

• 专题一:双清论坛“面向未来的智能材料物质科学” •

DOI: 10.3724/BNSFC-2025.03.13.0002

面向软体机器人的智能形变高分子材料化学基础*

俞燕蕾^{1**} 谢涛² 刘明杰³ 张霄羽¹ 潘峰¹ 韦嘉¹ 秦朗¹

1. 复旦大学 材料科学系,上海 200438

2. 浙江大学 化学工程与生物工程学院,杭州 310012

3. 北京航空航天大学 化学学院,北京 100191

[摘要] 智能形变高分子材料是实现软体机器感知—驱动—传动—结构一体化设计的核心材料,对提高软体机器的适应性、自主性和作业能力至关重要。然而,目前智能形变高分子材料的感知和驱动性能以及智能化程度无法满足软体机器自主行为控制的需求。通过智能形变高分子材料的创新化学设计突破感知驱动能力弱和自主性匮乏的瓶颈问题是决定软体机器未来兴盛的关键。我国在智能形变高分子材料化学领域的研究已有长足进步,但欠缺以重大领域应用需求为导向的组织性和整体协同性。因此,仍需加大投入力度,有组织性地深入研究软体机器人的组成核心,以推动未来软体机器技术的持续创新与发展。

[关键词] 智能形变高分子;软体机器;刺激响应;自主性;适应性

1 智能形变高分子材料研究对软体机器发展的意义及研究现状

机器人被誉为“制造业皇冠顶端的明珠”,其设计、生产和实施能力是评估一个国家技术创新和先进制造业水平的关键标准。传统机器人主要由硬体机器构筑,其本质为外部操控下刚性结构的被动形变。进入21世纪后,随着仿生技术、智能材料和人工智能技术的迅速发展,以软体机器为核心的刚柔耦合、柔性、变形体机器人等相关研究引领了国际机器人的前沿研究热潮^[1]。软体机器的柔顺性、人体亲和性和高自由度变形可弥补硬体机器的短板,为智能制造、智能人体助力、深海深空探测、疾病医疗等战略领域带来变革性机遇。早期的软体机器由非响应性软材料构筑而成,所使用的软材料仅起到提供柔性结构的作用。近年来,为了适应软体机器由分体向集成发展的趋势,实现驱动—传动—结构一体化,发展具有主动形变功能的智能形变高分子材料正迅速成为国际竞争的新焦点。*Science*及*Nature*等顶级期刊

上大量报道液晶高分子和介电弹性体等材料构筑的软体机器。欧盟2017年在“地平线2020”计划下资助了一项为期3年、总投资近4亿欧元的“智能变形与传感技术”项目,2024年推出的“欧洲地平线”计划列出两项软体机器人项目,以保持欧盟在该领域的领先地位。

目前,全球对智能形变高分子材料的应用研究总体尚处于初始阶段,商业化程度较低。我国在智能形变高分子材料化学的基础领域研究已有长足进步,突破性研究成果多次刊登于国际顶级期刊,受到了国际相关科研机构的重点关注。然而,我国大多数研究者目前主要还是根据个人兴趣进行分散研究,欠缺以重大领域应用需求为导向的组织性和整体协同性。因此,仍需加大投入力度,组织基础好、有条件、优势互补的若干团队,深入研究软体机器人的组成核心,开展智能形变高分子化学创制,基于微观到宏观的多级调控进行新材料开发与结构优化,为提升软体机器的自主性、适应性和作业能力提供材料支撑,以推动未来软体机器技术的持续创新与

收稿日期:2025-03-13; 修回日期:2025-04-23

* 本文根据国家自然科学基金委员会第391期“双清论坛”讨论的内容整理。

** 通信作者,Email:ylyu@fudan.edu.cn

本文受到国家自然科学基金项目(52233001,52033009)的资助。

引用格式:俞燕蕾,谢涛,刘明杰,等. 面向软体机器人的智能形变高分子材料化学基础. 中国科学基金, 2025, 39(3): 389–397.

Yu YL, Xie T, Liu MJ, et al. Chemical foundation of intelligent shape-changing polymer materials towards soft robots. Bulletin of National Natural Science Foundation of China, 2025, 39(3): 389–397. (in Chinese)

发展。

在此背景下,2024年12月1—2日,国家自然科学基金委员会召开了以“面向未来的智能材料物质科学”为主题的第391期双清论坛。本文围绕“面向软体机器人的智能形变高分子材料化学基础”等前沿性问题展开讨论,凝练了该领域未来需要深入研究的关键科学问题,并就前沿和交叉科学问题研究、组织实施重大研究计划等提出建议。

2 面向软体机器人的智能形变高分子材料研究进展与问题

软体机器人是采用柔性材料和结构制作而成的器件或系统,旨在模仿自然界生物的运动和功能特性,以寻求作业能力的提升、人机交互能力的改善以及安全性的提高(图1)。软体机器人发展迄今,材料的推陈出新始终是推动其变革换代的关键。第一代被动型软体机器人主要由硅橡胶、聚氨酯等非响应性软材料构筑,所使用的软材料仅作为结构单元,控制驱动方式与硬体机器人相似,需要多个组件独立控制感知—驱动—传动,难以实现小型化和集成化。第二代响应型软体机器人以智能形变高分子材料为主体,所使用的软材料能够响应外界刺激,可同时作为结构单元和驱动单元,有效提高系统集成度,简化结构设计和控制系统。此外,智能形变高分子材料还能够响应刺激调整自身结构以适应环境,提高软体机器人的适应性与人体亲和性。

