

大変位・高出力な繊維状ポリマーアクチュエータ

Large-displacement and High-output Power Polymer-Fiber Actuator

平岡 牧 Maki Hiraoka	金子由利子 Yuriko Kaneko	中村邦彦 Kunihiko Nakamura
林直毅 Naoki Hayashi	田頭健司 Kenji Tagashira	荒瀬秀和 Hidekazu Arase

要 旨

直鎖状低密度ポリエチレン樹脂をナノ構造制御して作製したコイル状ポリマーアクチュエータによって、従来100℃以上だった動作温度を低温化し、ウェアラブル機器への利用に適する高出力なアクチュエータを作製した。このアクチュエータは生体筋の最大発生応力の30倍に相当する10 MPaの引張応力に対し30℃から90℃への加熱で23%収縮し、軽量の動力源として利用できる。また、仕事効率は理想的な断熱条件において最大荷重70 MPaにて約2%であり、熱駆動方式としてトップクラスである。電気駆動するために通電加熱できるよう導電部材と複合化し、60℃の加熱により、10 MPa荷重にて10%収縮し、周辺部材への熱的なダメージを抑えて利用できることを示した。量産に適した工法として、製紐（せいちゅう）加工によりヒータ線と複合化し、さらにバンド状に編むことで0.15 W/cmの電力で荷重5 Nの引き上げ動作した結果についても報告する。

Abstract

We propose a new coiled-fiber actuator based on linear low-density polyethylene fibers whose nanostructure is modified to generate a large thermal strain. The operating temperature of the actuator is reduced below 100 °C, which is suitable for wearable applications. The actuator generates a strain as high as 23% at 90°C under a tensile stress of 10 MPa (30 times that of mammal skeletal muscle). The maximum work efficiency under ideal adiabatic conditions reached 2%, which is top-level performance in thermal-strain type actuators, under 70 MPa tensile strain. We made yarn from the coiled fibers with heating wires to drive the actuator with electrical resistive heating. The actuator generates 10% strain under 10 MPa tensile stress. The actuator can be combined with common fabrics or peripheral components without thermal degradation because of its low driving temperature, making it easy to integrate it with wearable systems. We also report on a bundled actuator, knitted with an industrial braiding machine, that can lift a load of 5 N driven by 0.15 W/cm of input power.

1. はじめに

IoTの進展に伴い、人々の生活空間に溶け込み日常生活をサポートするウェアラブル機器への注目が高まっている[1]。その1つとして、身体に装着した状態で機械動作し、身体の動作に作用することで介護や荷物搬送などの作業支援を行うパワーアシストスーツの開発が近年盛んである。この主要な駆動源はモータであるが、ウェアラブル機器へ実装する場合、重量があり、機構部品が複雑でかさばり、動作音が大きく、騒音が著しいなどの点から、ウェアラブル機器の装着時の快適性が損なわれてしまう課題があった。筆者らはウェアラブル機器への実装に適した新たな動力源として、ポリマー材料から構成されるポリマーアクチュエータの開発を行っており、電気で作動し、柔軟、静音で、大きく伸縮し、軽量で高出力であることを特徴とするポリマーアクチュエータの実現を目指している。

上に挙げた特徴のうち、大きな伸縮性と高い出力を備え、かつ軽量にするためには、比重の小さいポリマー材料そのものが外部刺激により、大変位・高出力な歪（ひず）みを発生できるようにする材料開発が重要である。

さらに、この材料から、電気で作動し、柔軟で動作音のしないアクチュエータを作製するためには、デバイス化する製造法の工夫が必要である。

身体に作用できるスケールのポリマーアクチュエータとして望ましい条件は、生体筋並みの10%程度以上の伸縮量を有し、かつ、少ない重量で十分な出力を生み出せるよう、生体筋の10倍程度（3 MPa程度）の発生応力を発揮しつつ、伸縮動作できることである[2]。

このコンセプトに有望なポリマーアクチュエータとして、釣り糸などに用いられる廉価で丈夫な結晶性ポリマー繊維を捻（ねじ）ってコイル状にすることで、加熱によって10 MPaを超える高い発生応力で10%を超える伸縮動作をするアクチュエータになることが、2014年にテキサス大のグループからScience誌に報告された[3]。このアクチュエータは筆者らが目標とする軽量、大変位、高出力な特性を有し、さらに、繊維状なため柔軟性を備えたデバイス化に適すると考えられる。しかし、動作させるために室温付近から100℃以上に加熱する温度サイクルが必要であり、ウェアラブル機器に応用するためには耐熱性のある高コストな繊維部材の使用や、汎用繊維などの周辺部材や身体を保護するための断熱構造が必要で、

