

平成10年度 新規産業創出型産業科学技術研究開発
新エネルギー・産業技術総合開発機構委託

成果報告書

「知的材料・構造システムの研究開発」
(エネルギー使用合理化関係技術実用化開発)

平成11年3月

財団法人
次世代金属・複合材料研究開発協会



010013408-9

「知的材料・構造システムの研究開発」

(エネルギー使用合理化関係技術実用化開発)

財団法人 次世代金属・複合材料研究開発協会

平成11年3月 (表紙共 136頁)

研究目的

大型化、複雑化が進む機械・構造システムの省資源、省エネルギー化を実現するためには、材料や構造の軽量化、長寿命化を図る必要があり、そのためには、材料や構造の軽減等が不可欠である。そこで、複合材料あるいは複合材料の構造物に、繊維あるいは箔状にしたセンサ材料・素子を一体化し、情報処理・制御を行うことにより、リアルタイムで損傷探知や健全性の診断等の機能、及び、騒音・振動制御等の機能を付与した材料・構造システムの基盤技術の開発を行う。

まえがき

この報告書は、大学連携型産業科学技術研究開発制度に基づき、新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) より当協会が受託した「知的材料・構造システムの研究開発」(エネルギー使用合理化関係技術実用化開発) について、5 ヶ年計画の初年度である平成 10 年度の成果をとりまとめたものである。

当 (財) 次世代金属・複合材料研究開発協会は、1981 年 8 月に設立され、以来一貫して先進的金属と複合材料の研究開発を推進してきた。第 1 期は 1981 年度から 88 年度の 8 年間で、通産省工業技術院の次世代産業基盤技術研究開発制度の下に、「高性能結晶制御合金」及び「複合材料」プロジェクトを実施した。第 2 期は 1989 年度から 96 年度の 8 年間で、第 1 期と同様次世代プロジェクトとして、「超耐環境先進材料」プロジェクトを実施した。現在は、1997 年度から始まる第 3 期に当たる。97 年度に開始した「スーパーメタル」プロジェクト (開発期間 5 年)、98 年度に開始した本プロジェクト、「超低損失柱上トランス」プロジェクト (開発期間 4 年)、「輸送用先進複合材料」プロジェクト (開発期間 5 年) の計 4 件の多彩な大型プロジェクトを擁するマルチプロジェクト体制で進めている。

本「知的材料・構造システム」プロジェクトは、内容面と体制面で画期的な新規性がある。

内容面では、先進複合材料にセンサー材料やアクチュエータ材料を一体化し、脳や筋肉の役割を持たせたスマート構造材の開発を狙い、4 つのサブテーマに分れる。第 1 はヘルスマニタリング技術である。供用中の複合材料・構造システム中の損傷について、光ファイバー等を用いたセンサーシステムにより、種類、位置、サイズ等を同定し、構造材の健全性をリアルタイムで検知・診断し、損傷制御を可能にする。第 2 はスマートマニュファクチャリング技術で、健全なスマート構造材の成形技術を開発する。第 3 はアクティブ・アダプティブ構造技術である。センサーシステムに加え、アクチュエータシステムも構造材に組み込み、振動・騒音抑制等を可能にする。第 4 はアクチュエータ材料・素子の開発であり、用途に適合した特性の圧電セラミックス、形状記憶合金の開発及びこれらを用いたアクチュエータ素子を開発する。

体制面では、工業技術院の産業科学技術研究開発制度の新しいフレームとして、1998 年度からスタートした「大学連携型」プロジェクトの 1 つであることが特記される。共同研究先は、東京大学、大阪市立大学、名古屋大学及び東北大学の 4 大学で、各大学に集中研究所を設置している。参加する民間は、16 企業、1 団体。この他、米国のワシントン大学と東京都立科学技術大学が再委託先として参加している。更に、国立研究機関で、機械技術研究所、名古屋工業技術研究所、物質工学工業技術研究所の協力も得られている。

初年度の 1998 年度は、順調にスタートした。ここに、その成果を新エネルギー・産業技術総合開発機構に提出することとなった。関係者の各位に深甚たる感謝の意を表する。

(財) 次世代金属・複合材料研究開発協会 専務理事 荻布真十郎

巻頭言

プロジェクトリーダー
東京大学先端科学技術研究センター
岸 輝 雄

産業科学技術研究開発制度の大学連携プロジェクト第1号として、本プロジェクトが平成10年よりスタートし、このような形で成果報告書を提出できることは喜ばしい次第である。大学連携とは、大学の技術の芽を産業界と共に育成し、応用・開発の研究を通して将来の産業育成に貢献することを目的としたものである。この際重要なこととは、産技のプロジェクトであるという点である。単純に大学が主導で興味ある産業界が参加して行うということではなく、産業界に繋がる技術を育成する手法として大学の萌芽研究を全面に押し出したものと言える。

