

研究成果報告書

研 究 題 目	骨格筋組織を模倣した電気化学ゲルアクチュエーターの開発		実 施 年 度
			2021 年度
代 表 研 究 者	所 属	広島大学 大学院先進理工系科学研究科 応用化学プログラム	
	氏 名	今任 景一	印

1. 研究の目的・背景

今後、Internet of Things (IoT) や Artificial Intelligence (AI) の発展により、我々の周りは様々なロボットで溢れ、生活はさらに便利になると考えられる。それらは人間の体の内外に接したり、人間の作業を代替したりする。つまり、ロボットは産業中心から生体・人間中心に移行していく。しかし、現在の産業用ロボットは主に「かたい」金属などでできており、生体組織を傷つける恐れがある。また、人間のように形状・大きさ・硬さ・重さなどが異なるものを自在に扱うこともできない。そのため、「やわらかい」高分子材料で形成され、人間のように動き、人間を傷つけずに共存できるソフトロボットが大きな注目を集めている。人間のしなやかで自由な動きを可能にしているのは、体の大部分を占める骨格筋組織であり、

この構造と機能を模倣したソフトな人工筋肉(アクチュエーター)が望まれる。骨格筋は筋管という最小単位の組織が配向して束なり、この束(筋束)がさらに配向して束なった階層構造を持つ(図 1a)。運動神経からの電気信号で化学反応が起こり、筋管が長軸方向に協奏的に収縮することで骨格筋全体の大きな動きを生じる。つまり、電気化学で駆動するソフトな人工筋管を配向させて束ねれば、ソフトな人工骨格筋を作製できる。しかし、従来の電気化学ソフトアクチュエーターは、電極間の電荷移動が必要、駆動力の静電引力が近距離しか働かないなどの理由から、構造は電極で挟んだ高分子薄膜に、動きは屈曲と伸展に限られ、汎用性は極めて低かった。

そこで本研究では、電気化学的に解離・結合するジスルフィド結合を有する高分子ゲルとワイヤレスなバイポーラ電極を用いて世界初のソフトな人工筋管を開発し、骨格筋組織の構造と機能を模倣した電気化学ゲルアクチュエーターを作製することを目的とした(図 1b, c)。

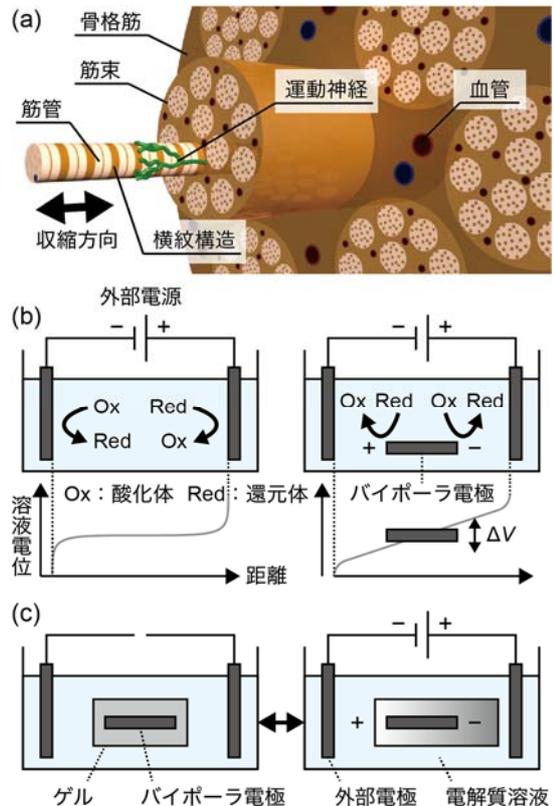


図 1. (a) 骨格筋の構造と筋管の収縮. (b) 通常の電気化学とバイポーラ電気化学. (c) 本研究で開発する人工筋管.

2. 研究成果及び考察（申請時の計画に対する達成度合を織込む）

両末端に重合性のメタクリロイル基を有する脂肪族ジスルフィド (S-S) 結合および芳香族 S-S 結合の2種類のモノマーを合成し、メタクリル酸メチルとジメタクリル酸エチレングリコールとのフリーラジカル重合により架橋点に脂肪族あるいは芳香族 S-S 結合を有する高分子ゲル（有機溶媒で膨潤）を得た。化学的な還元によりゲルが重量比 1.5-2 倍に膨潤すること（図 2）、およびサイクリックボルタンメトリー (CV) により S-S 結合が電気化学的に還元されることも確認した。しかし、バイポーラ電極（電気化学セル内で電極に接触せずに離れて設置された導体は電極間に電圧を印加すると分極してワイヤレスなバイポーラ電極になる）上にゲルを置くと、還元側では予想に反して白濁とともに収縮した。この収縮は逆の電位を印加しても放置しても戻ることにはなかった。S-S 結合の還元・酸化状態とゲルの挙動を関連付けたかったが、ゲルは不溶不融のため S-S 結合の還元・酸化状態の評価は難しく、調べるができなかった。