さらに冷却ファンなどの機構が必要になってしまう。このため、ウェアラブル機器に実装しにくいという実用上の大きな課題があり、動作温度を低温化する必要があった[4]。

筆者らはこの課題を解決するために、コイル状のポリマーアクチュエータに適する結晶性ポリマー繊維の材料開発を行い、繊維のナノ構造を制御することによって、従来よりも少ない熱量でアクチュエータの伸縮動作に適した変形を生じるコイル状繊維を開発でき、アクチュエータの低温動作化を確認できたので報告する[5]。

2. コイル状繊維の高出力化・低温動作化

2.1 動作原理と材料のナノ構造の関係

まず、このアクチュエータの動作原理について説明する。Nylon6,6繊維などの高延伸した結晶性ポリマー繊維は、等方的な熱膨張を示す一般的な樹脂材料と異なり、加熱すると繊維長が減少し、繊維径が増大する異方的な熱膨張を示す[6]。このポリマー繊維を荷重をかけながら加熱（かねん）（捻りを加える操作のこと）し続け、過剰に捻れた繊維が自動的にコイル状に折りたたまれるまで捻り続けることで、繊維全体をコイル状にする。

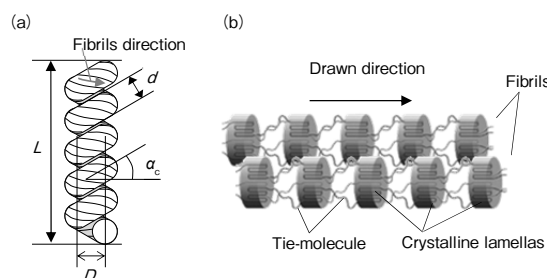
第1図(a)にコイル状にした繊維の模式図を示す。Lはコイル長、Dはコイルの平均直径、dはコイルを構成する繊維の直径、 α_c はコイルバイアス角である。また、斜線はねじられた繊維軸を表し、繊維軸に対して、おおよそ45°ねじれている。加熱によって繊維が熱膨張したときの、コイル長の変化 ΔL は、捻れたコイル形状の変化についての幾何学的な関係式を書き下すことにより、

$$\Delta L \sim \frac{Tl}{N} \left(2 \frac{\Delta \lambda}{\lambda} - \frac{\Delta d}{d} \right) \dots \dots \dots (1)$$

のように近似できる[5]。ここで、Tは繊維の捻数、lは加熱後の繊維長、Nはコイルの巻き数、 $\Delta \lambda / \lambda$ は線熱膨張率、 $\Delta d / d$ は径の熱膨張率である。この式は、コイル状に捻られた結晶性ポリマー繊維を加熱すると、熱膨張率の符号が異なる場合、コイル長の変化を増幅する寄与に変換されることを表しており、繊維の線膨張率と径膨張率の異方性が大きいほど、コイル状にした際の伸縮量が大きくなる。

次に、繊維の異方的な熱膨張が発生する機構を説明する。第1図(b)に、結晶性ポリマー繊維について、伸縮に理想的な構造モデルを示す。結晶性ポリマー繊維は、結晶部と非晶部が混在した微小繊維（フィブリル、Fibrils）の集まりからなっており、繊維を延伸すると、結晶部と、結晶部間をつなぐタイ分子と呼ばれる非晶部が延伸方向に配向する。また、一般に、結晶部間はタイ分子で連結

している他に、結晶部同士が直接連結している状態も混在している[6]。繊維を加工する際、延伸により引き伸ばされたタイ分子は、ガラス転移温度（ T_g ）以上では熱振動が活性であり、加熱によって収縮するエントロピー弾性を示す。このため、繊維軸に沿ってタイ分子が配向した構造の延伸繊維は、エントロピー弾性による熱収縮の寄与が大きく、加熱によって繊維長が収縮する[6]。



