

令和元年5月21日現在

機関番号：32619

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04306

研究課題名(和文)ケミカルアクチュエータの知能化とケミカルメカニクス of 学理構築

研究課題名(英文) Intelligent chemical actuators and scientific principle of chemical mechanics

研究代表者

前田 真吾 (Maeda, Shingo)

芝浦工業大学・工学部・准教授

研究者番号：40424808

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,900,000円

研究成果の概要(和文)：申請者はこれまで振動化学反応で知られるBelousov-Zhabotinsky反応と刺激応答性高分子ゲルがカップルした系について研究を推進してきた。この系は、一定の条件下においてゲルが膨潤と収縮を自律的に生成する。本研究目的はではこのゲルの応答性を向上させること、知能化することである。申請者はゲルに一定の張力を加えることで、ゲルから大きな仕事を取り出すことができること、適当な外力をゲルに加えることでゲルのダイナミクスを制御できることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

このゲルは、物質濃度が振動するBZ反応の化学エネルギーのみを利用し、力学エネルギーに直接変換できる。ゲルを基質溶液に浸漬するとBZ反応が開始し、ゲルの体積振動が誘起される。本研究ではこのゲルの知能化とアクチュエータ化を目的とする。我々が提案してきたシステムの特徴は、従来の金属やシリコンなどでできた電子回路や半導体を有する計算機や機械リンク系のロボットとは大きく異なり、物理化学的な反応や現象によって情報処理系が構築できる。したがって、電気を一切必要としない新原理に基づくデバイスとなり新しい機械の創造へ繋がる。

研究成果の概要(英文)：We have been promoting research on a coupled system of the Belousov-Zhabotinsky reaction, known as an oscillatory chemical reaction, and stimulus-responsive polymer gel. In this system, the gel swells and de-swells autonomously under certain conditions. The purpose of our research is to improve the mechanical performance of the gel and to make it intelligent. We found that we were able to obtain mechanical work from the gel by applying a constant tension to the gel and that we could control the dynamics of the gel by applying external forces to the gel.

研究分野：ソフトマテリアル, ソフトロボティクス

キーワード：ゲル 自律駆動ゲル ゲルポンプ ソフトアクチュエータ

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、やわらかい材料を用いて設計されるソフトアクチュエータやソフトロボットは注目を集めている。剛性の大きい材料では再現できないユニークな動作を付与できること、多様な入力によって形を変形することができるといった特徴を有する。特に、水やアルコール類の溶媒を内包することができるハイドロゲルは、温度変化、pH 変化、イオンや分子に応答し、その体積を変化させることができる。これらは複雑な構造を必要としないこと、柔軟な材料で製作可能であることから μ -TAS や薬物放出システム(DDS)、駆動部として利用が期待されている。

2. 研究の目的

刺激に応答するハイドロゲルは有用であるが、なんらかの入力が必要である。例えば、温度応答させる場合、温度変化する環境を設定する必要がある。つまり制御系として電気的な制御回路が必要となる。そこで我々は刺激に応答するゲルとは異なり、自律的に駆動するゲルの研究を推進してきた (S. Maeda et al., *Advanced Materials*, 2007. S. Maeda et al., *Phys. Rev. E*, 2016. 等)。我々は、振動反応とハイドロゲルがカップルしたシステムを構築してきた。振動反応である Belousov-Zhabotinsky (BZ) 反応をハイドロゲル内で進行させると、ハイドロゲルが周期的かつ自律的に体積振動する。BZ 反応は、全体としてマロン酸やクエン酸などの有機物の酸化反応である。その反応の過程で、反応中間体の濃度や金属イオンの価数が周期的に振動する。その金属イオンを高分子ゲルの主鎖に組込むと、自律的に振動するゲル(BZ ゲル)を合成できる。したがって、バッテリー、複雑な配線、電子素子、メタル、ギア・モータやプログラミングを必要としないこれまでにないエレクトロニックフリーなデバイスができるはずである。本研究では、まず BZ ゲルの機械特性を明らかにし、得られる仕事を最大化する。さらに外力の応答について詳細に調べた。

