

氏名	AN YINGJUN
博士の専攻分野の名称	博士（工学）
学位記番号	医工農博甲第45号
学位授与年月日	令和2年9月28日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
専攻名	グリーンエネルギー変換工学特別教育プログラム
学位論文題目	Development of Soft Actuators and Flexible Sensors using Shape Memory Polymer（形状記憶ポリマーを用いたソフトアクチュエータとフレキシブルセンサの開発）
論文審査委員	主査 教授 奥崎秀典 教授 宮武健治 教授 犬飼潤治 教授 近藤英一 教授 入江寛 教授 柳田真利

学位論文内容の要旨

高齢化社会の到来にともない、介護・医療分野で利用可能なソフトロボット技術は重要な研究開発分野となりつつある。一般に、ロボットシステムはプロセッサ、センサ、アクチュエータの要素からなり、コンピュータなどのハードウェアや人工知能（AI）などのソフトウェア技術は近年、目覚ましい進歩を遂げている。一方、ソフトロボットに不可欠なソフトアクチュエータやフレキシブルセンサに関する研究は現在のトピックであり、さまざまな材料やメカニズムが提案されている。また、インターネットを通じてヒトとモノ、モノとモノが繋がるシステムである「モノのインターネット（IoT）」が注目されている。IoTの実現にはウェアラブルエレクトロニクスが不可欠であり、そのキーデバイスはフレキシブルセンサである。本研究では、代表的な機能性高分子である形状記憶ポリマー（SMP）に着目し、ソフトアクチュエータとフレキシブルセンサへの応用について検討した。

第1章では、社会の高齢化対策としてのロボット技術とIoTの重要性について触れるとともに、ソフトアクチュエータやフレキシブルセンサの特徴と課題についてまとめ、本研究の目的を明確化した。

第2章では、形状記憶ポリマーと導電性高分子を複合化した導電性SMPの作製と、ソフトアクチュエータへの応用について検討した。可溶性導電性高分子である自己ドーブ型ポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)（S-PEDOT）とSMPからなるS-PEDOT:SMP複合体を、さまざまなS-PEDOT重量比（ $W_{S-PEDOT}$ ）で溶液混合法により作製した。パーコレーション閾値は0.38 vol%と低く、臨界指数は1.15であった。これは、導電性SMPの相分離によって

S-PEDOT の導電ネットワークが形成されたためと考えられる。形状記憶特性は $W_{S-PEDOT} \leq 30$ wt% で発現し、ガラス転移温度 (T_g) は 50°C とほぼ一定であった。 $W_{S-PEDOT} = 10$ wt% における導電性 SMP フィルムの電気伝導度、形状記憶率および形状回復率は、それぞれ 29 S/cm 、95.4%、90.1% であり、高い電気伝導率と優れた形状記憶特性を合わせもつことがわかった。さらに、導電性 SMP フィルム ($W_{S-PEDOT} = 10$ wt%) を用いた導電性 SMP ソフトアクチュエータを作製し、6 V の低電圧印加により 5 秒以内に高速変形することを明らかにした。

第3章では、形状記憶ポリマーとイオン液体を複合化したイオン性 SMP ゲルの作製と、フレキシブルセンサへの応用について検討した。イオン液体 (IL) は 1-エチル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメチルスルフォニル)イミド ([EMI][TFSI]) を用い、IL:SMP 複合体ゲルをさまざまな IL 濃度 (W_{IL}) で溶液混合法により作製した。イオン性 SMP ゲルを屈曲させたところ、電荷と電圧を発生することがわかった。このような現象は「ピエゾイオン効果」と呼ばれ、変形によるカチオンとアニオンの不均質化に基づく。屈曲変形の加速度を変化させたところ、加速度に比例して電流が増加することから加速度センサとして機能することがわかった。加速度センサ感度は 8.7 nA/加速度 であり、屈曲変位に依存しないことが明らかになった。これに対し、電圧は加速度に依存せず屈曲変位に比例して増加し、変位センサ感度は 1.17 V/m であった。このようなセンサ特性は W_{IL} の増加とともに向上することから、ピエゾイオン効果においてイオン液体濃度が重要な役割を果たしていることがわかった。屈曲加速度、変位、イオン液体濃度によらず、発生電圧 (V)、屈曲時の総電荷量 (ΔQ)、センサのキャパシタンス (C) の間に $\Delta Q = CV$ の関係式が成り立つことを見出し、ピエゾイオン効果に基づくセンサがコンデンサとして記述できることを初めて明らかにした。イオン性 SMP ゲルは、変位と加速度を同時測定可能な多機能センサであることから、モーションセンサへの応用が期待できる。さらに、変位センサは数 mV の電圧を直接出力し、電源や増幅器不要な無電源センサであることから、トリリオン (一兆個) センサへの電源供給が深刻な問題となる IoT 時代にも有効である。

第4章では、導電性 SMP およびイオン性 SMP の 3D プリントと将来展望について述べている。SMP は熱可塑性高分子であることから、熱溶融積層 (FDM) 法による 3D プリントが可能である。実際、導電性 SMP およびイオン性 SMP はともに 3D プリントできることから、ソフトアクチュエータやフレキシブルセンサからなるソフトロボットの 3D プリントが可能であることを実験的に示した。