実際の推進は4人の大学教授からなるサブリーダーと、そのサブリーダーの所属する大学での集中研究を基本とする17の民間機関の共同研究から成り立っている。この他に工業技術院の機械技術研究所、物質工学工業技術研究所、名古屋工業技術研究所が国立研究所として研究に加わっているが、全体の研究推進と事務取扱いはRIMCOF（財）次世代金属・複合材料研究開発協会）が統括して進めている。

構造物を作成し（大阪府大グループ）、その稼働中の欠陥損傷をモニタリングし（東京大学グループ）、それをアクチュエーターを用いて修復制御（東北大学グループ）することより成り立っている。振動、騒音を含め全体の構造システムをアクティブアダプティブの観点よりまとめあげるのが、名古屋グループということになる。知的という言葉を使う以上、重要なことはセンシングとアクチュエーターを両方働かせるものでなくてはならない。また、システムという以上は最終的に構造物として成立した形をとる必要がある。

現状では各要素技術が成熟した段階に到達しているとは言い難いので、4つのサブグループに分けて要素技術の確立を、3年をめどに推進する計画である。もちろん、奥行き深い要素技術であるがゆえに、本研究プロジェクトの5カ年を通して要素技術の発展を計画している。この要素技術を組み合わせることにより、デモンストレーターを作り上げるのが本5年間の一つの大きな目標と言える。デモンストレーターは目的であると同時に、デモンストレーターを作る過程において何が本当に必要な技術であるかを明確に抽出する役割も担う。すなわち、要素技術とデモンストレーターの可逆的な研究計画が重要と考えられる。

本年は4つのサブグループの研究が順調に立ち上がり、この成果報告書の内容となっている。次年度以降は、デモンストレーター一部会を有識者の参加を得て、新たに設立し、デモンストレーターの基本設計、詳細設計へと向かう計画である。4要素技術の研究とデモンストレーターの研究が平行に、そしてかつ相互に融合することが本プロジェクトの重要な点であり、また一方で、4要素技術は集中研方式で、デモンストレーターはプロジェクトリーダーのもとに製造技術を有する企業が中心に推進する方式を取り入れることになる。

技術は簡明であり、利用する人々に分かり易いものでなくてはならない。また一方で材料の将来は、Smart（知的）Integrate（統合）Complex（複層に）の方向に向かうといえよう。この流れの先陣を切る本プロジェクトが「簡明なシステム」を目指す方向を考えることを強く意識したい。

このプロジェクトの立ち上げまでに、機械情報産業局航空機武器宇宙産業課、工業技術院産業科学技術研究開発課、NEDOそしてRIMCOFの多大なるご指導、ご支援を受けたことを感謝する次第である。また先導研究を実施し、このプロジェクトに結びつけるために砂川東京大学名誉教授を初めとする皆様方のご努力に感謝したい。新しい大学連携のあり方を模索する意味も含めて、本研究の推進とその成果に関して関係各位のより一層のご支援をお願いする次第である。

目 次
まえがき
巻 頭 言
概 要

〔平成 10 年度研究開発実施状況〕

1. 研究実施状況	
1.1 研究期間	1
1.2 研究項目と実施状況	1
1.3 研究開発の実施場所	1
1.4 研究組織	2
1.5 研究担当者氏名	2
2. 研究目標と成果	6

本 文
〔研究内容〕

I. スマート・マニュファクチャリング技術の開発	
1. 研究開発の成果と達成状況	1
1.1 研究開発の成果	1
1.1.1 要約	1
1.1.2 本文	3
1.2 達成状況	18
1.3 結論	20
2. 研究発表・講演、文献、特許等の状況	20
II. アクチュエータ材料・素子の開発	
1. 研究開発の成果と達成状況	22
1.1 研究開発の成果	22
1.1.1 要約	22
1.1.2 本文	25
1.2 達成状況	71
1.3 結論	72
2. 研究発表・講演、文献、特許等の状況	72

