

令和 3 年 5 月 31 日現在

機関番号：15301

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2020

課題番号：19K21946

研究課題名(和文)真なる人間支援を目指すポリマー系/カーボンナノチューブ複合繊維軽量人工筋肉の開発

研究課題名(英文) Development of lightweight artificial muscle with polymer threads and carbon nanotube yarn towards true human support

研究代表者

林 靖彦 (Hayashi, Yasuhiko)

岡山大学・自然科学研究科・教授

研究者番号：50314084

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：カーボンナノチューブ(CNT)ウェブに電流を印加して発生するジュール熱を使い、エラストマー系を伸縮させる人工筋肉の実現には、これまでに培ってきた「硬い」アクチュエータ機構の概念は利用できない。このため、やわらかなエラストマーと電気・熱などの外部刺激をどのように複合化するかなど設計・作製について研究を行った。CNTの弾性率がエラストマーに比べ大きく、このためエラストマー系の延伸が妨げられ、伸縮動作が十分に発揮できない問題が明らかになった。このため、CNTウェブをエラストマー系に巻き付ける方法を提案し、その作製条件の最適化することで、生体筋やナイロン6,6系に比べて大きな発生力を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、カーボンナノチューブ(CNT)ウェブをエラストマー系に巻き付ける方法で複合化した人工筋肉の実現を目指している。大きな変位と高出力を実現する複合構造を検討し、ベンチマークとなる生体筋やナイロン6,6(ポリマー系)に比べて大きな発生力を実現した。CNTウェブに電流を印加し発生するジュール熱で、細いエラストマー系が伸長収縮動作する新たな動力源となり、柔軟、機械駆動装置や金属を使うことなく大きく伸縮し、軽量で高い出力を同時実現できる。柔らかさと曲げなど適応性を限りなく追究した人型ロボットの要素技術の確立につながり、ロボットやパワーアシストスーツなどによる人間支援の要求に資する技術である。

研究成果の概要(英文)：To realize an artificial muscle that stretches and contracts elastomeric yarns using Joule heat generated by applying an electric current to carbon nanotube (CNT) webs, the concept of a "stiff" actuator mechanism, which has been developed so far, cannot be used. The elastic modulus of the CNTs is larger than that of the elastomer, which prevents the elastomeric yarn from stretching and thus prevents the elastomeric yarn from stretching sufficiently. In order to solve this problem, we proposed a method of wrapping CNT webs around elastomeric yarns, and by optimizing the fabrication procedures, we were able to achieve higher force generation than that of bio-muscular or nylon 6,6 yarns.

研究分野：ナノ材料・ナノ物性

キーワード：人工筋肉 カーボンナノチューブ紡績糸 ポリマー系 エントロピー弾性

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

医療・福祉分野で、ロボットやパワーアシストスーツなどによる人間支援の要求が急速に高まっているが、従来のモーター技術では人間のような繊細でやわらかな動きはできない。このため、空気圧や水圧で膨張する人工筋肉(ソフトアクチュエータ)が開発されているが、高電圧機器やコンプレッサーなど大型で重い外部装置が必要で実用化のレベルでは無い。新たな動力源としてポリマー材料から構成される人工筋肉が実現できれば、低消費電力(熱に変換)で動作し、柔軟、機械駆動装置や金属を使わないため静音で大きく伸縮し、軽量で高い出力を同時に実現することが期待されている[1]。シリコンゴムを母材とし、エタノールを含む微小気泡とで構成される人工筋肉に細い抵抗線で低電圧を加え、自重の1000倍の重量を持ち上げる報告以降[2]、国内外で低コストかつ簡単に製作できるこの人工筋肉の研究が活発に進められているが、再現するに至っていない。これまでに培ってきた「硬い」アクチュエータ機構の概念は利用できず、やわらかなポリマーと電気・熱などの外部刺激をどのように複合化するかなど設計・作製について体系的に研究が行われてない。

研究代表者等は、世界に先駆けて開発した糸径5mm以下の2層カーボンナノチューブ(CNT)紡績糸、2層CNT分散液から作製するCNT膜に電流を印加すると僅かなジュール熱が発生し、その熱を外部刺激源とし、ポリマー糸が伸長収縮動作することを明らかにしてきた。実用化には、外部刺激に対して十分な変位量と発生力が必要不可欠であるが、実現には至っていない。このため、系統的な研究を進め2層CNT/ポリマー系複合繊維人工筋肉の設計指針を提案する必要がある。

