホルムに対し 2wt% 添加) にチタン酸バリウムを固体全量 (ここでは, BaTiO₃+NC+PU の意) に対し 15.0 vol%, 同じくナノクレイを任意の体積分率 (0.5 vol%, 2.5 vol%, 4.0 vol%) で加えた混合溶液を作製し、これを攪拌・混合, 流延, 乾燥 (条件は上記と同様) することにより膜を得た。

(2) 誘電エラストマーアクチュエータ (DEA) の作製

上記(1)で作製した誘電エラストマー膜を短冊状 (長さ 50 mm, 幅 20 mm) に切断し、その両面に柔軟電極としてカーボングリースを塗布することにより DEA を得た。

(3) DEA の物性および性能の評価

弾性率 Y : テンシロン万能試験機 (エー・アンド・デイ製: RTG-1310) により引張試験を行い、得られた応力 - ひずみ曲線から弾性率 E を算出した。なお、本実験では最大荷

重 50N のロードセル (エー・アンド・デイ製 : UR-50N-D) を用い , チャック間距離 30 mm , 引張速度 200 mm/min の条件で試験を行った .

誘電率 ϵ_r : LCR メータ (エヌエフ回路設計ブロック製 : ZM2371) により周波数 1000Hz における複素インピーダンスを測定し , その値を元に誘電率 ϵ_r を算出した . 試験片には上記(1)で作製した膜を円形 (直径 25 mm) に切断したものを使用し , 主電極には真鍮製円形電極 (直径 13 mm , 厚さ 1.5 mm) , ガード電極には真鍮製リング型電極 (内径 19 mm , 外径 25 mm , 厚さ 1.5 mm の真鍮) , 対電極には真鍮製円形電極 (直径 25 mm , 厚さ 1.5 mm) を用いた . なお , 本測定では AC 電圧を常に 1V で印加し , 周波数 10Hz - 100 kHz で測定を行った .

ひずみ s : 一般的に DEA は , 静電引力によって膜厚方向に圧縮され面方向へ伸張するとともに , 変形に伴う力を生じる . 本来は変形量と力を同時に測定することが望ましいが , これが困難であったため , 本研究ではレーザ変位計 (キーエンス製 : LKH085) により測定した長手方向変位から算出した長手方向ひずみ s を発生応力 σ に読み替えた ($\sigma=Y \cdot s$ であるため) . 実験においては , 上記(2)で作製した DEA の一端をクランプで掴み , 他端に重り (質量は試料の比例限荷重値よりも小さい) を吊るし後 , 重りにレーザが当たるようにレーザ変位計を設置し , 高圧電源 (松定プレジジョン製 : HAR-300W) により電圧を印加した時の DEA の変位を調べた (図 3) . なお , 本実験ではファンクションジェネレータ (エヌエフ回路設計ブロック製 : WF1973) を使用し , 一定の電圧印加速度 (0.2 kV/s) で実験を行った . また , 電圧や電流 , ひずみはデータロガー (HIOKI 製 : LR8400 , サンプルング周期 0.1 s) により記録した .

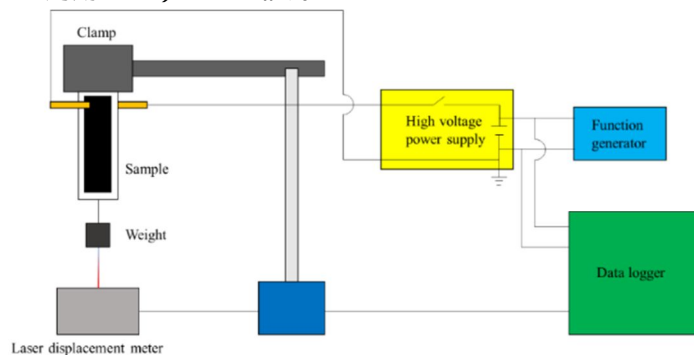


図 3 DEA の長手方向変位測定の様式図

4 . 研究成果

まず , PU に BaTiO₃ を充填することにより , チタン酸バリウム充填ポリアウレタン (BaTiO₃/PU) を作製し , その物性および DEA 性能を評価した . その結果 , 界面活性剤無添加の BaTiO₃/PU は PU 単体よりも高弾性率化 (図 4 の橙色プロット) および高誘電率化 (図 5 の橙色プロット) するが , PU 内でのチタン酸バリウムの分散性を向上させるために界面活性剤を添加した BaTiO₃/PU は PU 単体と同等の弾性率 (図 4 の水色プロット) を示しながら , PU 単体よりも高誘電率 (図 5 の水色プロット) となることが分かった .