Ⅲ. 総合調査研究	
1. 要約 81
2. 本文 82

国立研究所

- I. 工業技術院 物質工学工業技術研究所
- II. 工業技術院 名古屋工業技術研究所

概 要

〔平成10年度研究開発実施状況〕

1. 研究実施状況

1.1 研究期間

平成 10 年 9 月 29 日から
平成 11 年 3 月 31 日まで

1.2 研究項目と実施状況

(1) スマートマニファクチャリング技術の開発

大型化、複雑化が進む機械・構造システムの省資源、省エネルギー化を実現するスマートマニファクチャリング技術を開発するため、まず複合材料／構造物の成形品の内部状態を検出するためのセンシング技術について検討を行った。

(2) アクチュエータ材料・素子の開発

省エネルギーの製造プロセスを考慮した、セラミックスアクチュエータ材料・素子の製造及び基盤技術開発、機械・構造システムの省資源、省エネルギー化を実現させる形状記憶合金系アクチュエータの開発に着手した。

(3) 総合調査研究

各要素グループ間の連携、協力の円滑な推進と、プロジェクトの研究成果および関連知識のメンバーによる共有・共用をはかるため、技術委員会、内外調査研究を行った。

1.3 研究開発の実施場所

大阪市立大学 工学部 福田研究室	大阪府大阪市住吉区杉本町三丁目 3 番 138 号
東北大学 流体科学研究所	宮城県仙台市青葉区片平二丁目 1 番 1 号
ワシントン大学	DEPARTMENT OF MECHANICAL ENGINEERING BOX 352600 SEATTLE, WASHINGTON 98195-2600 U.S.A
財団法人 次世代金属・複合材料 研究開発協会(RIMCOF)	東京都港区虎ノ門 3 番 25 番地 2 号
三菱重工業株式会社 名古屋航空宇宙システム製作所	愛知県名古屋市港区大江町 10

1.4 研究組織

取りまとめ機関	研究項目	研究機関
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	(1)スマートマニュファクチャリング技術の開発	大阪市立大学 三菱重工業(株) 石川島播磨重工業(株)
	(2)アクチュエータ材料・素子の開発	東北大学 (株)富士セラミックス 関東特殊製鋼(株) (株)トーキン
	(3)総合調査研究	(財)RIMCOF

尚、図1に研究開発組織図を図示した。

1.5 研究担当者氏名

1.5.1 研究開発

(1)スマートマニュファクチャリング技術の開発

大学/会社	氏名	所属・役職	備考
大阪市立大学	福田 武人	工学部 教授	共同研究
大阪市立大学	元木 信弥	工学部 助教授	共同研究
大阪市立大学	逢坂 勝彦	工学部 助教授	共同研究
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	山口 泰弘	研究員	三菱重工業(株)
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	吉田 幹根	研究員	三菱重工業(株)
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	酒井 茂	研究員	三菱重工業(株)
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	神野 昌明	研究員	三菱重工業(株)
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	盛田 英夫	研究員	石川島播磨重工業(株)
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	柳沢 健一	研究員	石川島播磨重工業(株)
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	北出 真太郎	研究員	石川島播磨重工業(株)
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	奥村 郁夫	研究員	石川島播磨重工業(株)
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	山岸 謙二郎	研究員	石川島播磨重工業(株)

(2) アクチュエータ材料・素子の開発

大学／会社	氏名	所属・役職	備考
東北大学	谷 順二	流体科学研究所 教授	共同研究
東北大学	渡邊 龍三	工学研究科 教授	共同研究
東北大学	中村 僖良	工学研究科 教授	共同研究
東北大学	裘 進浩	流体科学研究所 講師	共同研究
東北大学	高木 敏行	流体科学研究所 教授	共同研究
東北大学	松本 實	素材工学研究所 講師	共同研究
東北大学	古屋 泰文	工学研究科 助教授	共同研究
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	加藤 和弘	研究員	(株)富士セラミックス
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	高橋 弘文	研究員	(株)富士セラミックス
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	相場 満	研究員	関東特殊製鋼(株)
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	喜瀬 純男	研究員	関東特殊製鋼(株)
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	山内 清	研究員	(株)トーキン
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	武田 進	研究員	(株)トーキン

(3) 総合調査研究

大学／会社	氏名	所属・役職	備考
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	佐藤 純一	知的材料・構造システム研究開発センター長	
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	榊原 俊夫	知的材料・構造システム研究開発センター 技術部長	
(財)次世代金属・複合材料研究開発協会	野田 稔	知的材料・構造システム研究開発センター 部長	

(4) 再委託研究

大学／会社	氏名	所属・役職	備考
ワシントン大学	田谷 稔	機械工学科 教授	
ワシントン大学	井上 漢龍	材料工学科 研究教授	
ワシントン大学	玉川 浩久	機械工学科 ポストドクター	
ワシントン大学	森 勉	機械工学科 客員研究員	
ワシントン大学	スザンナ・ポポビッチ	院生	