随着人工智能技术、互联网、大数据技术的迅猛发展,全球机器人市场与产业应用呈现新的发展需求。为了进一步提高机器人的自主性、适应性和作业能力,需

要在物质层面上将具有生物智能特性的结构单元嵌入机器系统。感知、驱动和控制是软体机器人的核心组成要素,其构筑材料的研究水平直接关系到软体机器人能否高质量地朝着智能化和高性能化发展。在感知方面,智能形变高分子材料感知环境刺激的能力源于响应基元,因此提升其感知灵敏度的关键是开发和设计高特异性的响应基元。在驱动方面,智能形变高分子材料的输出驱动力与材料内部能量的传递和转化效率密切相关,其驱动性能的突破有待多尺度变化高效放大机制的建立。在控制方面,赋予智能形变高分子材料生物智能特性对于软体机器人实现高度智能的行为控制十分关键。非平衡态是生物智能涌现的物质特征基础,指生命体通过持续的信息、能量、物质交换,所表现出的一种远离热力学平衡但又相对稳定和有序的状态^[2-4]。其在合成物质上的实现高度依赖材料分子间的键合特性,以及在非结构环境作用下凝聚态的调控^[5]。目前,智能形变高分子材料在响应灵敏度、输出驱动力和类生物智能特性方面的研究已取得了一些突破性成果,但仍然面临着响应灵敏度阈值高、微观响应放大机制缺乏及材料非平衡态调控机制研究系统性不足等问题,其发展已无法满足当前软体机器人升级迭代的迫切需求。通过新型化学分子设计,创制感知更灵敏、驱动更强劲、具有类生物智能特性的智慧型高分子材料,是推进软体机器人走向高度自主控制的必由之路。

目前主流的智能形变高分子材料包括液晶高分子、介电弹性体、响应型水凝胶和形状记忆高分子,本节根据材料类型进行分类,对与软体机器人的感知、驱动和控制关联的化学结构和凝聚态结构调控作相关研究进展



图1 硬体机器人和软体机器人的差异

Fig.1 The Difference between Rigid and Soft Machines

的简要综述。

2.1 液晶高分子

刺激响应形变液晶高分子兼具液晶的各向异性和高分子网络的熵弹性,且液晶基元的取向和高分子骨架的构象相互关联^[6]。在外界刺激的诱导下,液晶高分子的有序—无序相转变或液晶基元排列变化可引发从分子到介观再到宏观的多级结构变化,最终实现大幅度、可逆的各向异性形变^[7]。由于液晶基元的取向设计性、可编辑性强,液晶高分子能够实现可预测性好以及可定制程度高的复杂可逆形变。

通过多级结构调控与集成设计,由液晶高分子构筑而成的软体机器原型器件已经可以实现爬行^[8]、攀爬^[9]、游泳^[10,11]、跳跃^[12,13]、旋转^[14,15]、滚动^[16,17]、振荡^[18,19]等多种运动模式。例如,Lv等^[20]利用液晶高分子构筑了管状蠕动泵,将流体通道和驱动泵合二为一,实现了驱动—传动—结构一体化。Wu等^[8]利用液晶高分子构筑了局部曲率可控的爬行机器人,可在行进过程中通过改变自身形状穿越复杂狭小的作业空间。Deng等^[15]设计了一种具有零弹性能量模式的液晶高分子自旋转环,可以在陆地、封闭环境甚至高黏性流体等多种作业环境中实现方向、速度可控的运动。由液晶高分子构筑的原型器件展现出高度集成及环境适应性强的特性,结合其微刺激大形变、快速响应等优势,在微型机器人、微机电系统等需要精密驱动、对环境扰动敏感的软体机器应用领域展现出巨大的潜力。

感知是软体机器与周围环境交互的基础。在感知方面,液晶高分子的相关研究主要关注如何在更为温和的刺激下实现快速且高效的形变。液晶高分子的形变能力来源于其液晶基元的有序结构变化和分子链构象的转变,因此,在分子尺度调控各组分的极性、刚性等物理化学性质,可有效降低响应阈值,从而显著提升材料对外界刺激的灵敏度。热响应是液晶高分子最常见的刺激响应形式,其响应特性遵循相变热力学原理。通过向液晶高分子中引入柔性链段,或降低液晶基元的刚性和分子极性,可有效降低液晶基元的相转变温度,使材料能够在体温乃至室温条件下实现热响应^[21,22]。光响应是液晶高分子另一重点研究的刺激响应形式。通过引入偶氮苯、二芳基乙烯等光敏基团可赋予液晶高分子紫外光响应的能力^[23,24]。研究者通过扩展偶氮苯的 π -共轭体系,有效降低了其在光致异构化过程中所需克服的能垒,将响应波长拓展至可见光区域^[25,26]。