そこで S-S 結合に代えて、還元・酸化により可逆的に二量体を形成するビオロゲンを用いた（図 3）。無色のビオロゲンは還元されてラジカルカチオンになり、強く着色するため、視覚的に還元・酸化状態を確認できる。片末端に重合性のアクリロイル基を有するビオロゲンのモノマーを合成し、アクリルアミドと *N,N'*-メチレンビスアクリルアミドとのフリーラジカル重合により架橋点間の側鎖にビオロゲンを有する高分子ゲル（水で膨潤）を得た。CV によりゲル中のビオロゲンの電気化学的な 1 電子還元・酸化が 50 サイクル以上可逆的に可能なことを確認した。さらに、バイポーラ電極上にゲルを置くと、還元側に接触した部分が紫に着色し、体積も収縮した。電圧を除くことで色と体積は元に戻り、この可逆的な着色・退色と収縮・膨潤は繰り返し観察された。以上のことから、本研究では電気化学的な相互作用の結合・解離とバイポーラ電極を用いたゲルアクチュエーターの機能実証に成功した。本助成期間では全体構想中の人工筋管の開発を目標にしていた。申請時計画の 80%以上を達成したと言える。

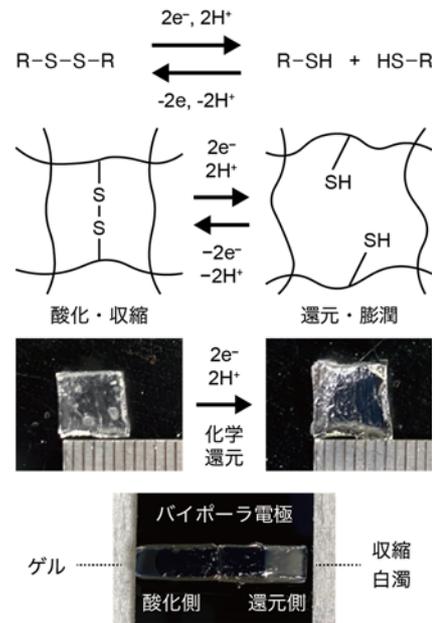


図 2. S-S 結合と S-S 結合を有するゲルの構造と化学還元による膨潤、バイポーラ電極上での挙動。

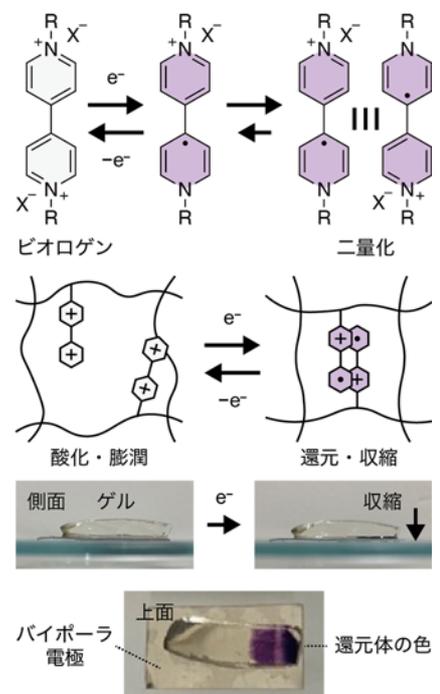


図 3. ビオロゲンとビオロゲンを有するゲルの構造とバイポーラ電極上での挙動。

3. 経費の使用状況（申請時の計画に対する実績を記述）

設備備品費として、申請時には引張試験機のソフトウェア拡張のライセンスや治具の費用を計上していた。しかし、本助成期間では力学強度の評価に至らなかったため、これらの購入は見送った。一方で、利用する分子がS-S結合からビオロゲンに変更となったため、その合成を効率的に進める上で必要な溶媒除去のシステム（ダイヤフラム型真空ポンプ、ロータリーエバポレーター、真空コントローラー）を購入させていただいた。

消耗品費としては、申請時に計上していた有機合成・高分子合成の試薬や溶媒、ガラス器具、汎用消耗品などを申請時（70万円）よりも多く（約140万円）購入させていただいた。

以上の他に申請時には借料損料（共通機器使用料）や資料費（大学契約外の論文、書籍）、印刷費、旅費（学会参加、共同研究者との打ち合わせ）、その他（学会参加費、論文掲載費）を計上していた。借料損料（共通機器使用料）や資料費（大学契約外の論文、書籍）、印刷費については、公費などの他の研究費で賄うことができた。旅費については、参加予定だった全ての学会がCOVID-19の影響でオンライン開催になり、共同研究者との打ち合わせも感染状況を踏まえてオンラインで行ったため、支出はなかった。その他（学会参加費、論文掲載費）の学会参加費は公費などの他の研究費で賄い、論文掲載費はまだ論文を準備中のため支出はなかった。