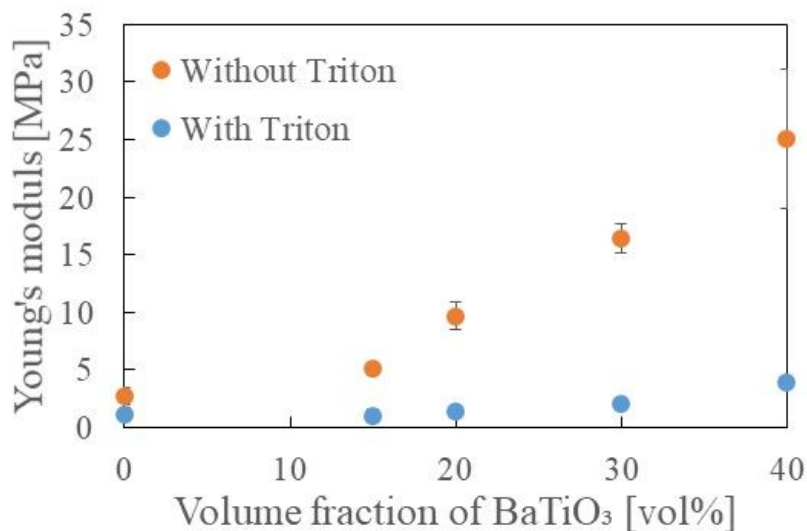


図 4 BaTiO₃/PU の弾性率に対する BaTiO₃ 体積分率の影響

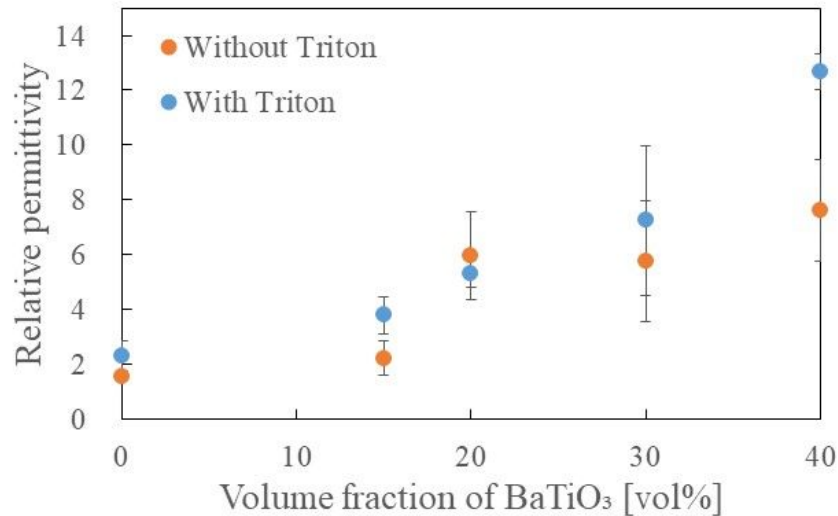


図5 BaTiO₃/PU の誘電率に対する BaTiO₃ 体積分率の影響

また、これらをまとめて駆動量指標（図6：規格化誘電率を規格化ヤング率で除した値）として評価した場合、界面活性剤無添加の BaTiO₃/PU（図6の橙色プロット）ではその指標が1.0以下になるが、界面活性剤を添加した BaTiO₃/PU（図6の水色プロット）では指標が1.5程度になることが分かった。換言すれば、前者では DEA の駆動ひずみが PU 単体のときよりも小さくなるが、後者ではそれが PU 単体の時の1.5倍程度になる可能性があると分かる。