驱动与传动直接关乎软体机器的能量转换、动力传递和功能实现。对液晶高分子而言,其驱动传动性能与模量、应变这两个关键性能指标直接相关。然而液晶高

分子的弹性模量与其在驱动过程中产生的应变往往呈现负相关特性,这一矛盾严重制约了其在软体机器中的应用潜力。因此,如何突破这种性能制约,实现二者的协同优化已成为当前液晶高分子的研究前沿与攻关重点。在过去几十年,研究者通过分子结构设计和凝聚态结构调控,实现了从聚硅氧烷体系、聚丙烯酸酯体系到全线型聚烯烃体系的迭代创新,对材料同步实现高模量和大应变的化学设计新范式进行了卓有成效的探索。聚硅氧烷类液晶高分子采用铂催化硅氢加成反应构建化学交联网络,其交联密度通常较低^[7,27,28]。由于硅氧键旋转势垒低,聚硅氧烷类液晶高分子表现出优异的链段柔顺性和低玻璃化转变温度($T_g < 5\text{ }^\circ\text{C}$),可在热刺激下实现高达26%的可逆形变^[29,30]。然而,聚硅氧烷类液晶高分子的弹性模量普遍低于5 MPa,仅能用于对输出载荷要求低的应用场景^[6]。随后发明的聚丙烯酸酯类液晶高分子由丙烯酸酯基液晶单体和交联剂通过自由基聚合制备而成,其分子链刚性参数较硅氧烷体系有了显著提升,弹性模量最高可达2 GPa^[7,31]。由于液晶取向的可设计性优越,聚丙烯酸酯类液晶高分子可以实现多样化的形变,可作为对形变复杂度和精细度要求较高的软体机器的驱动部件^[32]。然而,聚丙烯酸酯类液晶高分子能够输出的驱动力相对偏低,且由于交联度高常常表现出脆性,在高负载下容易发生脆断或撕裂^[7]。近年来,Lv等^[20]利用烯烃开环复分解可控聚合,创制了全线型聚烯烃类液晶高分子,其数均相对分子质量高达36万,从而形成显著的物理链缠结。借助高分子链缠结和近晶相层状有序结构形成独特的双重物理交联网络,聚烯烃类液晶高分子表现出优异的形变和力学性能,其输出驱动力足以推动自重10倍的物体做功,模量可达600 MPa,具有与天然蜘蛛丝相媲美的超高韧性,断裂能密度高达 $319 \pm 41\text{ MJ m}^{-3}$,是以往报道体系的100倍。聚烯烃类液晶高分子实现了模量和输出驱动力的同步提升,目前已应用于制备全光控微流体驱动泵、阵列式人工光感受器等,是未来需要进一步重点研究的新一代高性能液晶高分子材料^[33-36]。

软体机器人的智能主要反映在其自主性的发展水平。在智能化方面,液晶高分子的相关研究主要集中在其自生长^[37,38]和自调节行为^[39,40]。通过调控酯键等具有时间—温度等效性的动态共价键,液晶高分子无需人为刺激和能量输入,即可在自然环境中像植物一样“生长”,自发地伸长至一个超过预应变的长度^[37]。进一步,通过选择性调控液晶高分子中酯键的动态特性,可以实现自生长的局域化控制^[38]。智能形变液晶高分子的“自调节”通常指其在外界刺激下改变自身几何结构以适应

环境的行为。在持续变化的外界刺激下,液晶高分子的凝聚态结构和几何结构不断重构,从而表现出自振荡^[39]、集群效应^[40]等仿生智能行为。光响应形变液晶高分子在光照下会由于其固有的吸光特性形成局部曝光区和局部阴影区,其几何结构的变化会同时导致曝光区的变化。借助这种自遮蔽效应,光致形变液晶高分子可以利用简单的静态点光源实现自身所受的局部光刺激的持续变化,因而在自调节相关研究中备受关注。

2.2 介电弹性体

介电弹性体是一种具有高介电常数和良好弹性的电驱动变形材料,具有应变大、弹性能量密度高和响应速度快(毫秒级)等优势。在实际应用中,介电弹性体通常与柔性电极结合形成底部电极—介电弹性体层—顶部电极三明治结构,以构筑电控致动器或传感器。在电场作用下,介电弹性体内部偶极子发生定向排列,引起材料厚度方向压缩并伴随平面扩张,形成各向异性的力电耦合形变。介电弹性体的形变具有精确的可控性,通过电极图案设计与场强梯度调控,可实现弯曲、扭转、波浪形变等多种模式的运动输出,在高性能、高速响应、多模态软体机器等领域存在广阔的应用前景。

目前研究者已利用介电弹性体制备了一系列软体机器原型样机,可以实现爬行、攀爬、飞行、深海潜航等功能^[41-43]。例如,Gu等^[41]利用介电弹性体和电黏附脚制备了爬壁机器人,由于介电弹性体可以通过电控改变自身形态,该机器人可以实现垂直爬壁、主动避障、敏捷转向等多种模式的灵活切换以适应作业环境的变化。Chen等^[42]设计了一种兼具高功率密度和高带宽的碳纳米管复合介电弹性体作为微型飞行器的驱动马达,其在电驱动下可带动机翼高频旋转从而产生升力。由于介电弹性体具有优良的柔性和抗冲击性,该微型飞行器即使在飞行过程中发生碰撞也可以继续运行,表现出在复杂动态环境下作业的稳定性和适应性。Li等^[43]开发了一种能适应深海低温和高水压极端环境的介电弹性体,将其与自供能电路、硅胶结构件结合,构筑了一款自驱动深海探测机器人。该探测机器人结构简单且集成度高,可在水深10 900 m的马里亚纳海沟实现扑翼驱动,在南海3 224 m水深处以5.19 cm s⁻¹的速度自由游泳。

驱动电压过高是介电弹性体在感知性能上现存的最为显著的问题。高电压驱动不仅会导致作业场景受限以及交互安全性降低,还可能破坏分子链或化学键,引发材料击穿。在分子层面上,介电弹性体无法实现低电压响应主要是受到其分子结构和电学性能的内在限制。为了降低驱动电压,研究者往往通过引入高极性基团进行化学改性,或添加具有高介电常数的填料进行共

混改性以提高材料的介电常数^[44-46]。然而,这两种方法容易使材料的介电损耗提高和击穿场强降低,导致能量转化效率低,可操作电压范围受限,耐久性下降。

在驱动方面,介电弹性体目前的主要关注点是提高其在电场作用下的应变大小和能量密度。常用的手段是在弹性体网络中引入羧基、酯基、卤代基、偶氮苯基、氰基等极性化学基团以提高极化能力,但该方法同样面临着介电损耗提高和击穿场强降低带来的问题^[47]。另一种方式是降低介电弹性体的模量,从而使其更容易在低电压下发生大形变,实现更高的能量转换效率。减小介电弹性体的交联密度和链缠结密度,是降低其弹性模量的有效手段^[48]。例如,Mao等^[49]通过向弹性体中引入具有大空间位阻的侧基降低了链缠结密度,将弹性模量降低至~120 kPa。Vatankhah-Varnoosfaderani等^[50]和Karimkhani等^[51]设计了位阻效应显著的具有密集长侧链的瓶刷状网络,极大地降低了链缠结,构筑了弹性模量~10 kPa的超软介电弹性体。然而,降低模量又往往会导致介电弹性体的输出驱动力降低和响应速度变慢。因此,研究者将目光转到了抑制介电弹性体的力电失稳现象上,以同步提升应变、输出驱动力和能量密度。