第1図 (a) 加熱コイルの模式図、(b) 延伸した結晶性ポリマー繊維の理想的なナノ構造モデル

Fig. 1 Schematics of (a) bulk structure of twisted coil and (b) ideal nano-structural model of drawn-crystalline polymer fiber

これまで、市販のNylon6,6や超高分子量ポリエチレンなどの結晶性ポリマー繊維を用いて作製されたコイル状アクチュエータが報告されている[3]。Nylon6,6は T_g が170℃であり、タイ分子の熱運動が活発になる温度が高いため動作温度が高いうえに、第1図(b)のような明瞭な結晶部と非晶部の分離がされていない。超高分子量ポリエチレンは、結晶部同士が連結したネットワークを有しており、繊維の強度は高まっているが、繊維内部でタイ分子のエントロピー弾性が結晶部の連結によって相殺され、伸縮性能が小さい。第1図(b)のような、伸縮を担う繊維が配向し、かつ繊維軸に垂直に硬い構造が挿入されているナノ構造は、実際に生体筋にて、サルコメアと呼ばれる伸縮源となる筋原繊維が縦に連結して筋線維を形成することで実現している、基本的な配列構造と同様である。人工的に、結晶性ポリマーのような高強度な繊維で作製するためには、繊維の自己組織化能を利用したプロセス開発が必要であり、これまで実現されてこなかった。

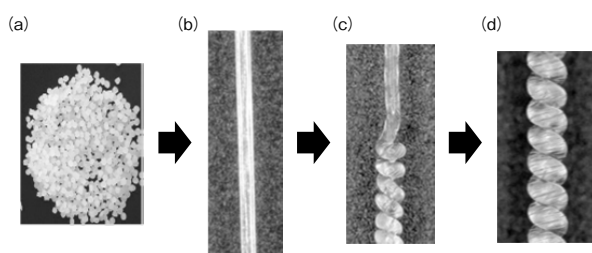
2.2 コイル状繊維の高出力化および低温動作化の方針

筆者らは高分子鎖の分岐構造の違いにより、さまざまな繊維構造を実現可能なポリエチレンに着目した。なかでも、直鎖状低密度ポリエチレン(LLDPE, Linear low density polyethylene)は、大きな分岐がなく高分子鎖が配向しやすいため、延伸によって適度な硬さを有する。さ

らに、短い分岐鎖によってラメラ（ポリマー鎖が折りたたまれて形成される板状の結晶部）の発達が阻害され、非晶部が部分的に存在し、この非晶部が延伸により配向する特徴を有している。そのため、LLDPEは、硬いラメラ晶を有すると同時に、非晶部のタイ分子が多く存在する理想的なナノ構造を実現できると着想した。また、LLDPEの高分子鎖には極性がなく、高分子鎖間の分子間力が小さいことから T_g が $-110\text{ }^\circ\text{C}$ と低く、室温でもタイ分子の熱運動が活性であるため、動作温度の低下も期待できる。一般にLLDPEはフィルム状に加工して広く利用されている安価な材料であるが、高延伸し高強度化した繊維の利用価値はこれまで見いだされてこなかった。筆者らは、LLDPEを、熱的な変動をあえて大きく生じるようにナノ構造を秩序化した繊維として加工し、アクチュエータとしての新たな利用価値を見いだした。

2.3 コイル状繊維の作製

第2図に、LLDPEペレットから、コイル状ポリマー繊維を作製する工程を示す。密度 0.92 g/cm^3 のLLDPEのペレット (a) を $160\text{ }^\circ\text{C}$ で熔融押出法により紡糸し、さらに $80\text{ }^\circ\text{C}$ で10倍に延伸加工を行った (b)。延伸によって弾性係数が 0.2 GPa から 6 GPa に増大し、硬い繊維に変化した。さらに、この繊維を 20 MPa の張力下にてコイル状になるまで捻り (c)、コイル状ポリマー繊維を作製した (d)。また、比較のため、いずれも弾性率 6 GPa 程度の高密度ポリエチレン(HDPE, High density polyethylene)とNylon6,6の延伸繊維を同様の方法で作製した[5]。なお、本論文においてコイルに印加する荷重を引張応力で記述する場合、荷重の値を、コイル作製に用いた繊維の径方向の断面積で割った値を便宜的に用いている。



第2図 LLDPEペレットから加熱コイルに加工するまでの形状変化の様子
Fig. 2 Change of bulk structures processed from pellets into twisted coil