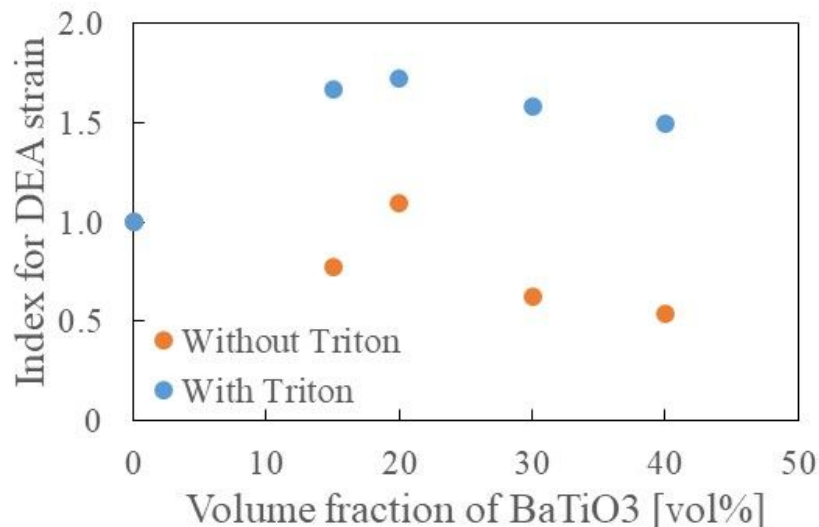


図6 BaTiO₃/PU の駆動量指標に対する BaTiO₃ 体積分率の影響

次に、BaTiO₃を充填しNCを添加したPU (BaTiO₃/NC/PU)を作製し、そのDEA性能を調査した。その結果、BaTiO₃/NC/PUの8V/μmでのひずみは、界面活性剤の添加（図7の水色プロット）により、PU単体（図7の破線）よりも大きくなることが分かった。これは、界面活性剤添加による弾性率低下ならびに比誘電率増加の影響である。

また、BaTiO₃/NC/PUの絶縁破壊電場は、界面活性剤無添加系（図8の橙色プロット）ではBaTiO₃/PU（図8の橙色プロットの左端の値）の約1.2倍となるが、界面活性剤添加系（図8の水色プロット）では、NCを添加してもNC無添加（つまり、BaTiO₃/PU：図8の水色プロットの左端の値）と同等となることが分かった。ここで、前者に関しては、NCによる電気トリー進展抑制の効果であると考えている。一方、後者に関しては、界面活性剤による絶縁破壊電場の低下（本報告では割愛するが、本研究により判明）が、NCによる絶縁破壊電場向上の効果を打ち消したためであると考えている。