力电失稳指在电场作用下,介电弹性体因电场力与自身弹性形变之间的非线性耦合作用而发生的突然失稳现象。该现象会导致局部电场集中、材料变形失控,从而引发驱动失效和能量损耗。克服力电失稳能够显著提升介电弹性体的输出驱动力和能量密度。研究表明,介电弹性体在有效抑制力电失稳的情况下,可以输出约为自重1 000倍的驱动力,能量密度可达到生物肌肉典型值(8 kJ m⁻³)的两倍^[47,52]。从链结构的角度出发,克服力电失稳的关键是构筑半刚性链网络,从而避免全柔性链在电驱动下发生突跳式构象转变。早期研究者主要通过预拉伸—框架固定法实现全柔性链向半刚性网络的转变。2000年,Pelrine等^[53]将双轴预拉伸后的介电弹性体膜固定在刚性框架上,实现了大于100%的驱动应变。然而,刚性框架的引入不利于软体机器的小型化,且介电弹性体在长期高拉伸张力的环境下容易产生疲劳。因此,研究者尝试设计第二重高分子网络,从而在无需外置刚性框架的条件下维持预应变和分子链的半刚性。例如,Chen等^[52]通过在介电弹性体网络中原位生成第二重网络,以锁定第一重网络的拉伸状态和分子链的半刚性。该弹性体在电驱动过程中能有效抑制力电失稳,实现了高达~180%的驱动应变。Pei等^[54]则设计了具有互穿网络的介电弹性体,由于两重网络间的相互作用,第一重网络从刚性框架释放后仍处于被拉伸的半刚性状态,可实现高达~230%的驱动应变。另一种

方法是利用位阻效应维持分子链的拉伸状态。例如,Vatankhah-Varnoosfaderani等^[50]和Karimkhani等^[51]设计了具有瓶刷状网络的介电弹性体,其分子链在密集长侧链的位阻效应作用下处于半刚性状态,可实现高达~260%的驱动应变。

2.3 响应型水凝胶

响应型水凝胶具有亲水性交联网络,可吸收大量水分以达到高含水率。在外界刺激下,响应型水凝胶能够通过渗透压、交联密度或分子链构象变化引起的吸水和失水实现可逆形变。目前与响应型水凝胶相关的研究仍主要集中在提高材料本身的形变性能和力学性能上,利用其直接构筑软体机器的工作较为罕见^[55,56]。但也应当注意到,在各类智能形变高分子中,响应型水凝胶的人体亲和性和生物相容性十分突出^[57]。结合其研究相对成熟的体温响应机制,响应型水凝胶在软体机器领域的突破进展或为体内微型手术器械、药物递送系统、医疗植入设备与可穿戴设备等领域带来巨大机遇。

在驱动方面,响应型水凝胶面临的显著问题是响应速度慢,输出驱动力小及力学性能差。目前主流的改进方法包括引入多孔结构或采用非渗透压驱动,虽然可以实现快速形变,但无法有效提高输出驱动力。引入双网络可以在一定程度上提高驱动力和力学性能,但很难提高水凝胶的响应速度。近年来,研究者通过构建各向异性交联网络、提高渗透压等方法,对以上性能的同时优化进行了探索。例如,Zhang等^[58]设计了亲水亲油双网络水凝胶,利用亲油网络锁定亲水网络的各向异性结构,可输出约为自重85倍的驱动力,响应频率(0.11 Hz)相较传统渗透压驱动的体系提升了110倍。Na等^[59]向水凝胶中引入电渗效应并利用选择性渗透膜构建受限溶胀环境,实现了水合离子的快速迁移和渗透压的大幅提升。其响应速度提升至传统渗透压驱动体系的19倍,输出的驱动力高达730 N,足以击碎硬质砖块。Ni等^[60]在温敏水凝胶中引入链取向,将其变形由传质主导的慢过程转变为传热主导的熵变驱动,可实现光热远程控制超快速变形,频率高达1.7 Hz。

在智能化方面,响应型水凝胶的相关研究聚焦在其自生长、自增强和自调节行为。利用界面自由基聚合方法,水凝胶可捕获环境中的单体组成自身并持续增长,实现类似头发角质蛋白的自生长行为^[61,62]。此外,与骨骼肌在力量训练下的自增强行为类似,水凝胶还可以在机械训练下产生力诱导自由基,从而引发交联反应或聚合增长过程,实现强度和刚度的提升^[63,64]。响应型水凝胶的自调节功能目前主要体现为机械自振荡^[65]和温度自振荡^[66],其中机械自振荡的原理和光响应液晶高分子相

似。温度自振荡则主要依赖于光热响应水凝胶所受光刺激的周期性开/关。利用水凝胶在可逆相转变前后从透明转变为不透明的现象,可以动态地调控恒定入射激光束的通过/屏蔽并构建周期性变化的光刺激,进而实现光热效应的周期性开/关和水凝胶体系的周期性升降温。

2.4 形状记忆高分子

形状记忆聚合物的分子结构具有两个必要元素:一是能够在外界刺激下发生运动能力转变的链段,称为转变单元,用于固定临时形状,其中以玻璃化转变和结晶熔融转变最为常见;二是能够防止分子链滑移的交联网络,用于维持永久形状,通常是物理或化学交联网络。形状记忆聚合物能够在外界刺激下对形状进行编辑,并将外力编辑的临时形状固定下来,在适当的外界刺激下又可以由临时形状恢复到永久形状^[67]。在各类智能形变高分子中,形状记忆高分子能够实现宏观结构变化路径的高自由度编程和高复杂性定制,同时具有结构变化幅度大、结构维持无需持续能量输入等特点,因此在可变构器件领域具有显著优势。