2.4 コイル状繊維の熱機械分析

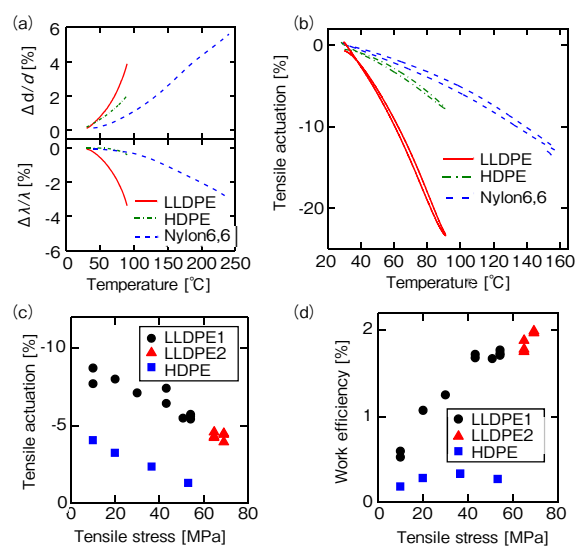
第3図 (a) に、作製した延伸繊維の熱膨張率を熱機械分析 (TMA) によって測定した結果を示す。作製した

LLDPE繊維は、HDPE繊維やNylon6,6繊維よりも線膨張率 ($\Delta L/L$) および径膨張率 ($\Delta d/d$) の絶対値が大きく、異方性が大きかった。

第3図 (b) に、これら延伸繊維を加熱して作製したコイル状繊維の伸縮量を、引張応力 10 MPa 下でTMA測定した結果を示す。式(1)の通り、熱膨張率の大きいLLDPEコイルは、HDPEコイルやNylon6,6コイルよりも低温で大きく変位し、 $60\text{ }^\circ\text{C}$ で 10% 、 $90\text{ }^\circ\text{C}$ で 23% 収縮した。

第3図 (c) に、室温 $25\text{ }^\circ\text{C}$ から $55\text{ }^\circ\text{C}$ の温風加熱による、コイルの変位量の荷重依存性を示す。LLDPE1は引張応力 20 MPa 、LLDPE2は引張応力 30 MPa でそれぞれ加熱し、コイル化した。LLDPEコイルの変位量は、負荷の増大に伴い単調減少し、LLDPE1は 55 MPa の引張応力下で加熱すると破断してしまったのに対し、LLDPE2は、 70 MPa (生体筋の230倍程度)まで荷重に耐えて変位することを確認した。

第3図 (d) に、第3図 (c) の仕事量を繊維への断熱的な投入熱量で割った、理想的な仕事効率を示す。Nylon6,6で作成したコイル状繊維の断熱条件化での仕事効率は 1.0% だったのに対して、LLDPEは効率 2% であり、熱歪アクチュエータ材料としてトップクラスの仕事効率である[7]。



第3図 (a) 延伸繊維の線熱膨張率 ($\Delta L/L$) および径熱膨張率 ($\Delta d/d$)、(b) 伸縮量の温度依存性、(c) コイル状繊維の伸縮量の張力依存性、(d) 理想的な断熱条件におけるコイル状繊維の仕事効率の荷重依存性

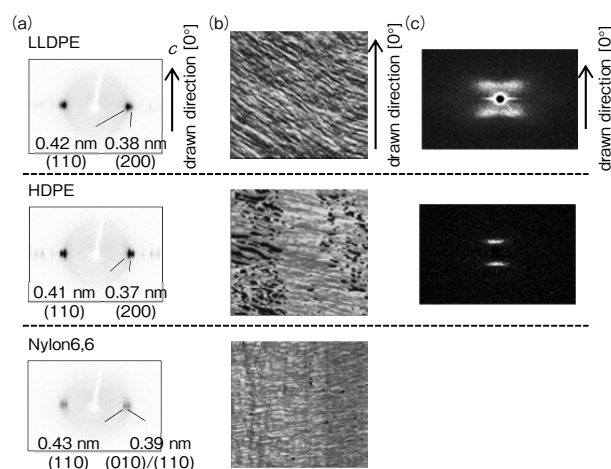
Fig. 3 (a) Thermal strain of drawn fibers along fiber axis ($\Delta L/L$) and fiber diameter ($\Delta d/d$), (b) Temperature dependence of tensile actuation ($\Delta L/L$) of the coiled fibers, (c) Tensile stress dependence of tensile actuation of the coiled fiber, (d) Work efficiency of the coiled fibers under adiabatic condition estimated from the results in Fig. 3(c)