4. 将来展望（今後の発展性、実用化の見込み等について記述）

申請書にも記載した通り、本助成期間では研究構想全体の達成度50%に相当するソフトな人工筋管の開発を目指し、ビオロゲンを有するゲルとバイポーラ電極を用いた電気化学ゲルアクチュエーターの機能実証までを終えた（研究構想全体の達成度40%以上）。

今後はビオロゲンを有するゲルに様々な形状・個数の金属を埋め込み、バイポーラ電極化することで多様な動きを実現する。また、電気化学反応を仲介する低分子（メディエーター）を用いて、電極近傍だけでなくゲル内部の広範囲でビオロゲン二量体の形成・解離を誘起する。その後、人工筋管として束ねることでソフトな人工骨格筋組織を開発する（図4）。**自在で複雑な形状・動きが可能な骨格筋の構造と機能を模倣した本研究の電気化学ソフトアクチュエーターは、高い汎用性と多様性を持ち、ソフトロボットに不可欠な根幹部品として、将来の持続可能で豊かな社会に大きく貢献することが期待できる。強度や応答速度次第だが、実用化の可能性も高い。また、ソフトロボットは学際性が高く、学術的・社会的に重要な領域でもあるため、本研究の成果は化学分野だけでなく、生物学・情報科学・材料科学・機械工学・電子工学などの多分野で大きな波及効果も期待できる。**

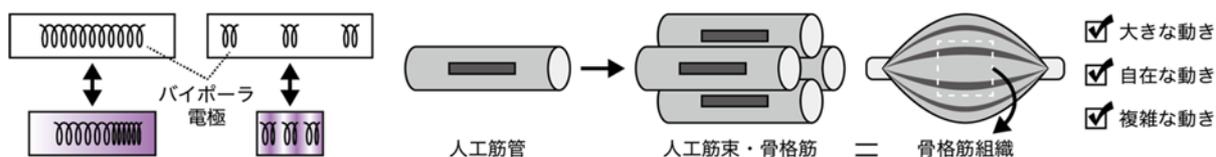


図4. 今後の予定（ゲルへのバイポーラ電極の埋め込みとソフトな人工骨格筋組織の開発）。

5. 成果の発表（学会での発表、学術誌への投稿等を記載。予定を含む）

【学会発表】

1. 「バイポーラ電気化学に基づき駆動するゲルアクチュエーターの開発検討」, 日野太一, 今任景一, 信田尚毅, 稲木信介, 今榮一郎, 大山陽介, 第 45 回有機電子移動化学討論会, オンライン, 2021 年 6 月.
2. 「バイポーラ電気化学に基づき駆動する骨格筋模倣ゲルアクチュエーターの開発検討」, 日野太一, 今任景一, 信田尚毅, 稲木信介, 今榮一郎, 大山陽介, 第 36 回中国四国地区高分子若手研究会, オンライン, 2021 年 11 月.
3. 「バイポーラ電気化学に基づき駆動する骨格筋模倣ゲルアクチュエーターの開発」, 日野太一, 今任景一, 信田尚毅, 稲木信介, 今榮一郎, 大山陽介, 第 31 回日本 MRS 年次大会, オンライン, 2021 年 12 月.
4. 「バイポーラ電気化学に基づき駆動する骨格筋模倣ゲルアクチュエーターの開発」, 日野太一, 今任景一, 信田尚毅, 稲木信介, 今榮一郎, 大山陽介, 日本化学会第 102 春季年会, オンライン, 2022 年 3 月.
5. 「バイポーラ電気化学に基づき駆動するゲルアクチュエーターの開発」, 日野太一, 今任景一, 信田尚毅, 稲木信介, 今榮一郎, 大山陽介, 第 46 回有機電子移動化学討論会, オンライン, 2022 年 6 月.
6. “Development of skeletal muscle-mimetic gel actuators driven by bipolar electrochemistry”, T. Hino, K. Imato, N. Shida, S. Inagi, I. Imae, Y. Ooyama, The 5th International Union of Materials Research Societies International Conference of Young Researchers on Advanced Materials, Fukuoka, Japan, Aug. 2022 (scheduled).
7. 「バイポーラ電気化学に基づき駆動するゲルアクチュエーターの開発」, 日野太一, 今任景一, 信田尚毅, 稲木信介, 今榮一郎, 大山陽介, 第 71 回高分子討論会, 札幌, 2022 年 9 月 (予定) .

【学術誌】(予定)

1. “To be determined”, T. Hino, K. Imato, N. Shida, S. Inagi, I. Imae, Y. Ooyama, in preparation.