

平成 21 年 6 月 22 日現在

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2008

課題番号：19016022

研究課題名（和文） 計算科学的手法を用いたアクチュエータの機構解明と分子設計

研究課題名（英文） Mechanism analysis and molecular design of actuators using computational techniques

研究代表者 清原 健司（KIYOHARA KENJI）

独立行政法人産業技術総合研究所・セルエンジニアリング研究部門・主任研究員

研究者番号：30344188

## 研究成果の概要：

次世代のアクチュエータとして期待されている高分子アクチュエータの開発のために、その駆動機構の分子レベルでの解明と材料設計のための方法論を、弾性体論的解析と分子シミュレーションの二つの計算科学的手法を用いて確立した。さらに、この方法論をカーボンナノチューブ・ゲルを用いた三層構造型の高分子アクチュエータに適用し、その駆動機構を解析して、高分子アクチュエータを分子レベルで設計するための指針を得た。

## 交付額

（金額単位：円）

|         | 直接経費      | 間接経費 | 合計        |
|---------|-----------|------|-----------|
| 2007 年度 | 4,000,000 | 0    | 4,000,000 |
| 2008 年度 | 2,200,000 | 0    | 2,200,000 |
| 年度      |           |      |           |
| 年度      |           |      |           |
| 年度      |           |      |           |
| 総計      | 6,200,000 | 0    | 6,200,000 |

キーワード：高分子アクチュエータ、分子シミュレーション、高分子構造・物性、ナノ材料、電気化学

## 1. 研究開始当初の背景

電圧などの刺激で変形するデバイスは、アクチュエータと呼ばれている。アクチュエータにはセラミックや金属の材料で作られたものが多いが、近年では、高分子材料で作られた高分子アクチュエータが次世代のアクチュエータとして注目されている。高分子アクチュエータの特長としては、軽量であり、柔軟性に富み、低電圧で駆動することなどが挙げられる。これまでに高分子アクチュエータとして開発されているものには、ナフィオンのフィルムを用いたもの、導電性高分子を用いたもの、カーボンナノチューブを用いたものなどさまざまなものがある。

しかし現時点では、駆動時の発生応力やエネルギー変換効率が実用に耐えるほど十分に大きいものが開発されていない。また、駆動原理についてもあまりよくわかっていないため、改良のための指針も確立されていないのが現状である。駆動原理を明らかにし、それに基づいて高性能な高分子アクチュエータを設計することが求められている。

## 2. 研究の目的

本研究で主として対象とするのは、カーボンナノチューブ・ゲルを用いた三層構造型の高分子アクチュエータである。この高分子アクチュエータは、1V 程度の低電圧で駆動し、

柔らかな屈曲運動を実現するのが特長である。

その基本的な構造は、カーボンナノチューブ・ゲルでできた二枚の電極層が一枚の電解質層を挟んだ形になっており、全体にイオン液体が浸み込ませてある。両端の電極層の間に電圧を加えると、この高分子アクチュエータは正極側に向かって屈曲する(図1)。

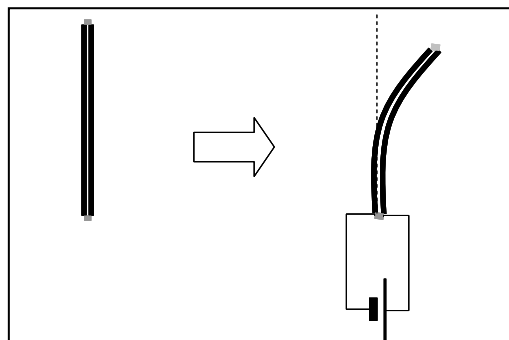


図1：三層構造型アクチュエータの変形の様子。電圧印加前に直線状(左)のものが、電圧印加後は屈曲する(右)。

本研究では、計算科学的手法を用いることにより、この高分子アクチュエータの駆動原理を分子レベルで明らかにし、その駆動原理に基づいた材料設計によって、より高性能な高分子アクチュエータを開発することを目的とする。