### 2. 研究の目的

細い2層CNT紡績糸もしくは2層CNTフォレストから引き出したウェブに電流を印加し発生するジュール熱で、細いポリマー糸が伸長収縮動作するメカニズムを利用して、低消費電力で大きな伸縮性、高い出力・運動適応能力、外部装置無し、重くかさばる金属線を熱源に使わない、超軽量複合繊維人工筋肉を実現する。達成目標は、圧倒的な優位性と競争力が示される、生体筋の最大発生力の約5倍程度で、室温から100℃への加熱で収縮による大変位を実現する技術獲得に挑戦し、柔らかさと曲げなど適応性を限りなく追究した人型ロボットの要素技術を申請者等がいち早く開発する。

このため、長尺・高密度2層CNT(本提案の理想的なナノ構造)の選択合成技術、ドライプロセスで基板から連続的に引き出すCNTウェブ(図1を参照)とポリマー系の複合化技術、結晶性ポリマー合成からポリマー系作製技術を開発する。

### 3. 研究の方法

ドライプロセスでCNTウェブを作製できる、長尺・高密度CNTフォレストを合成する必要がある。本研究では、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}$ 基板上に蒸着により極薄膜の鉄を形成した。鉄薄膜を成膜した基板を熱化学気相成長(CVD)装置内に導入し、低温でアニールすることで鉄薄膜に残留する水分や有機物を除去し、基板温度350-500℃の水素雰囲気下で鉄薄膜からナノ粒子化(触媒金属)を誘起する。その後、炭化水素ガスを導入して基板温度550-650℃でCNTフォレストを合成する。2層CNTの収率を上げるために、CVD合成条件(昇温速度、ガス導入温度、チャンパー内圧力)の最適化を行った。

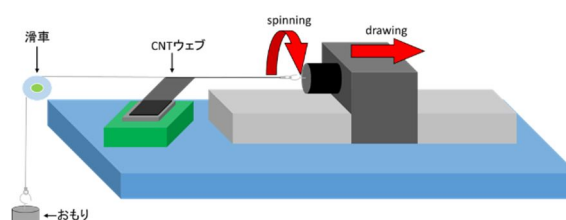


図1. 2層CNTフォレストからのCNTウェブとエラストマー系の複合化技術

合成したCNTの層数やチューブ径、チューブ先端構造などの評価は、透過型電子顕微鏡(TEM)により行った。また、ラマン分光測定により、CNTの構造および品質を評価した。

合成したCNTフォレストから直接CNTを引き出し、CNTウェブを作製した。ポリマー糸として、主成分がポリエチレンから構成される糸径が500μm約ポリオレフィン系エラストマー系を人工筋肉の概念実証として用いた。CNTフォレストからのCNTウェブとエラストマー糸は、図1に示す方法で複合化した。

2層CNT紡績糸/エラストマー系人工筋肉の、変位量と発生力は引っ張り試験機により評価した。また、人工筋肉の変位-応答性の評価は、非接触変位センサーを用いて評価した。

### 4. 研究成果

TEMの評価から、合成したCNTの層数は2から6層で、そのうち2層の収率が約80%で2層CNTの選択合成に成功した。CNTの $sp^2$ 炭素構造に起因する $1590\text{ cm}^{-1}$ 付近のGバンドと、 $sp^2$ 炭素の欠陥に起因する $1350\text{ cm}^{-1}$ 付近のDバンドのピーク強度比( $I_G/I_D$ )を評価し、合成したCNTの $I_G/I_D \sim 1.2$ で、CNTフォレストにアモルファス・カーボンが残留していることが分かった。

ポリオレフィン系エラストマーのような延伸性の高い線材を、従来のような CNT 紡績系と複合コイル化すると、CNT 紡績系の弾性率の高さ (~150 GPa) によりエラストマー線材の延伸が妨げられ、アクチュエータ動作を十分に発揮できない問題が明らかになった。そこでこの問題を解決する方法として本研究では、図 1 に示す CNT ウェブをエラストマー系に巻き付ける方法を考案・採用した。あらかじめテンションを掛けたエラストマー系に対し、CNT ウェブを巻き付けておくことで伸縮の際の動作を阻害せず、また、エラストマー系に対して均一に加熱できる構造が実現できる。作製方法は、エラストマーに荷重 (10 g, 20 g, 50 g) を掛け CNT ウェブの端をエラストマーに接着する。この状態でスライダを回転させながら引き出していくことで、エラストマーに CNT ウェブを巻き付けていく。スライダの回転速度及び移動速度は、ウェブへのダメージが少なく、巻きムラも抑えられるように最適化を行い、回転速度 40 rpm, 移動速度 20 mm/min として作製した。本研究では、一重巻きから四重巻きまで巻き数を変えてサンプルを作製した。効率的に熱をエラストマー系に伝えるため、コイルの中心に 2 層 CNT ウェブ/エラストマー系複合繊維 1 本に対し、その周りにエラストマー 4 本をシンメトリーに配置したサイコロの 5 の目のような状態でコイル化した。図 2 に 2 層 CNT ウェブとエラストマー系を複合化した人工筋肉の光学顕微鏡写真を示す。写真の中で黒く写っている箇所は 2 層 CNT 紡績系で、白い箇所がエラストマー系を示し、CNT 紡績系はエラストマー系で覆われた構造をとっていることが確認された。