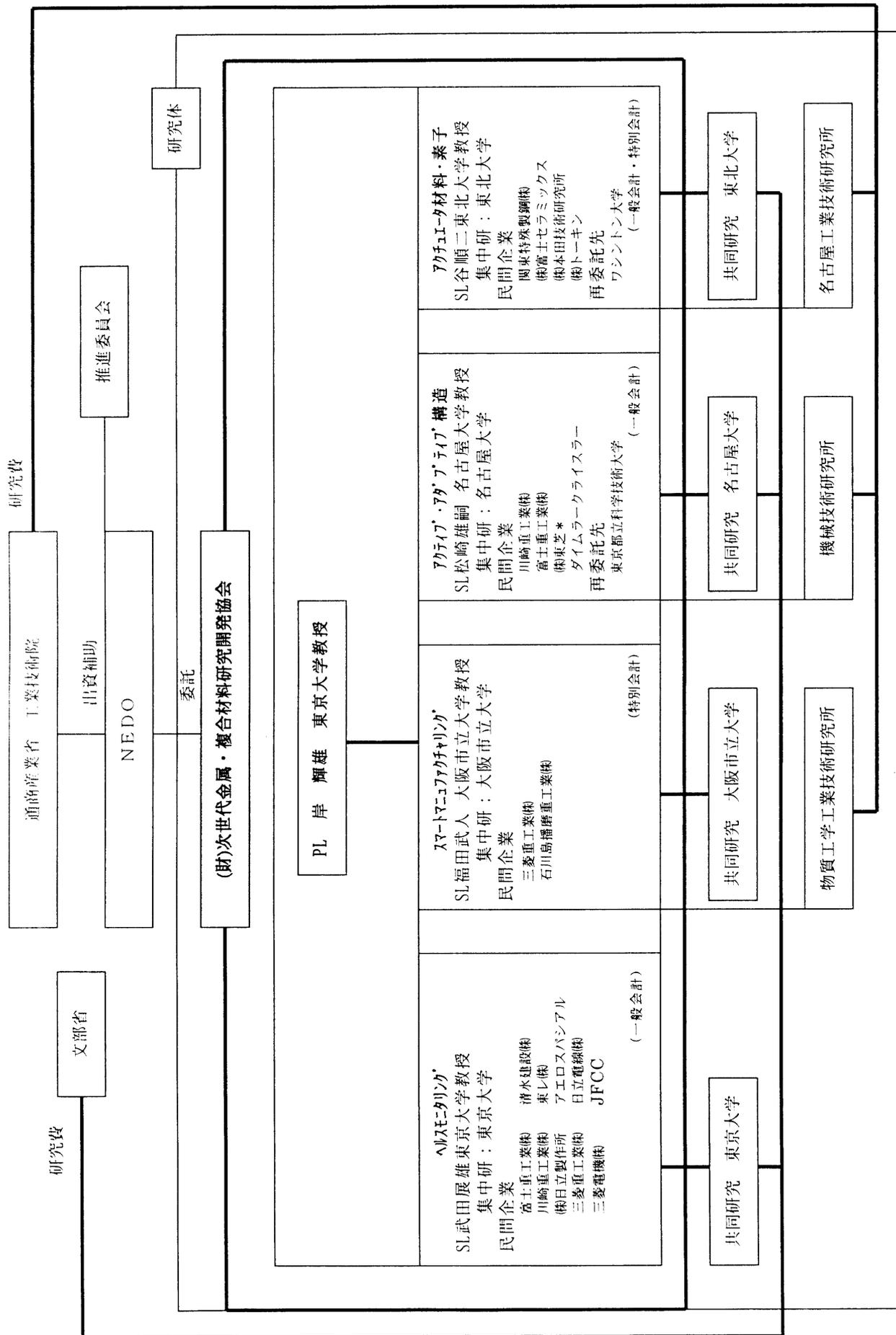


図1 平成10年度 知的材料・構造システム研究開発組織図

1.5.2 技術委員会

(1) 知的材料・構造システム技術委員会

委員長(PL)	岸 輝雄	PL 東京大学 先端科学技術研究センター 教授
委員(SL)	武田 展雄	SL 国際・産学共同研究センター 教授
(50音順)	谷 順二	SL 東北大学 流体科学研究所 所長・教授
	福田 武人	SL 大阪市立大学 工学部 機械工学科 教授
	松崎 雄嗣	SL 名古屋大学 大学院 工学研究科航空宇宙工学専攻 教授
委員	相場 満	関東特殊製鋼(株) 研究開発部 主任研究員
(50音順)	卜部 啓	工業技術院 物質工学工業技術研究所 複合材料部 構造機能グループ 主任研究官
	大澤 晋	日立電線(株) 高砂工場 監視システム部 副技師長
	尾崎 毅志	三菱電機(株) 先端技術総合研究所 金属・セラミックス技術部 主席研究員
	加藤 和昭	富士セラミックス(株) 開発部 部長
	上村 康二	アエロスパリアル 東京支店 支店長補佐
	菊川 広繁	富士重工業(株) 航空宇宙事業本部 宇都宮製作所 所長付
	菊島 義弘	工業技術院 機械技術研究所 極限技術部 振動制御研究室 主任研究官
	北野 彰彦	東レ(株) 愛媛工場 複合材料研究所 トレカ研究室 主任研究員
	三田 富雄	川崎重工業(株) 岐阜技術研究所 機体技術研究部 構造研究グループ グループ長
	嶋本 吉春	(株)東芝 宇宙開発事業部 宇宙事業推進部 企画担当課長
	関谷 忠	工業技術院 名古屋工業技術研究所 セラミックス基礎部 電子セラミックス研究室 主任研究官
	田中 信雄	東京都立科学技術大学 生産情報システム工学科 教授
	田谷 稔	ワシントン大学 機械工学科 兼 材料工学科 教授(米国)
	服部 敏雄	(株)日立製作所 機械研究所 主管研究員
	林 直義	(株)本田技術研究所 栃木研究所 エグゼクティブチーフエンジニア
	松原 秀彰	(財)ファインセラミックスセンター 試験研究所 主管主席研究員
	三田 彰	清水建設(株) 技術研究所 主任研究員
	村上 由利子	ダイムラー・ベンツ日本(株) 技術リサーチ 課長代理
	盛田 英夫	石川島播磨重工業(株) 技術研究所 宇宙熱機器開発部 課長
	山内 清	(株)トーキン 電子材料事業本部 商品開発部 技術部長
