

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 21 日現在

機関番号：20103

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2015

課題番号：24656174

研究課題名(和文) BZゲルを用いた化学知能ロボットのデザイン

研究課題名(英文) Design of Chemical Intelligence Robot using BZ gel

研究代表者

櫻沢 繁 (Sakurazawa, Shigeru)

公立はこだて未来大学・システム情報科学部・准教授

研究者番号：40325890

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、生物の代謝の基本的な要素として最もシンプルな循環化学反応を用いて、環境を識別して運動方向を変える知能性を持つ、化学知能ロボットをデザインすることを目指した。開発されたBZゲルは、BZ反応溶液中のテフロン板の上で蠕動運動によって移動できることが明らかとなった。更に狭空間に進入すると方向を転換して脱出した。次に、このようなゲルが、ナノレベルのコロイドとなって無数に集まって相互作用するとき、協同的な振る舞いをみせることが明らかとなった。環境との相互作用による状態変化とそれに応じた拡散運動のカップリングは、インテリジェントゲルロボットの開発において重要な特徴であると考えられる。

研究成果の概要(英文)：In this study, we aimed to design the chemical intelligence robot, which has intelligence to distinguish narrow space and to switch their moving direction, using the simplest cyclic chemical reaction as the basic element of biological metabolism. The BZ gel designed here can move by peristaltic action on Teflon plate in BZ reaction solution. Additionally, when they entered into narrow space, they switched their movement direction and out from there. Also, when nanometer-scaled colloidal particles made from the BZ gel were gathered and interacted each other, we found that they exhibited the property of cooperativity. Coupling of state changes by interaction with environments and diffusion dynamics is thought to be important characteristics for designing intelligence gel robots.

研究分野：生物物理学

キーワード：BZ反応 機能性高分子 化学知能ロボット

1. 研究開始当初の背景

近年、生物の「柔軟性」を応用したロボットの環境適応性が注目されている。その潮流の中で、BZ 反応(自己触媒系の非線形性により周期的に酸化・還元が交互に起きる化学反応)に応じて周期的に膨潤・収縮する高分子ゲルが、ラチェット構造の床上で尺取虫様に運動し重心移動をする「化学ロボット」として注目を浴びた(S. Maeda et al. Self-walking gel. Adv. Mater. 2007, 19, 3480-3484)。

この化学ロボットは、重心に対して対称な周期運動をラチェットの非対称性からめる事で一方向の運動を引き出している。一方、生物運動は一般に環境の非対称性を必要とせず、内部で非対称な情報伝播を生成して運動に利用している場合が多い。特にこれまで我々は、筋肉のタンパク質分子の運動機構を研究する中で、筋タンパク質の繊維に生じる非対称な情報伝播が運動の生成に寄与していることに強い関心を向けてきた(I. Kunita, S. Sakurazawa and H. Honda, Up and Down Movement of a Sliding Actin Filament in the in vitro Motility Assay, BioSystems, 2010, 103, 79-84)。

そこで我々は、BZ 反応が媒質中を拡散する時に酸化・還元の波が空間的にパターンを生じながら伝播することに着目し、ゲルの形状と BZ 反応の周期性とを適切に整合すればゲルは平坦な床でも蠕動運動によって重心移動する、と発想した。

2. 研究の目的

ここで目指す化学ロボットは、従来の化学ロボットのように単にアクチュエータとして作用するだけではなく、BZ 反応の伝播がセンサやコントローラの役割を担うロボットである。BZ 反応はゲル外部の溶液(反応基質)に影響を受けて反応の周期性や速度を変え、更に反応生成物を外部に放出することから外部の溶液に影響を及ぼす。すなわちこのゲルは、環境との相互作用で自律的に運動を調節し、更に複数集まれば協同性を発揮するといった知能性を有する可能性がある。