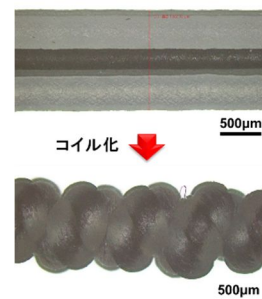


図 2. コイル化前後のアクチュエータの光学顕微鏡画像

図 3 に、人工筋肉の発生力の評価を行った結果を示す。コイル化するときのおもりの荷重が大きいほど発生力が高い傾向がわかる。発生力は 80 mW 付近で飽和しており、その後は発生力に大きな変化が見られないことが明らかになった。

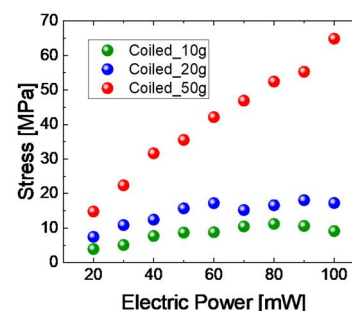


図 3. 人工筋肉の電力 - 発生力の特性

コイル化の荷重が 10 g のとき、変位が 100~150 µm 程度、20 g のとき 250~300 µm 程度、50 g のとき 500~650 µm 程度となり、コイル化時の荷重が大きいほど、人工筋肉の変位が大きくなることが明らかになった (図 4)。また、最大の変位に到達するまでに約 30~50 秒要しており、人工筋肉の冷却にも同程度の時間がかかることが分かった。

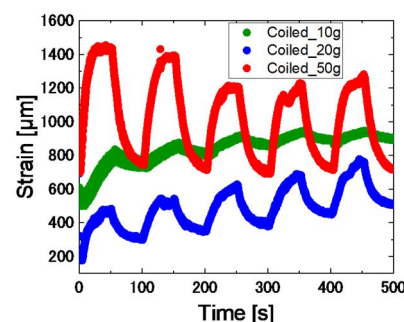


図 4. 人工筋肉の変位 - 応答性特性 (コイル化時の荷重: 10, 20, 50g)

< 引用文献 >

- [1] C.S. Haines et. al., Science, 2014, 343, 868.
- [2] A. Miriyev et. al., Nat. Commun., 2017, 8, 596.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Scholz Maik, Hayashi Yasuhiko, Eckert Victoria, Khavrus Vyacheslav, Leonhardt Albrecht, B?chner Bernd, Mertig Michael, Hampel Silke	4. 巻 25
2. 論文標題 Systematic Investigations of Annealing and Functionalization of Carbon Nanotube Yarns	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Molecules	6. 最初と最後の頁 1144 ~ 1144
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/molecules25051144	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 Hada Masaki, Hasegawa Taisuke, Inoue Hirotaka, et al.	4. 巻 2
2. 論文標題 One-Minute Joule Annealing Enhances the Thermoelectric Properties of Carbon Nanotube Yarns via the Formation of Graphene at the Interface	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 7700 ~ 7708
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsaem.9b01736	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 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Hirotaka Inoue, Tomohiro Nakagawa, Masaki Hada, Takeshi Nishikawa, Yoshifumi Yamashita, Yasuhiko Hayashi
2. 発表標題 Dry-drawable few-walled carbon nanotube forest synthesized by chemical vapor deposition
3. 学会等名 OptoX-NANO 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 井上寛隆, 中川智広, 西川亘, 山下善文, 林靖彦
2. 発表標題 ポストテンショニング処理によるカーボンナノチューブ紡績糸の高強度化
3. 学会等名 2019年 第46回 炭素材料学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中川智広, 井上寛隆, 西川亘, 山下善文, 林靖彦
2. 発表標題 Fe-Gd触媒による紡績可能CNTアレイの合成条件拡大
3. 学会等名 2020年 第67回 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<a href="https://hayashi-lab.org/">https://hayashi-lab.org/</a>
---

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	松本 英俊  (Matsumoto Hidetoshi)  (40345393)	東京工業大学・物質理工学院・教授   (12608)	
研究分担者	西川 亘  (Nishikawa Takeshi)  (80243492)	岡山大学・自然科学研究科・助教   (15301)	

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
---------	---------