第5章では、伸縮性と電気伝導性を合わせもつ伸縮性導電性 (S-CP) ヒドロゲルを作製し、力学特性と電気特性の関係について検討した。S-CP ヒドロゲルは、ポリ (3,4-エチレンジオキシチオフェン) : ポリ (4-スチレンスルホン酸) (PEDOT:PSS) とポリアクリルアミド (PAAm) の混合溶液をキャストすることで作製した。S-CP ゲルは、柔らかく伸縮性のある PAAm 多孔質ネットワークが PEDOT:PSS リッチな導電性ネットワーク層に囲まれた構造であることがわかった。PAAm の重量比 (W_{PAAm}) が 64 wt% で 92 wt% の水を含んでいるにもかかわらず、高い電気伝導性 (17 S/cm) と切断ひずみ (110%) を示すことがわかった。さらに、S-CP ヒドロゲルの電気抵抗は 75% 延伸しても変化せず、一定であることが明らかになった。これは、PEDOT:PSS リッチな導電層ネットワークが配向することで電気伝導度が向上するためであり、センサやアクチュエータのフレキシブル配線として期待できる。S-CP ヒドロゲルを用いたウェットなエレクトロニクスである「ゲレクトロニクス」のコンセプトを新たに提案した。

第6章では、総括として第2章から第5章までに得られた成果についてまとめている。

論文審査結果の要旨

高齢化社会の到来にともない、介護・医療分野で利用可能なソフトロボット技術は重要な研究開発分野となりつつある。一般に、ロボットシステムはプロセッサ、センサ、アクチュエータの要素からなり、コンピュータなどのハードウェアや人工知能 (AI) などのソフトウェア技術は近年、目覚ましい進歩を遂げている。一方、ソフトロボットに不可欠なソフトアクチュエータやフレキシブルセンサに関する研究は現在のトピックであり、さまざまな材料やメカニズムが提案されている。本研究では、代表的な機能性高分子である形状記憶ポリマー (SMP) に着目し、ソフトアクチュエータとフレキシブルセンサへの応用について検討した。

第1章では、社会の高齢化対策としてのロボット技術と IoT の重要性について触れるとともに、ソフトアクチュエータやフレキシブルセンサの特徴と課題についてまとめ、本研究の目的を明確化した。

第2章では、形状記憶ポリマーと導電性高分子を複合化した導電性 SMP の作製と、ソフトアクチュエータへの応用について検討した。S-PEDOT 重量比 ($W_{S-PEDOT}$) が 10 wt% における導電性 SMP フィルムの電気伝導率、形状記憶率および形状回復率は、それぞれ 29 S/cm、95.4%、90.1% であり、高い電気伝導率と優れた形状記憶特性をあわせもつことがわかった。さらに、導電性 SMP フィルム ($W_{S-PEDOT} = 10$ wt%) を用いた導電性 SMP ソフトアクチュエータを作製し、6 V の低電圧印加により 5 秒以内に高速変形することを明らかにした。

第3章では、形状記憶ポリマーとイオン液体を複合化したイオン性 SMP ゲルの作製と、フレキシブルセンサへの応用について検討した。イオン性 SMP ゲルを屈曲させたところ、電荷と電圧を発生することがわかった。屈曲変形の加速度を変化させたところ、加速度に比例して電流が増加することから加速度センサとして機能することがわかった。これに対し、電圧は加速度に依存せず屈曲変位に比例して増加し、変位センサ感度は 1.17 V/m であった。屈曲加速度、変位、イオン液体濃度によらず、発生電圧 (V)、屈曲時の総電荷量 (ΔQ)、センサのキャパシタンス (C) の間に $\Delta Q = CV$ の関係式が成り立つことを見出し、ピエゾイオン効果に基づくセンサがコンデンサとして記述できることを初めて明らかにした。

第4章では、導電性 SMP およびイオン性 SMP の 3D プリントと将来展望について述べている。導電性 SMP およびイオン性 SMP はともに 3D プリントできることから、ソフトアクチュエータやフレキシブルセンサからなるソフトロボットの 3D プリントが可能であることを実験的に示した。

第5章では、伸縮性と電気伝導性をあわせもつ伸縮性導電性 (S-CP) ヒドロゲルを作製し、力学特性と電気特性の関係について検討した。PAAm の重量比 (W_{PAAm}) が 64 wt% で 92 wt% の水を含んでいるにもかかわらず、高い電気伝導性 (17 S/cm) と切断ひずみ (110%) を示すことがわかった。S-CP ヒドロゲルを用いたウェットなエレクトロニクスである「ゲレクトロニクス」のコンセプトを新たに提案した。

第6章では、総括として第2章から第5章までに得られた成果についてまとめている。

6名の審査委員によって、発表40分、質疑応答20分の博士論文公聴会が終了した後、引き続き20分の最終試験が行われた。これらの研究内容は2報の査読付論文に発表され、学会発表やプレゼンテーション能力も評価された。以上のことから、博士論文審査委員全員の合意において、本論文は博士 (工学) の学位論文として適格と認め、合格と判定した。