目前,研究者已经对由形状记忆高分子构筑的可变构器件进行了初步探索。例如,Zhang等^[68]制备了耐受低温和辐射环境的高模量形状记忆高分子材料,由其制备的可变构锁紧装置成功在火星上展开了天问一号携带的国旗。Ni等^[69]利用一种恢复时间起始点可调的形状记忆高分子构筑了可变构血管支架,能够以折叠状通过狭小的切口,并在植入目标位点后再变构为立体支架。将形状记忆高分子应用于软体机器有望赋予其可变构的结构特征,从而使其更好地适应复杂的作业环境,并确保人机交互的安全性。

在感知方面,形状记忆高分子的进展主要集中在拓展其可感知的刺激源类型。直接热刺激最为常见,但无法实现结构变化的局部控制,能量利用率低,需要改变外界温度,对外界加热条件及作业环境的耐高温性有一定限制。为了应对多元化的作业环境,研究人员通过向形状记忆高分子中添加功能填料,或引入特异性响应基元,实现了对电、磁、光等多种刺激的感知^[70]。其中,填料法主要通过功能填料的电热效应、磁热效应以及光热效应,将环境中其他形式的能量转换成热能用于驱动材料结构的变化,本质上仍然是热刺激响应。虽然热刺激简单易实施,但其固有的热扩散效应成为了形状记忆高分子实现精确的局域化感知的一大障碍。因此,一些研究者尝试利用光化学反应实现无热驱动的结构变化,以避免热扩散效应的影响。向高分子中引入肉桂酸酯基团是实现无热光致形状记忆效应的有效方法之一,但受限于光响应可逆环加成反应的固有机理,所能实现的变

构固定率(36%)和速度(大于1小时)均处于较低水平^[71]。Zhang等^[72]利用偶氮苯基元的光致异构化,使高分子材料可以在室温条件下改变自身的玻璃化转变温度实现形状记忆效应,所能达到的变构固定率(70%)和速度(60 s)明显提升,且固定率和回复率大小均可通过光强灵活控制。

在智能化方面,形状记忆高分子的研究主要聚焦于其自主变构行为。通过动态调控氢键、离子键等具有时间—温度依赖性的弱相互作用,形状记忆高分子无需施加人为刺激,即可在自然环境中自发地实现结构变化。例如,脲嘧啶酮组分所形成的氢键网络的键交换速度具有温度依赖性,并且在室温下具有自发的动态重排倾向。Peng等^[73]向共价交联高分子中引入脲嘧啶酮基元,结合力热条件的控制调节结构编程过程中熵变的大小,进而实现了形状记忆高分子在室温下自主变构速度的调控。随后,Ni等^[69]又通过控制形状记忆高分子的初始相分离结构调控离子键强度的动态演变过程,实现了自主变构起始时间的按需定制。进一步引入肉桂酸酯基团,则形状记忆高分子可通过光交联进行初始相分离结构的图案化设计,从而实现自主变构起始时间的局域化按需定制^[74]。

3 未来发展目标及资助重点

3.1 发展目标

围绕软体机器这一重大应用领域对构筑材料的需求,解决智能形变高分子材料相关的重大科学问题并突破关键技术。针对智能形变高分子材料面临的响应灵敏度低、输出驱动力不足和生物智能特性匮乏等共性问题,发展结构有序的智能形变高分子材料的理性设计和分子创制策略;揭示多尺度/多维度结构精准调控与协同作用机制;探索材料与环境相互作用过程中多级结构非平衡态演变规律;创制感知更灵敏、驱动更强劲、具有类生物智能特性的智慧型高分子材料,为提升软体机器的自主性、适应性和作业能力提供坚实的材料化学基础。通过多学科交叉,突破多尺度结构数字化和数据库构建的技术壁垒,深入研究从分子设计到系统集成全链条技术,打造性能预测—分子设计—规模制备—机器创制—应用示范的完整创新链。

3.2 未来5~10年资助重点

(1)材料的高灵敏感知。揭示智能形变高分子材料降低响应灵敏度阈值的化学和物理机制;研究感知基元的分子结构与材料的环境交互能力之间的关系和影响规律;开发在自然刺激下可实现高特异性响应的感知基元并建立普适性分子设计策略;探索微观响应高效放大

机制,实现复杂动态环境下材料对信息的主动获取和存储。

(2)材料输出驱动力的强化。深入分析智能形变高分子材料的多尺度结构与其输出驱动力及机械性能的内在关系;建立能够提升输出驱动力、实现既强又韧的力学性能的多级结构协同调控机制;构建材料多尺度结构数字化模型及其构效关系的“基因数据库”,实现材料形变、力学性能的准确模拟和预测。

(3)材料的学习、记忆等类生物智能特性。辨识智能形变高分子材料的耗散结构与能量转化、信息传递的关系和影响规律;揭示材料在环境作用下的自组织行为和自主性、自适应性之间的内在机理;建立类生命体的非平衡态调控机制,在物质层面上实现自学习、记忆等生物智能特性。

(4)加工成型、结构设计及系统集成的理论和方法。发展智能形变高分子材料与其他功能、结构材料的多材料一体化加工成型技术与结构设计理论;深入研究材料在光、电、磁等环境作用下的主动形变规律,以及在被动受力时的非线性本构关系;探索适用于软体机器的新型驱动传动理论与方法,开发实现其动态精确作业的控制方案;建立感知—驱动—传动—结构—控制一体化的软体机器集成设计方法。