2.5 延伸繊維の構造解析

次に、延伸繊維のX線構造解析および繊維断面の表面観察を行い、伸縮性能とナノ構造との関連を調べた。

第4図 (a) に、広角X線散乱像 (WAXD) を示す。全ての延伸繊維において、結晶の c 軸が延伸方向に配向することによる ab 面の反射が赤道方向に見られた。これは第1図 (a) に示したような延伸方向と平行にラメラ晶が形成されていることを示唆している[8], [9]。

第4図 (b) に、繊維断面の原子間力顕微鏡 (AFM) の位相像を示す。明部が柔軟部 (非晶)、暗部が硬質部 (結晶) を示す。LLDPEとHDPEとを比較すると、モルフォロジーが大きく異なっており、この違いを考察するために、小角X線散乱 (SAXS) 測定を行った。その結果を第4図に示す。HDPEは延伸方向に沿ったラメラ晶の厚みに対応する17 nmのピークが観測された。繊維断面のAFM像では20 nm~100 nm程度の大きなドメインが観測されたことから、結晶域のラメラ晶同士が連結して大きなドメインを形成していると考えられる。このため、タイ分子のエントロピー弾性は結晶ブリッジに阻害され、伸縮しにくい構造であると考えられる。



第4図 (a) 延伸繊維のWAXD像, (b) 延伸繊維断面のAFM位相像 (1 μm \square), (c) 延伸繊維のSAXS像。

Fig. 4 (a) WAXD images of drawn polymer fibers, (b) 1 μm \square of AFM phase images of the fiber cross section, (c) SAXS images of drawn polyethylene fibers

一方、LLDPEは延伸方向のピーク (12 nm) よりも、結晶方位が延伸方向からおよそ 40° 傾いた方向に強いピーク (16 nm) が観測された。この長距離秩序は、 c 軸配向した結晶と非晶からなるフィブリルの結晶部が傾いたラメラ晶を形成しており、フィブリル同士の連結が弱く、傾きの方位がさまざまに分布しているためと考えられる。フィブリル間の連結が弱い場合、タイ分子のエントロピー

弾性がバルク物性に大きく現れやすく、大きな熱膨張率に寄与していると考えられる。Nylon6,6では4 nm程度の微細な結晶/非晶が混在している様子が観察され、LLDPEほど秩序高くなく、結晶間の非晶鎖が短いため、 T_g 以上でも熱膨張係数はLLDPEよりも小さい。

また、LLDPE繊維を構成するフィブリル間の連結が弱い特性は、コイル状繊維のバルク形状の違いにも影響しており、加熱コイル化の際にフィブリル同士の配置がずれることによって、コイル形状がHDPEおよびNylon6,6よりも巻きがきつくコンパクトな形になり、この形状が、他の繊維と比べてより効率的に投入熱量をコイルの伸縮に変換し、仕事効率が大きくなることを、文献[5]の自著で議論した。