本研究の目標は、単に自律的な移動のみではなく、周囲の状況に応じて自律的に運動を調節する化学知能ロボットの開発である。これに伴い以下を明らかにする。

ゲルが蠕動運動によって平坦な床の上でも移動可能であることを証明する。

移動の条件を客観的、定量的に明らかにし、設計法を確立する。

この化学知能ロボットが環境適応能力と協同性を持つ事を証明する。

本研究では、ゲルがセンサとアクチュエータの機能を両立して担う。その結果として、単なるゲルが、地形を判断した行動や、他のゲルと連絡し合う行動を示すと予想される。これらは「プログラムなし」で物質に「知能」を創発する方法論である。

3. 研究の方法

BZゲルの作成方法及びBZ反応の溶液条件は、前田らの先行研究に基づいた。NIPAAm (3.7 mM)、AMPS (0.059 mM)、MBAA(0.078 mM)、AIBN (0.078 mM)、Ru (0.059 mM) を水、エタノールの混合溶液で溶かし、鋳型を用いてオープンで 20 時間 60 で静置しゲルを合成し、ゲルを短冊状に切断する。このゲルを一定温度(約 18)の臭素酸ナトリウム (0.084 M)、マロン酸 (0.0625 M)、硝酸 (0.894 M)の混合溶媒が入ったシャーレの中に浸漬し静置する。ここで、ルテニウムの酸化状態と還元状態が交互に周期的に切り替わり、それに合わせてゲルが膨潤・収縮を繰り返す様子が観察される。

シャーレ内に厚さ 5[mm] のテフロン板を設置し、BZ 反応基質混合溶液を 40[ml]注いだ。また、ゲルにステンレスビーズを左右対称になるように 2 つ埋め込み、それをシャーレの下から磁石で引き付け、ゲルと板との接地圧及び摩擦を調節した。用いるゲルは、ゲル内部で化学波を 1 つだけ発生させるため、幅 2.6[mm]、長さ 6.5[mm]に切断された。また、シャーレの下から引き付ける磁石には長方形の物 (0.66[kgf])を使用した。また、溶液温を 18 とし、温度を一定に保つためペルチエ素子による温度コントローラを使用した。

また、ゲルの協同性を調べるために、ゲルをナノサイズの微粒子(マイクロゲル)として合成し、コロイド分散系としての挙動を調べた。

本研究で使用されるマイクロゲルには、主鎖として温度応答性ポリマーの NIPAAm、金属触媒としてルテニウム錯体を使用した。マイクロゲルは以下の様に重合された。

NIPAAm (97 [mol%], 3.292 [g]), Ru (bpy)₃ (1 [mol %], 0.270 [g]), BIS (2 [mol %], 0.0092 [g]), 水 (195 [ml]) の混合溶液を 300 [ml] の 3-ネックの丸底フラスコにスターラーとともに入れ、還流管と窒素ガスをセットした。フラスコに窒素ガスを入れながら一定速度で攪拌しつつ、オイルバス内で 70 [] まで温めた。安定化のために 1 時間そのまま放置し、その後、5 [ml] の水に溶かした開始剤 v-500 (0.108 [g]) を入れた。6 時間沈殿重合し、その後室温まで冷却した。その後、毎日水を取り替えながら、一週間透析した。透析後のマイクロゲルを DLS (FDLS-3000, Otsuka Electronics Co. Ltd) によって計測したところ、還元状態のときの平均粒子直径は 128 [nm] であった。

本研究では、直径 3 [cm] のガラス製のペトリ皿にマイクロゲルを滴下し、1 [ml] の硝酸 0.3 [M]、臭素酸ナトリウム 0.084 [M]、マロン酸 0.0625 [M] の混合溶液をいれた。そしてその様子をデジタル一眼レフカメラで撮影した。記録された動画より、画像を抽出し、画像濃度からデンストメトリーでマイクロゲルの度数分布を調べた。