3. 研究の方法

3.1 BZ ゲルの機械特性

図 1 はゲルの機械特性を調査するための試験機である。我々は独自に試験機を開発した。図 1 の試験機に次の方法で合成したゲルを設置した。

重合時直径 1mm の円筒型自励振動ゲルの合成を行う。本研究ではマイクロ相分離構造を持つ自励振動ゲルを採用している。N-Isopropylacrylamide (NIPAAm)、架橋剤である N,N'-Methylenebisacrylamide (MBAA)、開始剤である α,α' -Azobisisobutyronitrile (AIBN)、2-acrylamide-2-methylpropane sulfonic acid (AMPS) と Ru 錯体モノマーを水・メタノールの混合溶媒へ溶解し、攪拌しや。調合されたモノマー溶液を内径 1.0mm のガラス管に流し込み、両端をパテで密閉する。その後 60°C の恒温槽に 10 時間以上放置することで重合できる。

この試験機は自動ステージ、ロードセル、恒温槽、試験片固定具から成り、恒温槽内の任意の溶液中に設置した試験片から生じる張力を、固定具を介してロードセルで測定できる。また、自動ステージにより試験片のゲルの全長を変化させることができ、一定の速度で引張りを加えることも可能である。

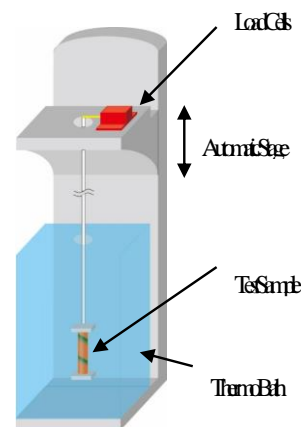


図 1. ゲルの力学試験機

3.2 BZ ゲルの外力応答特性

ゲルに物理的な外力信号を与えて、周期の変動を確認する。試験機に取り付け、20°C の酸性条件下で 1 時間以上放置することで十分に熱平衡状態にしたサンプルに、臭素酸ナトリウム、マロン酸を順次加えて BZ 反応を誘起させた。マロン酸の添加と同時に一定周期で単軸方向にひずみを与える。この時の BZ ゲルの反応周期の変化を CCD カメラから得られたゲルの色相で確認し、応答を計測した。

4. 研究成果

試験機とゲルの固定部付近は応力場が他の領域に対して均一でないことが考えられる。その為、ひずみ量は固定部から離れた位置での計測が望ましい。そこで、次の図 2 に示すように試験領域の中心部分にマーカーを取り付け、適切なひずみ量を計測した。ゲルが大変形するので公称ひずみではなく真ひずみ量を採用した。図 3 よりゲルの還元状態より酸化状態の方が、ヤング率が低く、破断点までの伸びが短いことが分かった。この特性を利用し、ゲルの振動から得られる仕事を最大化した。

図 4 は熱平衡状態ではなく、ゲル内で BZ 反応を誘起した時の振舞である。ゲルに予めひずみをかけた状態で BZ 反応を誘起させる。反応溶液の濃度は硝酸 1.2M、臭素酸 0.06M、マロン酸 0.06M になるように配合した。マロン酸を加えた後に始まる BZ 反応中の力を計測した(図 4)。こ

うした機構を採用することでゲルの膨潤による力に加えてヤング率の低下による張力の変化も力として取り出すことが出来る。この結果から約 0.75mN, 周期は約 13 分の結果が得られた。従来のゲルに比べると大きい発生力であり, 変位を考慮すると取り出せる仕事量は大きくなったと言える。

次にゲルに外力を与え, 周期の変動を確認する。試験機に取り付け, 一定周期で単軸方向にひずみを与える。この時の BZ ゲルの反応周期の変化を CCD カメラから得られたゲルの色相で確認した(図 5)。ゲルに与えるひずみの周期を 0.0, 120, 180, 240, 300, 600sec にした時の BZ ゲルの反応周期を調査したところ, 180-240sec の間で同期する現象を確認できた。つまり, ゲルへの外力を加えることで, 化学反応系を制御できることを意味している。

このようにゲルへ力や歪を加えることで, その応答や化学反応のネットワークを制御できることを示した。従来の刺激応答性ゲルの挙動とは大きく異なり, 情報処理系を内包するシステムを構築する第一歩の成果だと考えている。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 9 件)