### 3. 研究の方法

三層構造型の高分子アクチュエータは、ミリメートル、マイクロメートル、ナノメートルの三段階の長さスケールでモデル化して考えることができる。

ミリメートル・スケールはアクチュエータ素子の大きさや駆動距離が表されるスケールであり、実験において主として対象となるスケールである。マイクロメートル・スケールは素子を構成する材料の物性が表されるスケールであり、弾性定数や導電率などはこのスケールで決定される。ナノメートル・スケールは分子間相互作用が表されるスケールであり、電圧印加による高分子アクチュエータの直接的な応答は、このスケールにおける分子間相互作用の変化であると考えられる。

これらの長さスケールを統一的に理解するために、具体的には、以下の三つの手法を用いる。

#### (1) 動作測定

レーザー変位計を用いて、高分子アクチュエータのミリメートル・スケールの駆動を測定する。

#### (2) 弾性体論による解析

高分子アクチュエータ内の各体積素片における弾性定数・発生応力・素子全体の屈曲

の間の関係を定式化することによって、実験で測定された変位などのデータから、実験で直接測定できない発生応力などの物理量を弾性体論による解析する。

#### (3) モンテカルロ法による解析

高分子アクチュエータの電極層における応力発生機構を、分子間の静電相互作用と排除体積効果の観点から、分子シミュレーションの手法の一つであるモンテカルロ法を用いて解析する。

### 4. 研究成果

#### (1) 「正極層および負極層における発生応力や伸縮率および駆動時のエネルギー変換効率の算出」

従来の三層構造型の高分子アクチュエータの素子の動作測定では、屈曲率は求められるものの、正極層と負極層における発生応力や伸縮率を独立に求めることができなかった。それは、三層構造型の素子が、中央の直線について対称性を持つためである。そこで我々は五層構造型の素子を作製し、この対称性を崩すことで、正極層と負極層の振る舞いを別々に求めた。図2のように、五層構造型の素子では、電極層の選択を、素子中央の直線について対称にも非対称にも電位差を与えることができる。これら二つの場合の変形の仕方の違いが、正極と負極の振る舞いの違いを反映する。

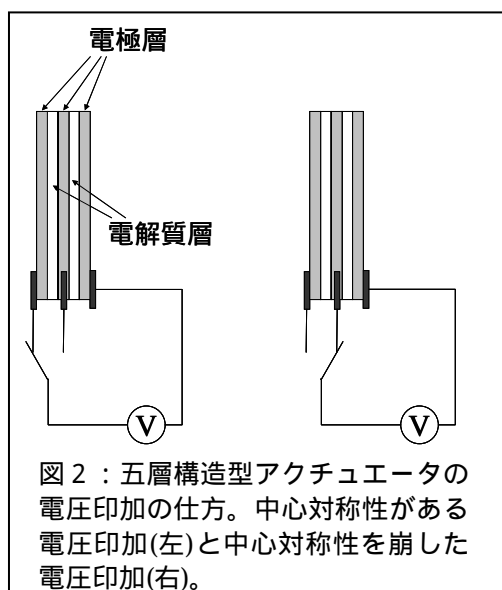


図2：五層構造型アクチュエータの電圧印加の仕方。中心対称性がある電圧印加(左)と中心対称性を崩した電圧印加(右)。

弾性体論によれば、素子の変形は、各体積素片における発生応力と弾性定数のもとで、全体の自由エネルギーが最小になるように決定される。この原理を五層構造型の素子の動作の測定結果に適用して解析した結果、正極層は約1%収縮し、負極層が約1%膨張することが明らかになった。またこのときの電圧印加に伴って発生した応力は、正極層では約-0.1MPa、負極層では約+0.1MPaと求ま