4 结语

智能形变高分子材料同时具备立足基础科学、面向软体机器等重大应用的鲜明特点。以性能预测—分子设计—规模制备—机器创制—应用示范为研究链条,其发展高度依赖多学科交叉融合,具有很强的探索性和前沿性。我国在智能形变高分子材料领域的基础化学研究已有较好的研究基础,同时也面临着世界各国加快部署以抢占技术前沿与市场的挑战。为抢占软体机器发展的下一个制高点,亟需开展智能形变高分子化学创制,向智慧型高分子材料迈进,以期推动未来软体机器技术的持续创新与发展。

参考文献

- [1] 刘辛军,于靖军,王国彪,等. 机器人研究进展与科学挑战. 中国科学基金, 2016, 30(5): 425—431.
Liu XJ, Yu JJ, Wang GB, et al. Research trend and scientific challenge of robotics. Bulletin of National Natural Science Foundation of China, 2016, 30(5): 425—431. (in Chinese)
- [2] Lerch MM, Grinthal A, Aizenberg J. Viewpoint: Homeostasis as inspiration—toward interactive materials. Advanced Materials, 2020, 32(20): 1905554.
- [3] Walther A. Viewpoint: From responsive to adaptive and interactive

- materials and materials systems: A roadmap. *Advanced Materials*, 2020,32(20): 1905111.
- [4] Kaspar C, Ravoo BJ, van der Wiel WG, et al. The rise of intelligent matter. *Nature*, 2021, 594(7863): 345—355.
- [5] Merindol R, Walther A. Materials learning from life: Concepts for active, adaptive and autonomous molecular systems. *Chemical Society Reviews*, 2017, 46(18): 5588—5619.
- [6] Pang XL, Lv JA, Zhu CY, et al. Photodeformable azobenzene-containing liquid crystal polymers and soft actuators. *Advanced Materials*, 2019, 31(52): 1904224.
- [7] White TJ, Broer DJ. Programmable and adaptive mechanics with liquid crystal polymer networks and elastomers. *Nature Materials*, 2015, 14(11): 1087—1098.
- [8] Wu S, Hong YY, Zhao Y, et al. Caterpillar-inspired soft crawling robot with distributed programmable thermal actuation. *Science Advances*, 2023, 9(12): eadf8014.
- [9] Pang WB, Xu SW, Wu J, et al. A soft microrobot with highly deformable 3D actuators for climbing and transitioning complex surfaces. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2022, 119(49): e2215028119.
- [10] Huang CL, Lv JA, Tian XJ, et al. Miniaturized swimming soft robot with complex movement actuated and controlled by remote light signals. *Scientific Reports*, 2015, 5: 17414.
- [11] Shahsavan H, Aghakhani A, Zeng H, et al. Bioinspired underwater locomotion of light-driven liquid crystal gels. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2020, 117(10): 5125—5133.
- [12] Jeon J, Choi JC, Lee H, et al. Continuous and programmable photo-mechanical jumping of polymer monoliths. *Materials Today*, 2021, 49: 97—106.
- [13] Hu J, Nie ZZ, Wang DM, et al. Springtail-inspired light-driven soft jumping robots based on liquid crystal elastomers with monolithic three-leaf panel fold structure. *Angewandte Chemie International Edition*, 2023, 62(9): e202218227.
- [14] Nie ZZ, Zuo B, Wang M, et al. Light-driven continuous rotating Möbius strip actuators. *Nature Communications*, 2021, 12(1): 2334.
- [15] Deng ZX, Li K, Priimagi A, et al. Light-steerable locomotion using zero-elastic-energy modes. *Nature Materials*, 2024, 23(12): 1728—1735.
- [16] Wang ZJ, Li K, He QG, et al. A light-powered ultralight tensegrity robot with high deformability and load capacity. *Advanced Materials*, 2019, 31(7): 1806849.
- [17] Kotikian A, McMahan C, Davidson EC, et al. Untethered soft robotic matter with passive control of shape morphing and propulsion. *Science Robotics*, 2019, 4(33): eaax7044.
- [18] Gelebart AH, Jan Mulder D, Varga M, et al. Making waves in a photoactive polymer film. *Nature*, 2017, 546(7660): 632—636.
- [19] Zhao YS, Liu ZX, Shi PJ, et al. Antagonistic-contracting high-power photo-oscillators for multifunctional actuations. *Nature Materials*, 2025, 24(1): 116—124.
- [20] Lv JA, Liu YY, Wei J, et al. Photocontrol of fluid slugs in liquid crystal polymer microactuators. *Nature*, 2016, 537: 179—184.
- [21] Bauman GE, McCracken JM, White TJ. Actuation of liquid crystalline elastomers at or below ambient temperature. *Angewandte Chemie International Edition*, 2022, 61(28): e202202577.
- [22] McCracken JM, Donovan BR, Lynch KM, et al. Molecular engineering of mesogenic constituents within liquid crystalline elastomers to sharpen thermotropic actuation. *Advanced Functional Materials*, 2021, 31(16): 2100564.
- [23] Yu YL, Nakano M, Ikeda T. Directed bending of a polymer film by light. *Nature*, 2003, 425: 145.
- [24] Hebner TS, Podgórski M, Mavila S, et al. Shape permanence in diarylethene-functionalized liquid-crystal elastomers facilitated by thiol-anhydride dynamic chemistry. *Angewandte Chemie International Edition*, 2022, 61(11): e202116522.
- [25] Wu W, Yao LM, Yang TS, et al. NIR-light-induced deformation of cross-linked liquid-crystal polymers using upconversion nanophosphors. *Journal of the American Chemical Society*, 2011, 133(40): 15810—15813.
- [26] Jiang Z, Xu M, Li FY, et al. Red-light-controllable liquid-crystal soft actuators via low-power excited upconversion based on triplet-triplet annihilation. *Journal of the American Chemical Society*, 2013, 135(44): 16446—16453.
- [27] Herbert KM, Fowler HE, McCracken JM, et al. Synthesis and alignment of liquid crystalline elastomers. *Nature Reviews Materials*, 2022, 7: 23—38.
- [28] Küpfer J, Finkelmann H. Nematic liquid single crystal elastomers. *Die Makromolekulare Chemie, Rapid Communications*, 1991, 12(12): 717—726.
- [29] 卿鑫, 吕久安, 俞燕蕾. 光致形变液晶高分子. *高分子学报*, 2017, 48(11): 1679—1705.
- Qing X, Lv JA, Yu YL. Photodeformable liquid crystal polymers. *Acta Polymerica Sinica*, 2017, 48(11): 1679—1705. (in Chinese)
- [30] Terentjev EM. Liquid-crystalline elastomers. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 1999, 11(24): R239—R257.
- [31] Ohm C, Brehmer M, Zentel R. Liquid crystalline elastomers as actuators and sensors. *Advanced Materials*, 2010, 22(31): 3366—3387.
- [32] Mehta K, Peeketi AR, Liu L, et al. Design and applications of light responsive liquid crystal polymer thin films. *Applied Physics Reviews*, 2020, 7(4): 041306.
- [33] Peng B, Chen XL, Yu GD, et al. A neuron-readable artificial photoreceptor composed of photodeformable liquid crystal polymers and piezoelectric materials. *Advanced Functional Materials*, 2023, 33(23): 2214172.
- [34] Liu Q, Yu GD, Zhu CY, et al. An integrated droplet manipulation platform with photodeformable microfluidic channels. *Small Methods*, 2021, 5(12): 2100969.
- [35] Lu Y, Qin L, Liu Q, et al. Contactless manipulation of mixed phase fluids in liquid crystal polymer microtubes assisted with light-driven Vortex. *NPG Asia Materials*, 2022, 14: 73.
- [36] Xu B, Zhu CY, Qin L, et al. Light-directed liquid manipulation in flexible bilayer microtubes. *Small*, 2019, 15(24): e1901847.
- [37] Liang H, Wu YH, Zhang YB, et al. Elastomers grow into actuators. *Advanced Materials*, 2023, 35(12): 2209853.
- [38] Xu HT, Liang H, Yang Y, et al. Rejuvenating liquid crystal elastomers for self-growth. *Nature Communications*, 2024, 15(1): 7381.
- [39] Zhao YS, Li QF, Liu ZX, et al. Sunlight-powered self-excited oscillators for sustainable autonomous soft robotics. *Science Robotics*, 2023, 8(77): eadf4753.