1. A. Minaminosono, H. Shigemune, Y. Okuno, T. Katsumayta, N. Hosoya, S. Maeda, “Deformable Motor Driven by Dielectric Elastomer Actuators and Flexible Mechanisms”, *Frontiers in Robotics and AI*, 6(1), pp.1-12, 2019.
2. N. Hosoya, H. Masuda, S. Maeda, “Balloon dielectric elastomer actuator speaker”, *Applied Acoustics*, 148, pp.238-245, 2019.
3. Y. Morita, T. Matsuo, S. Maeda, M. Oishi, M. Oshima, “Three-dimensional micro displacement measurement with multiple-particle tracking using Digital Holographic Microscopy”, *Applied Optics*, 57, pp.10541-pp.10547, 2018.
4. Y. Okuno, H. Shigemune, Y. Kuwajima S. Maeda, “Stretchable suction Cup with electroadhesion”, *Advanced Materials Technologies*, 1800304, pp.1-6, 2018.
5. H. Shigemune, S. Sugano, J. Nishitani, M. Yamauchi, N. Hosoya, S. Hashimoto, S. Maeda “Dielectric elastomer actuators with carbon nanotube

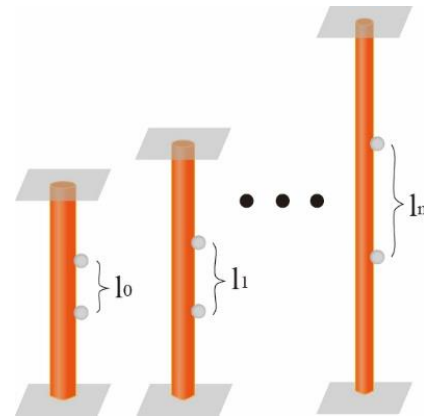


図 2. ひずみ計測

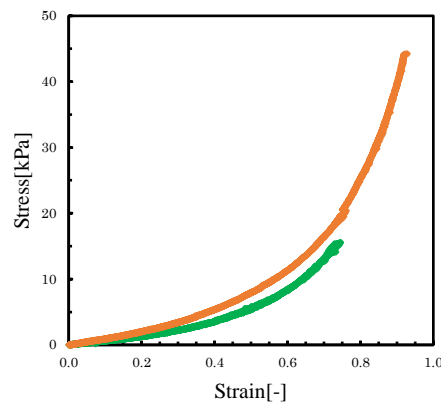


図.3 熱平衡状態におけるゲルの応力-歪特性

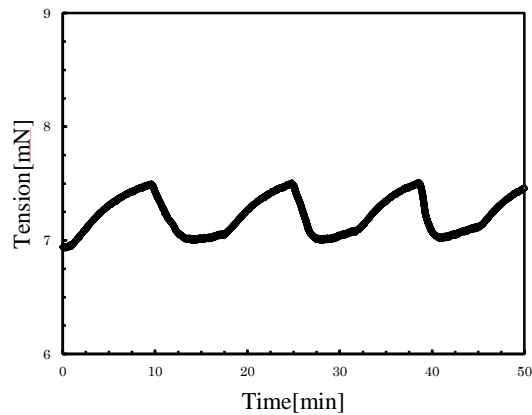


図.4 ゲルの発生力

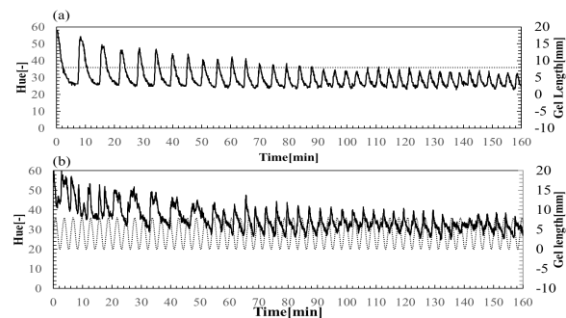


図 5. ゲルの同期現象

- electrodes painted with a soft brush”, *Actuators*, 7 (3), 51, 2018.
6. N. Hosoya, K. Umenai, I. Kajiwara, S. Maeda, “Dynamic characterizations of underwater structures using non-contact vibration test based on nanosecond laser ablation in water: evaluation of passive vibration suppression”, *Journal of Sound and Vibration*, 24, pp.3741-3725, 2018.
 7. K. Ichikawa, S. Maeda, Y. Yamanishi, “Evaluation of invasiveness by breakdown phenomena of electrically induced bubbles for a needle-free injector”, *Journal of Microelectromechanical Systems*, 27, pp.305-311, 2018.
 8. V. Cacucciolo, H. Shigemune, C. Matteo, C. Laschi, S. Maeda, “Conduction ElectroHydroDynamics with Mobile Electrodes: a novel Actuation System for Untethered Robots”, *Advanced Science*, 4, p.1600495, 2017.
 9. T. Sato, Y. Yamanishi, V. Cacucciolo, Y. Kuwajima, H. Shigemune, M. Cianchett, C. Laschi, S. Maeda, “Conduction ElectroHydroDynamic pumps with asymmetrical structure of electrodes in micro channel”, *Chemistry Letters*, 46, pp.950-952, 2017.
- [学会発表] (計 13 件)
1. S. Maeda, (招待講演): “Self-sustained Motility of BZ Gels”, The workshop on Active Matter for Soft Robotics, Waseda University, Japan, 12th March 2019.
 2. S. Maeda, (キーノート): “Robots based on chemical system”, IEEE International Symposium on Micro-NanoMechatronics and Human Science (MHS)2018, Nagoya University, Japan, 10th December, 2018.