3. 通電加熱式アクチュエータ

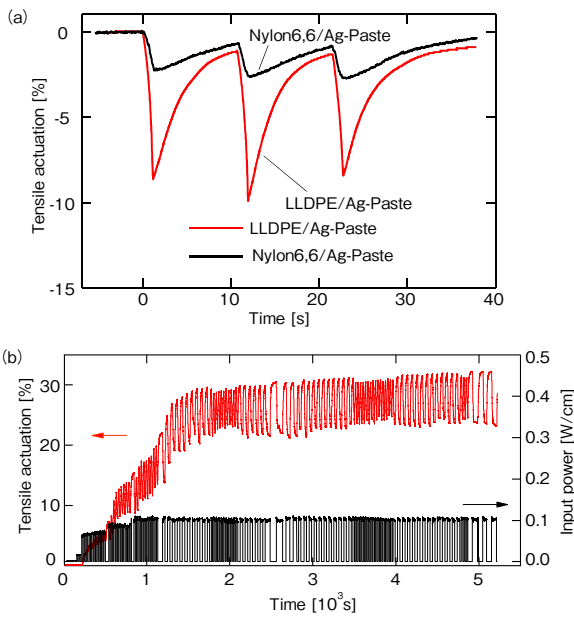
3.1 通電加熱動作式のアクチュエータの作製

コイル状繊維の周囲をヒータとなる導電材料で被覆することで、電氣的に動作制御可能なアクチュエータを作製し、動作実験を行った。

2つ縫 (よ) りのLLDPEコイルの表面に、Agエラストマーペーストを塗布乾燥させ、抵抗加熱被膜を形成し、10 MPaの引張応力下で通電加熱により収縮動作させ、アクチュエータ性能を調べた。第5図 (a) に通電加熱動作試験の結果を示す。LLDPEアクチュエータは、0.16 W/cm (200 W/g) の通電により、変位9%、仕事効率0.31%で収縮動作した。

第3図 (d) の10 MPaにおける断熱的な仕事効率 (0.6%) と比べて、実際に通電動作した場合の投入エネルギーの損失は、およそ半分程度であった。一方、Nylon6,6はLLDPEの入力と同じ200 W/gの通電により変位2.5%、仕事効率0.08%で伸縮動作した。以上より、LLDPEはNylon6,6に比べて、4倍程度高効率に収縮動作をすることを確認した。

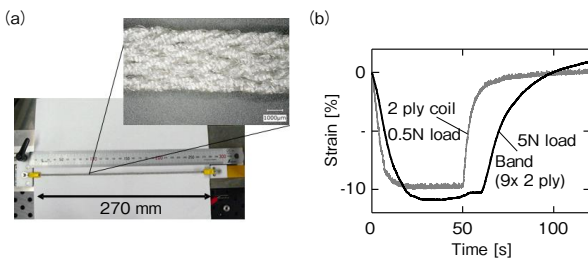
また、別のヒータ電極の構成法として、第5図 (b) に、ヒータ線を巻いたLLDPEアクチュエータを荷重10 MPaにて15秒~30秒電力を100回繰り返し入力したときのサイクル特性を示す。まず、初期動作で3割程度不可逆な変形をした後、変位が一定となる挙動が見られた。アクチュエータの動作安定化には、この不可逆な初期動作を予備動作として、予め実行しておく必要がある。



第5図 ヒータ線被覆したLLDPEコイル状繊維の通电加熱時の伸縮挙動
 (a) 銀ペースト被膜を形成したLLDPEコイル状繊維
 (b) ヒータ線を周囲に巻いたLLDPEコイル状繊維のサイクル動作
 Fig. 5 Actuation by electrical resistive heating
 (a) Tensile actuation heated by LLDPE coil coated with Ag paste
 (b) Cycle actuation of LLDPE coil made into a yarn with heating wire

3.2 バンドの製紐による高出力化

本開発のアクチュエータは繊維状であることから、複数本を編むことによって一体化し、高出力化することができる。そこで、18本のコイル状LLDPE繊維と、LLDPE繊維との重量比8%程度のヒータ線とを一緒に編むことによって、バンド状のアクチュエータを作製した。



第6図 (a) バンド状アクチュエータの写真 (b) 2つ折りコイル状アクチュエータおよびバンド状アクチュエータの伸縮特性
 Fig. 6 (a) Photographs of an actuator band. Inset shows an optical microscope image of the actuator band, (b) Tensile actuation of coiled actuators

第6図に試作したバンド状アクチュエータの外観写真を示す。両端を金属製の圧着端子で留（とど）めて通电加熱動作をし、出力の増幅を調べた。0.15 W/cmの通电に

より、荷重500 g（10 MPa相当）下で10%変位し、出力が本数分増幅していることを確認した。

4. まとめ

LLDPE樹脂を溶融紡糸し、周期的なナノ秩序構造を形成し、熱膨張率の異方性が大きい延伸繊維を作製した。この繊維から、ウェアラブルなどに応用しやすい100℃以下に動作温度を抑えたコイル状アクチュエータを作製した。このアクチュエータは、生体筋に比べて約30倍に相当する10 MPaの応力で、30℃から60℃および90℃への加熱により、それぞれ10%および23%収縮した。生体筋に比べてわずか1/30の重量で生体筋並みの仕事ができることと、電気的に制御可能で、動作音がせず、繊維状で柔軟なデバイス構造のため、ウェアラブル機器への利用に適した、従来にない利用価値のあるソフトアクチュエータである。従来のコイル状アクチュエータは100℃以上の動作温度であり、皮膚との断熱や、周辺部材を熱ダメージから保護する構造設計が課題であったが、LLDPEアクチュエータは60℃で動作できるため熱設計が比較的容易で、実用的である。理想的な断熱条件において仕事効率を評価したところ、動作時の荷重の増大に伴い仕事効率は上昇し、最大荷重70 MPaにて、熱駆動式のトップクラスの約2%の仕事効率を有することを確認した。