- [40] Li SC, Lerch MM, Waters JT, et al. Self-regulated non-reciprocal motions in single-material microstructures. *Nature*, 2022, 605(7908): 76—83.
- [41] Gu GY, Zou J, Zhao RK, et al. Soft wall-climbing robots. *Science Robotics*, 2018, 3(25): eaat2874.
- [42] Chen YF, Zhao HC, Mao J, et al. Controlled flight of a microrobot powered by soft artificial muscles. *Nature*, 2019, 575(7782): 324—329.
- [43] Li GR, Chen XP, Zhou FH, et al. Self-powered soft robot in the *Mariana* trench. *Nature*, 2021, 591(7848): 66—71.
- [44] Feng WW, Sun L, Jin ZK, et al. A large-strain and ultrahigh energy density dielectric elastomer for fast moving soft robot. *Nature Communications*, 2024, 15(1): 4222.
- [45] Yang D, Tian M, Li DD, et al. Enhanced dielectric properties and actuated strain of elastomer composites with dopamine-induced surface functionalization. *Journal of Materials Chemistry A*, 2013, 1(39): 12276—12284.
- [46] Pan CF, Markvicka EJ, Malakooti MH, et al. A liquid-metal-elastomer nanocomposite for stretchable dielectric materials. *Advanced Materials*, 2019, 31(23): 1900663.
- [47] 陈哲琪, 罗英武. 介电弹性体驱动器: 从分子、材料到器件. *中国科学: 化学*, 2024, 54(11): 2183—2198.
Chen ZQ, Luo YW. Dielectric elastomer actuators: Molecules, materials, and devices. *SCIENTIA SINICA Chimica*, 2024, 54(11): 2183—2198. (in Chinese)
- [48] Qiu Y, Zhang E, Plamthottam R, et al. Dielectric elastomer artificial muscle: Materials innovations and device explorations. *Accounts of Chemical Research*, 2019, 52(2): 316—325.
- [49] Mao J, Li TF, Luo YW. Significantly improved electromechanical performance of dielectric elastomers *via* alkyl side-chain engineering. *Journal of Materials Chemistry C*, 2017, 5(27): 6834—6841.
- [50] Vatankhah-Varnoosfaderani M, Daniel WFM, Zhushma AP, et al. Bottlebrush elastomers: A new platform for freestanding electroactuation. *Advanced Materials*, 2017, 29(2): 1604209.
- [51] Karimkhani V, Vatankhah-Varnoosfaderani M, Keith AN, et al. Tissue-mimetic dielectric actuators: Free-standing, stable, and solvent-free. *ACS Applied Polymer Materials*, 2020, 2(5): 1741—1745.
- [52] Chen ZQ, Ma ZP, Tang JL, et al. Adaptively reconstructing network of soft elastomers to increase strand rigidity: Towards free-standing electro-actuation strain over 100. *Materials Horizons*, 2021, 8(10): 2834—2841.
- [53] Pelrine R, Kornbluh R, Pei Q, et al. High-speed electrically actuated elastomers with strain greater than 100%. *Science*, 2000, 287(5454): 836—839.
- [54] Ha SM, Yuan W, Pei Q, et al. Interpenetrating polymer networks for high-performance electroelastomer artificial muscles. *Advanced Materials*, 2006, 18(7): 887—891.
- [55] Zhu QL, Liu WX, Khoruzhenko O, et al. Animating hydrogel knotbots with topology-invoked self-regulation. *Nature Communications*, 2024, 15(1): 300.
- [56] Li WZ, Wang XL, Liu ZY, et al. Nanoconfined polymerization limits crack propagation in hysteresis-free gels. *Nature Materials*, 2024, 23(1): 131—138.
- [57] Wu JJ, Deng J, Theodoridis G, et al. Adhesive anti-fibrotic interfaces on diverse organs. *Nature*, 2024, 630(8016): 360—367.
- [58] Zhang LH, Yan H, Zhou JJ, et al. High-performance organohydrogel artificial muscle with compartmentalized anisotropic actuation under microdomain confinement. *Advanced Materials*, 2023, 35(9): 2202193.
- [59] Na H, Kang YW, Park CS, et al. Hydrogel-based strong and fast actuators by electroosmotic turgor pressure. *Science*, 2022, 376(6590): 301—307.
- [60] Ni CJ, Chen D, Wen X, et al. High speed underwater hydrogel robots with programmable motions powered by light. *Nature Communications*, 2023, 14(1): 7672.
- [61] Xu RN, Zhang YL, Ma SH, et al. A universal strategy for growing a tenacious hydrogel coating from a sticky initiation layer. *Advanced Materials*, 2022, 34(11): 2108889.
- [62] Jian NN, Guo R, Zuo L, et al. Bioinspired self-growing hydrogels by harnessing interfacial polymerization. *Advanced Materials*, 2023, 35(12): 2210609.
- [63] Matsuda T, Kawakami R, Namba R, et al. Mechanoresponsive self-growing hydrogels inspired by muscle training. *Science*, 2019, 363(6426): 504—508.
- [64] Wang Z, Zheng XJ, Ouchi T, et al. Toughening hydrogels through force-triggered chemical reactions that lengthen polymer strands. *Science*, 2021, 374(6564): 193—196.
- [65] Zhao YS, Xuan C, Qian XS, et al. Soft phototactic swimmer based on self-sustained hydrogel oscillator. *Science Robotics*, 2019, 4(33): eaax7112.
- [66] Zhang H, Zeng H, Eklund A, et al. Feedback-controlled hydrogels with homeostatic oscillations and dissipative signal transduction. *Nature Nanotechnology*, 2022, 17(12): 1303—1310.
- [67] Chen GC, Jin BJ, Shi YP, et al. Rapidly and repeatedly reprogrammable liquid crystalline elastomer *via* a shape memory mechanism. *Advanced Materials*, 2022, 34(21): 2201679.
- [68] Zhang D, Liu LW, Xu PF, et al. World's first application of a self-deployable mechanism based on shape memory polymer composites in Mars explorations: Ground-based validation and on-Mars qualification. *Smart Materials and Structures*, 2022, 31(11): 115008.
- [69] Ni CJ, Chen D, Yin Y, et al. Shape memory polymer with programmable recovery onset. *Nature*, 2023, 622(7984): 748—753.
- [70] Kumpfer JR, Rowan SJ. Thermo-, photo-, and chemo-responsive shape-memory properties from photo-cross-linked metallo-supramolecular polymers. *Journal of the American Chemical Society*, 2011, 133(32): 12866—12874.
- [71] Lendlein A, Jiang HY, Jünger O, et al. Light-induced shape-memory polymers. *Nature*, 2005, 434(7035): 879—882.
- [72] Zhang X, Zhu CY, Xu B, et al. Rapid, localized, and athermal shape memory performance triggered by photoswitchable glass transition temperature. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2019, 11(49): 46212—46218.
- [73] Peng WJ, Zhang GG, Zhao Q, et al. Autonomous off-equilibrium morphing pathways of a supramolecular shape-memory polymer. *Advanced Materials*, 2021, 33(34): 2102473.
- [74] Huang JC, Qiu LT, Ni CJ, et al. Shape memory polymers with patternable recovery onset regulated by light. *Advanced Materials*, 2024, 36(39): 2408324.