4. 研究成果

本研究で用意したゲルは、BZ 反応溶液中のテフロン板の上で蠕動運動によって移動できることが明らかとなった。

その際、運動には以下のような条件が重要であることが明らかとなった。

- ・BZ 反応の波の伝播がゲル内で単発になる必要がある

- ・そのようなジオメトリは約 1 mm × 2 mm × 6 mm の短冊状

- ・床に吸着しないよう床はテフロン板にする

- ・適切な接地圧でゲルを床に接地させるため、ゲルの長軸上に重りとして 0.3 mm のステンレスビーズを数個埋め込む

- ・単軸方向の膨潤・収縮の位相と長軸方向の膨潤・収縮の位相がちょうどよい関係にある必要がある

更に、このゲルの運動の結果、狭空間に侵入すると、ゲルの移動方向が逆転した。すなわち、ゲルが溝の周辺まで移動すると、進行方向が逆転し、溝から離れることが明らかとなった。

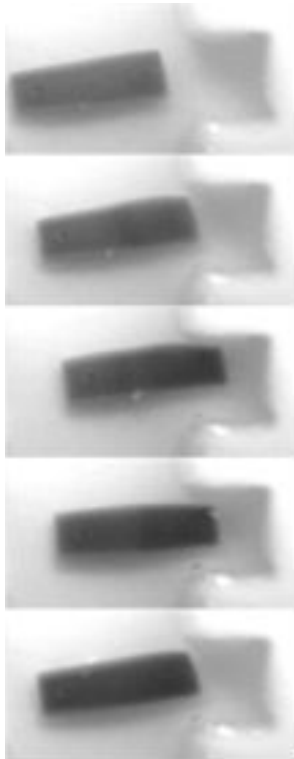


図 1. 閉空間への侵入と脱出

BZ 反応はゲル内の触媒の密度、ゲル外部の溶液に含まれる反応基質の濃度分布に敏感に反応し、その反応パターンを変えた。すなわちこの BZ 反応は運動の発生源でありながら、環境のセンサでもあり、更には状況を判別して運動を調節するプロセッサでもあることが分かる。これらは以下のような状況で知能性を発揮したと考えられる。すなわち、蠕動運動しながら解放空間から狭く囲い込まれた閉鎖空間に入り込んだ場合、反応生成物の拡散が滞り溶液条件が変化するため、反

応パターンの伝播方向が逆転し、移動方向が逆転する。このため、あたかも狭い所に入り込んだ時、後ずさりして脱出するかのような振る舞いに見えた。

次に、このようなゲルが、ナノレベルの大きさになって、コロイド状となって無数に集まって相互作用したときの挙動を観測するため、ペトリ皿に用意した水溶液にマイクロゲルの分散溶液を滴下してから、時間の経過とともに拡散していく様子を調べた。

図 2 は、純水の中に滴下されたマイクロゲルが、水中に拡散していく様子を示す。マイクロゲルは、純水の中で局所的な濃度勾配をなくすように拡散した。マイクロゲルは、純水中において状態変化を生ずることがないため、ゲル間の相互作用は一定のまま保たれる。したがって、互いに反発し合っ、系の最安定状態である均一に離れた状態へと状態変化を示したものと考えられる。

一方、図 3. は、 Ce^{IV+} 硝酸水溶液の中に滴下されたマイクロゲルが、水中に拡散していく様子である。図 3. (a)にみられるように、拡散の途中でリング状のパターンが形成されているようすが分かる。図 3. (b)の(2)及び(3)でグラデーションの中に特異なピークがはっきりと現れ、時間の経過に伴って消失した。 Ce^{IV+} 硝酸はマイクロゲルを酸化状態に変え、価数を 3 価に変更する。このような状態変化による分子間相互作用の変化と、拡散の運動がカップリングされることによって、局所的なパターン形成がなされることが明らかとなった。