った。さらに、電気的エネルギーから弾性エネルギーへの変換効率は、 $10^{-5}$ 程度であることがわかった。

ここに確立された方法論は、高分子アクチュエータの動作におけるミリメートル・スケールとマイクロメートル・スケールの現象を関係付ける一般的なものであり、さまざまな高分子アクチュエータの発生応力、弾性変形、そしてエネルギー変換効率の解析に有用である。

#### (2)「応力発生機構についての分子間相互作用の観点からの解析」

電圧印加に伴って電極層の内部で応力が発生する機構を分子間相互作用の観点から調べるために、イオンと電極層内部の細孔をモデル化して、分子シミュレーションの手法であるモンテカルロ法によって解析した。

イオンは剛体球に電荷を埋め込んだブリミティブモデルで、電極層内部の細孔は表面電荷を持つ平板を組み合わせたスリット型細孔でそれぞれモデル化した。これらで形成される系を、独自に開発した「一定電圧グラウンドカノニカル・アンサンブル法」を用いたモンテカルロ法によって解析した。

電極層内の細孔に電圧を印加すると、その表面にカウンターイオンが集積し(図3)、電気二重層が形成され、電圧を大きくするとカウンターイオンの層の厚さは増した。特に細孔がイオン径の数倍程度と小さい場合には、十分に大きな電圧では、細孔の両側から発達したカウンターイオンの層が重なり合い、それらの層の間に相互作用が生じることがわかった。またこの解析の分子間相互作用は静電相互作用と排除体積効果からなるが、その相対的な重要度は、温度や誘電率などの条件によって大きく変化することも明らかになった。排除体積効果が重要な条件では細孔内での発生応力は斥力だが、静電相互作用の重要度が高い条件では、細孔の大きさによってこれが斥力の場合と引力の場合とがある

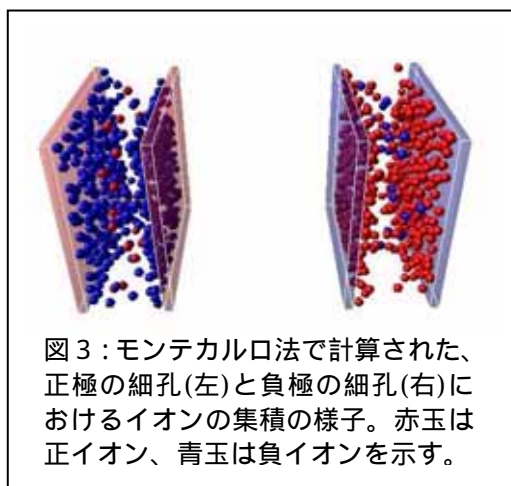


図3：モンテカルロ法で計算された、正極の細孔(左)と負極の細孔(右)におけるイオンの集積の様子。赤玉は正イオン、青玉は負イオンを示す。

ことも明らかになった。発生応力は、イオンや細孔の大きさが1の十分の一程度変わるだけでも、大きく変化する。これらの結果は、分子レベルで高分子アクチュエータを設計する際の重要な指針を与えるものである。

ここに確立された方法論は、マイクロメートル・スケールとナノメートル・スケールの現象を関係付ける一般的なものであり、さまざまな高分子アクチュエータの応力発生の起源について、分子間相互作用の観点から解析するのに有用である。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 3 件)

(1) 清原健司、杉野卓司、竹内一郎、向健、安積欣志

“Expansion and contraction of polymer electrodes under applied voltage”,  
Journal of Applied Physics, Vol. 105, pp. 63506-63613 (2009)

査読有

(2) 清原健司、杉野卓司、安積欣志

“Monte Carlo simulation of electroactive polymer actuators”,  
Advances in Science and Technology, Vol. 601, pp. 101-102 (2008)

査読有

(3) 清原健司、安積欣志、

“Monte Carlo simulation of porous electrodes in the constant voltage ensemble”

Journal of Physical Chemistry C, Vol.111, pp. 15903-15909 (2007)