 3. S. Maeda, (招待講演) “Fluidic chemo-mechanical actuators”, IEEE Soft Robotics 2018 Workshop: Fluid-driven soft robots: a collaborative workshop, Italy, 12th April 2018.
 4. Shingo Maeda: (招待講演): “Soft and chemical robots”, Progress In Electromagnetics Research Symposium, Singapore, 2017 年 11 月
 5. 前田真吾: (招待講演) “化学反応で動くシステム”, 「ソフトロボット: メカニカル材料」シンポジウム, 早稲田大学, 2017 年 5 月 27 日
 6. 前田真吾: (招待講演) “アクティブに駆動する生体模倣型ゲルアクチュエータの創製”, 日本機械学会 バイオエンジニアリング部門 バイオサロン, 2017 年 3 月 30 日
 7. V. Cacucciolo, J. Shintake, S. Maeda, D. Floreano, S. Herbert, “Self-contained fluidic muscles”, Int. Conf. on IEEE/RSJ Robotics and System(IROS), Spain, Oct., 2018.
 8. H. Shigemune, S. Sugano, H. Sawada, S. Hashimoto, Y. Kuwajima, Y. Matsushita, S. Maeda, V. Cacucciolo, C. Matteo, C. Laschi, “Swinging paper actuator driven by conduction electrohydrodynamics”, *Proc. IEEE International Conference on Robotics and Biomimetics*, pp.379-384, 2018.
 9. H. Shigemune, V. Cacucciolo, C. Matteo, C. Laschi, and S. Maeda, “Printed Self-oscillatory Mechanism Inspired by an Electric Bell”, *Proc. IEEE Micro-Nano Mechatronics and Human Science (MHS)*, 2018.
 10. T. Sato, S. Maeda, Y. Yamanishi, Study of Low Energy Micro EHD Pump by Designed Electric Field, *Proc. IEEE Micro-Nano Mechatronics and Human Science (MHS)*, pp.1-4, 2018 (In press).
 11. Y. Kuwajima, H. Shigemune, V. Cacucciolo, C. Matteo, C. Laschi, and S. Maeda, “Active suction cup actuated by ElectroHydroDynamics phenomenon”, *Proc. IEEE/RSJ Intelligent Robots and Systems (IROS)*, pp.470-475, 2017.
 12. Y. Kuwajima, H. Shigemune, S. Maeda, “Analysis of EHD pump with planer electrodes using FEM

simulation”, IEEE International Symposium on Micro-NanoMechatronics and Human Science, Nagoya, 2017.

13. Y. Fukuyama, K. Ichikawa, S. Maeda, Y. Yamanishi, “Fundamental study on electrically-induced bubble catalytic plating technology”, IEEE International Symposium on Micro-NanoMechatronics and Human Science, Nagoya, 2017.

〔図書〕（計 3 件）

1. 前田真吾, 澤田秀之, 重宗宏毅, 三輪貴信, “運動リズムを創るマテリアルと知能の設計”, 日本機械学会論文誌, 122, 1204, pp.16-17, 2019年4月.
2. 奥野悠人, 重宗宏毅, 桑島悠, 前田真吾, “静電吸着パッドを有する吸盤”, 月刊 ファインケミカル, CMC 出版, 48, pp.5-18, CMC 出版, 2019年2月.
3. 前田真吾, “自律機能を有したインテリジェントマテリアルの設計とケミカルアクチュエータの創製”, 機械の研究, 69, pp.661-668, 2017年.

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<https://shibaura.pure.elsevier.com/en/persons/shingo-maeda>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：山西陽子 教授

ローマ字氏名： Yamanishi Yoko

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。