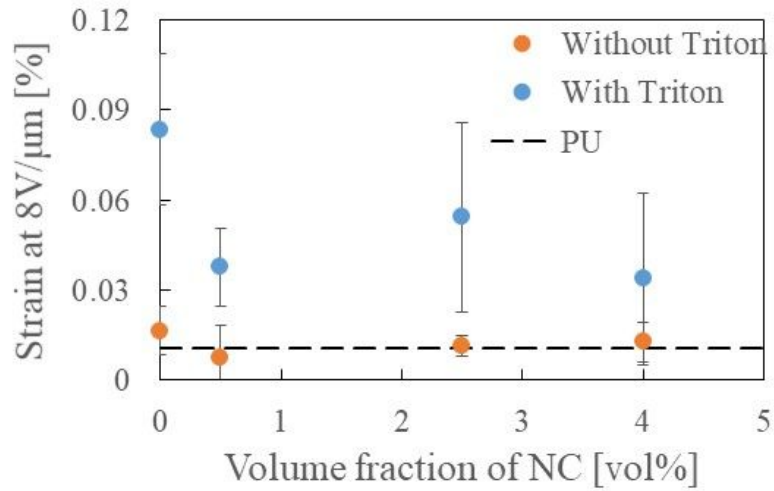


図7 BaTiO₃/NC/PU に 8 V/μm の電場を印加した際の長手方向ひずみ

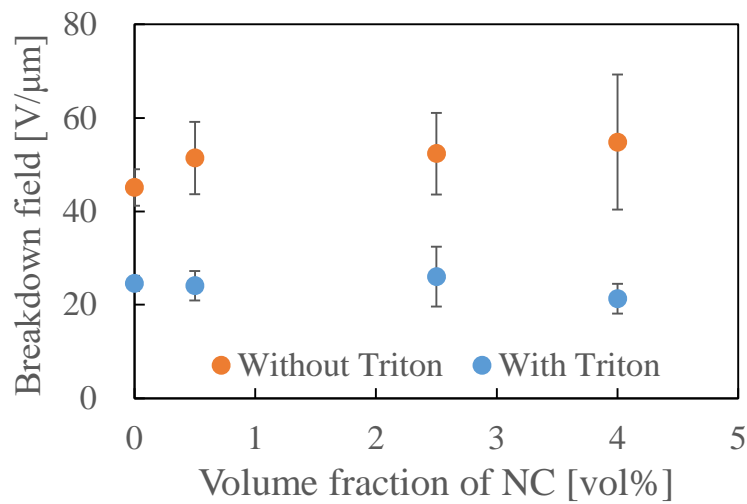


図8 BaTiO₃/NC/PU の絶縁破壊電場

以上、本研究ではPUにBaTiO₃とNCを複合したマイクロ・ナノコンポジット変形層を作製し、BaTiO₃による高剛性化と高誘電率化（低起動電界化）に加え、クレイによる絶縁耐力向上（入力範囲上限の拡張）を達成した。また、同時に、界面活性剤添加の効果についても解明した。得られた知見は複合材料系DEAの現象理解を促進するものである。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Mulembo Titus, Njeri Waweru, Nagai Gakuji, Tamagawa Hirohisa, Naito Keishi, Nitta Takahiro, Sasaki Minoru	4. 巻 9
2. 論文標題 Linear-Quadratic Regulator for Control of Multi-Wall Carbon Nanotube/Polydimethylsiloxane Based Conical Dielectric Elastomer Actuators	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Actuators	6. 最初と最後の頁 18 ~ 18
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/act9010018	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 該当する
1. 著者名 Titus Mulembo, Waweru Njeri, Gakuji Nagai, Hirohisa Tamagawa, Keishi Naito, Takahiro Nitta and Minoru Sasaki	4. 巻 Volume 6, Issue 3
2. 論文標題 Linear Quadratic integral control of multiwall carbon nanotube-based Conical Dielectric Elastomer Actuator	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Sustainable Research in Engineering	6. 最初と最後の頁 1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 該当する
1. 著者名 Mulembo Titus, Nagai Gakuji, Tamagawa Hirohisa, Nitta Takahiro, Sasaki Minoru	4. 巻 136
2. 論文標題 Conductive and flexible multi walled carbon nanotube/polydimethylsiloxane composites made with naphthalene/toluene mixture	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Applied Polymer Science	6. 最初と最後の頁 48167 ~ 48167
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/app.48167	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 該当する
1. 著者名 Mulembo Titus, Njeri Waweru, Nagai Gakuji, Tamagawa Hirohisa, Naito Keishi, Nitta Takahiro, Sasaki Minoru	4. 巻 9
2. 論文標題 Linear-Quadratic Regulator for Control of Multi-Wall Carbon Nanotube/Polydimethylsiloxane Based Conical Dielectric Elastomer Actuators	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Actuators	6. 最初と最後の頁 18 ~ 35
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/act9010018	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 該当する

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 広瀬領祐, 屋代如月, 内藤圭史
2. 発表標題 チタン酸バリウムを複合した誘電エラストマーアクチュエータにおける界面活性剤の添加効果
3. 学会等名 第20回産官学接着若手フォーラム(2021.12.17 オンライン)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Minoru Sasaki
2. 発表標題 Self-Sensing Control of Electroactive Polymer
3. 学会等名 Composite Materials Congress , Advanced Materials Lecture Series, Online LIVE Session 23: Polymer Science and Technology, (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022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
研究分担者	新田 高洋 (Nitta Takahiro) (20402216)	岐阜大学・工学部・准教授 (13701)	
研究分担者	内藤 圭史 (Naito Keiji) (50759339)	岐阜大学・工学部・助教 (13701)	
研究分担者	玉川 浩久 (Tamagawa Hirohisa) (60324282)	岐阜大学・工学部・准教授 (13701)	

6. 研究組織（つづき）

	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
研究分担者	永井 学志 (Nagai Gakuji) (90334359)	岐阜大学・工学部・准教授 (13701)	

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			
ケニア	Dedan Kimathi University of Technology			