Chemical Foundation of Intelligent Shape-changing Polymer Materials towards Soft Robots

Yanlei Yu^{1*} Tao Xie² Mingjie Liu³ Xiaoyu Zhang¹ Feng Pan¹ Jia Wei¹ Lang Qin¹

1. Department of Materials Science, Fudan University, Shanghai 200438, China

2. College of Chemical Engineering and Biotechnology, Zhejiang University, Hangzhou 310012, China

3. College of Chemistry, Beihang University, Beijing 100191, China

Abstract The intelligent shape-changing polymers are the core materials for achieving the integrated design of perception-actuation-transmission-architecture in soft robots, and are vital for enhancing their adaptability, autonomy, and operational capabilities. However, the perception-actuation performance and the intelligence level of current materials are insufficient to meet the demands of autonomous control in soft robots. Hence, to break through the bottlenecks of weak perception-actuation performance and limited autonomy via innovative chemical design has decisive influence on the future prosperity of soft robots. Against this backdrop, the National Natural Science Foundation of China convened the 391st Shuang Qing Forum with the theme of “Materials Science towards Future Intelligent Materials” from December 1st ~ 2nd, 2024. Focusing on the cutting-edge issues such as “Chemical Foundation of Intelligent Shape-Changing Polymer Materials towards Soft Robots”, the forum discussed the key scientific questions that required deeper exploration in this field. It also proposed recommendations for frontier and interdisciplinary research directions and the organization of major research programs.

Keywords intelligent shape-changing polymers; soft robots; stimuli-responsive; autonomy; adaptability

俞燕蕾 复旦大学特聘教授,材料科学系主任。致力于智能液晶高分子材料及其柔性器件研究。主持国家自然科学基金重点项目、国家重大科研仪器研制项目、国家重点研发计划项目等多项研究课题。荣获上海市自然科学奖一等奖、中国化学会—赢创化学创新奖—杰出科学家奖。

(责任编辑 贾祖冰 张强)

* Corresponding Author, Email: ylyu@fudan.edu.cn