査読有

〔学会発表〕(計 8 件)

(1) 清原健司、杉野卓司、竹内一郎、向健、安積欣志

「高分子アクチュエータの分子論的メカニズム」

文部科学省科学研究費補助金 特定領域研究 438 「ブレイクスルーを生み出す次世代アクチュエータ研究」第5回公開シンポジウム

平成20年12月8日

東京大学(東京)

(2) 清原健司、杉野卓司、安積欣志

「高分子アクチュエータの分子論的メカニズム」

第9回計測自動制御学会(システムインテグレーション部門)

平成 20 年 12 月 5 日  
長良川国際会議場（岐阜）

(3)清原 健司, 杉野 卓司, 安積 欣志  
「モンテカルロ法による高分子電極の膨  
潤・収縮の研究」  
田中豊一記念シンポジウム  
平成 20 年 9 月 11 日  
アルカディア市ヶ谷（東京）

(4)清原 健司, 杉野 卓司, 安積 欣志  
“ Monte Carlo simulation of Electroactive  
Polymer Actuators ”,  
CIMTEC, 3rd International Conference:  
“ Smart Materials, Structures and  
Systems ”  
平成 20 年 6 月 11 日  
Acireale（イタリア）

(5)清原 健司, 杉野 卓司, 安積 欣志  
“ Molecular Design of Electroactive  
Polymer Actuators ”,  
2nd International Symposium on  
Next-Generation Actuators Leading  
Breakthroughs,  
平成 20 年 4 月 17 日  
APA Hotel&Resort Tokyo、幕張(千葉)

(6)清原健司、安積欣志  
“ Molecular Design of Electroactive  
Polymer Actuators ”,  
文科省科学研究費補助金 特定領域研究 438  
第 4 回公開シンポジウム  
平成 19 年 11 月 20 日  
沖縄コンベンションセンター

(7)清原健司、安積欣志  
“ Monte Carlo simulation of porous  
electrodes ”,  
The 2007 AIChE Annual meeting  
平成 19 年 11 月 6 日  
Saltlake City（アメリカ合衆国）

(8)清原健司  
「人工筋肉（高分子アクチュエータ）の分子  
設計を目指して」  
蛋白質研究所セミナー  
平成 19 年 6 月 9 日  
大阪大学蛋白質研究所

〔産業財産権〕

出願状況（計 2 件）

(1)産業財産権の名称：三層型アクチュエー  
タにおいて各層の伸縮を測定する方法  
発明者：清原健司、杉野卓司、安積欣志  
権利者：独立行政法人産業技術総合研究所  
産業財産権の種類、番号：特願 2008-025837

出願年月日：平成 20 年 2 月 6 日  
国内・外国の別：国内

(2)産業財産権の名称：配向液晶化合物を有  
するカーボンナノチューブ電極を用いたア  
クチュエータ素子  
発明者：杉野卓司、清原健司、安積欣志  
権利者：独立行政法人産業技術総合研究所  
産業財産権の種類、番号：特願2008-146386

出願年月日：平成20年6月4日  
国内・外国の別：国内

〔その他〕（計 1 件）

(1)展示会出展  
「テクノフロンティア2008：モーショ  
ン・エンジニアリング展」  
会期：平成 20 年 4 月 16 日～18 日  
会場：幕張メッセ(千葉)

6. 研究組織

(1)研究代表者

清原 健司（KIYOHARA KENJI）  
独立行政法人産業技術総合研究所・セルエン  
ジニアリング研究部門・主任研究員  
研究者番号：30344188

(2)研究分担者

杉野 卓司（SUGINO TAKUSHI）  
独立行政法人産業技術総合研究所・セルエン  
ジニアリング研究部門・主任研究員  
研究者番号：50357266

安積 欣志（ASAKA KINJI）  
独立行政法人産業技術総合研究所・セルエン  
ジニアリング研究部門・研究グループ長  
研究者番号：10184136