通电時の抵抗過熱によって動作するデバイスを試作し、導電エラストマー被覆によって、10 MPa荷重にて、変位量9%で収縮させた。この仕事効率は0.31%であり、従来のNylon6,6と比べて、4倍程度高効率である。また、この動作における断熱的な仕事効率は0.6%であり、投入エネルギーの半分程度が仕事に変換されていることを確認した。また、生産性の高い製紐技術を用いて、ヒータ線とともにバンド状に製紐することで、0.15 W/cmの通电により、荷重5N（10 MPa相当）下で10%変位するアクチュエータを作製した。動作速度は繊維の熱伝導に律速されており、電線と組み合わせた熱設計によって設計可能であり、バッテリー動作するウェアラブルデバイスへの搭載が期待できる。

参考文献

[1] M. A. McEvoy et al., "Materials that couple sensing, actuation, computation, and communication," *Science*, vol. 347, issue 6228, pp.1328-1335, 2015.
 [2] J. D. Madden et al., "Artificial Muscle Technology: Physical Principles and Naval Prospects," *IEEE J. Oceanic Eng.*, vol. 29, issue 3, pp. 706-728, 2004.

- [3] Carter S. Haines et al., "Artificial Muscles from Fishing Line and Sewing Thread," *Science*, vol. 343, issue 6173, pp.868-872, 2014.
- [4] Yip, M. C. et al., "High-Performance Robotic Muscles from Conductive Nylon Sewing Thread," *IEEE Int. Conf. Robot*, 7139506, pp. 2313–2318, June 2015.
- [5] M. Hiraoka et al., "Power-efficient low-temperature woven coiled fibre actuator for wearable applications," *Sci. Rep.* 6, 36358, pp.1-9, Nov. 2016.
- [6] C. L. Choy et al., "Negative Thermal Expansion in Oriented Crystalline Polymers," *Polym. Sci.*, vol. 19, issue 2, pp.335-352, 1981.
- [7] J. E. Huber, et al., "The selection of mechanical actuators based on performance indices," *Proc. R. Soc. London A*, vol. 453, no. 1965, pp. 2185-2205, 1997.
- [8] Guan, X. et al., "Dynamic mechanical properties of random ethylene/1-octene copolymers prepared by rapid cooling," *Eur. Polym. J.*, vol. 43, issue 4, pp. 1219-1233, 2007.
- [9] Ran, S., et al. "Structure Development during the Heat-Draw Process of Nylon 66 Fiber by Synchrotron X-ray Diffraction," *Adv. X-ray Anal.*, vol. 43, pp. 313-318, 1997.

執筆者紹介



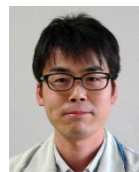
平岡 牧 Maki Hiraoka
先端研究本部 材料・デバイス研究室
Materials and Devices Research Lab.,
Advanced Research Div.
博士 (理学)



金子 由利子 Yuriko Kaneko
先端研究本部 材料・デバイス研究室
Materials and Devices Research Lab.,
Advanced Research Div.



中村 邦彦 Kunihiko Nakamura
先端研究本部 材料・デバイス研究室
Materials and Devices Research Lab.,
Advanced Research Div.



林 直毅 Naoki Hayashi
先端研究本部 材料・デバイス研究室
Materials and Devices Research Lab.,
Advanced Research Div.



田頭 健司 Kenji Tagashira
先端研究本部 材料・デバイス研究室
Materials and Devices Research Lab.,
Advanced Research Div.
博士 (工学)



荒瀬 秀和 Hidekazu Arase
先端研究本部
エネルギー材料プロジェクト室
Energy Materials Research Lab.,
Advanced Research Div.