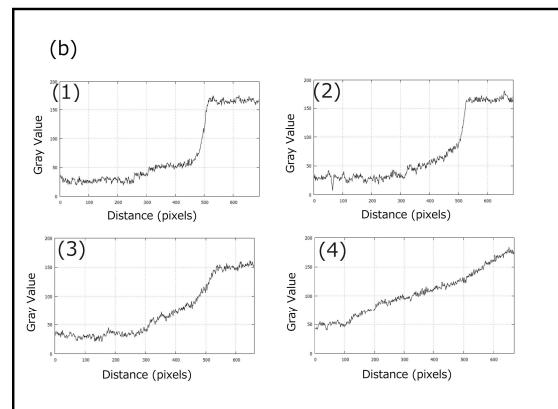
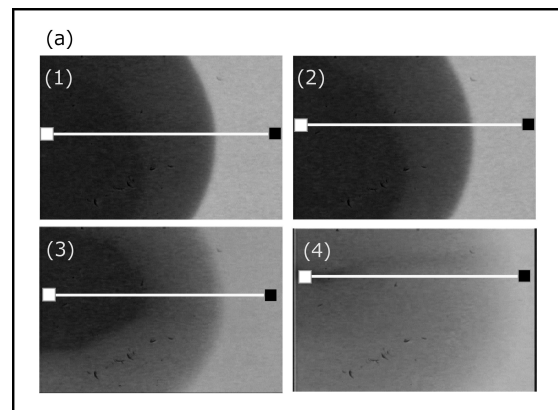


図 2. 純水中のマイクロゲルの拡散

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

櫻沢 繁 (SAKURAZAWA, Shigeru)

公立ほこだて未来大学・システム情報科学

部・准教授

研究者番号：40325890

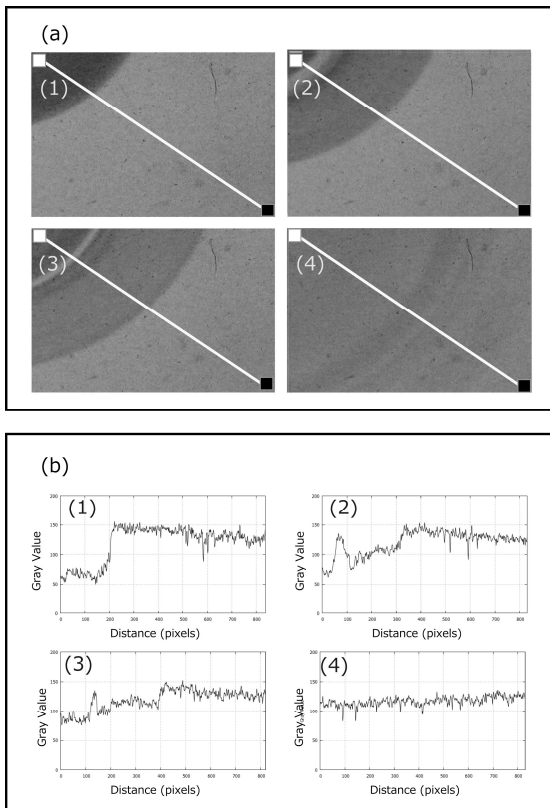


図 3. Ce^{IV+} 硝酸水溶液中のマイクロゲルの拡散

上述の事から、BZ 反応の触媒を共重合したマイクロゲルは、状況に応じてパターンを能動的に生成する。環境要因による状態変化とそれに適した拡散運動のカップリングは、インテリジェントゲルロボットの開発において重要な特徴であると考えられる。

5 . 主な発表論文等

[学会発表](計 4 件)

吉田彩乃、櫻沢繁、生物運動にみられる自然計算としての化学反応と物理反応の共役、日本コンピュータ科学会 2013 秋季年会：九州大学(福岡県福岡市)、日本コンピュータ科学会 2013 秋季年会予稿集、2P08、2013 年 10 月 19 日(査読なし)

櫻沢繁、計算としての化学反応、日本コンピュータ科学会 2014 秋季年会：日本大学工学部(福島県郡山市)、日本コンピュータ科学会 2014 秋季年会予稿集、2A01、2014 年 10 月 19 日(査読なし)

Ayano Yoshida, Shigeru Sakurazawa, Effect of a state and locomotion change by chemical reaction on macro pattern formation, 9th International Workshop on Natural Computing: Tokyo (Japan), Mar. 13 2015 (査読なし)

Ayano Yoshida, Shigeru Sakurazawa, Development of simple model system consisting of molecular state change and movement, 18th International conference on perception and action: Minneapolis (USA),