	山口 泰弘	三菱重工業(株) 名古屋航空宇宙システム製作所 研究部 主管
事務局	荻布 真十郎	(財)次世代金属・複合材料研究開発協会 専務理事
	佐藤 純一	(財)次世代金属・複合材料研究開発協会 知的材料・構造システム研究開発センター長
	榊原 俊夫	(財)次世代金属・複合材料研究開発協会 知的材料・構造システムセンター 技術部長
	野田 稔	(財)次世代金属・複合材料研究開発協会 知的材料・構造システムセンター 部長
オブザーバー		通商産業省 工業技術院産業科学技術研究開発課 通商産業省 機械情報産業局航空機武器宇宙産業課 新エネルギー・産業技術総合開発機構 応用技術開発室

2. 研究目標と成果

(1) スマートマニファクチャリング技術の開発

知的成形プロセス技術に関して、各種センシング技術やモデリング技術検討に着手、する一方、新型光ファイバ歪みセンサの開発や、細径光ファイバ模擬品を埋め込んだ複合材料をオートクレーブで試作し、健全性等の評価等に着手することを目標にした。

成果として、まずオートクレーブ成形におけるマトリックス樹脂の硬化状態の検出が、誘電率センサを成形品に埋め込むことで可能であることを明らかにした、また、RTM 成形において、マトリックス樹脂の硬化状態およびフローフロント位置の両方を検出可能な、複合機能を有するセンサを新しく考案し、成形実験によりその有効性を確認した。さらに一体化について検討し、光ファイバセンサを強化繊維と角度を有して埋め込んだ場合、樹脂リッチ部がセンサの周囲に形成され、積層板の力学特性に影響が現れる可能性を明らかにした。

(2) アクチュエータ材料・素子の開発

セラミックスアクチュエータの開発について、圧電セラミックスの傾斜構造素子化、シート化やマイクロ波焼結法、形状記憶合金系アクチュエータの開発においては、感温型形状記憶合金や、磁性形状記憶合金の開発に着手することを目標とした。

成果としてまず、大歪みの発現が期待される PNN-PZT 系セラミックスのモデル傾斜構造素子を試作し、その可能性を確認した。また、シート化は、20～100 μm のグリーンシートの作製が可能となり、線材料については、PZT 前駆体の調整条件の確立ができた。エネルギー効率の高いマイクロ波焼結法によって圧電セラミックスの焼結体の試作に成功し、エネルギー効率の高い圧電セラミックスの焼結ができる見通しを得た。

形状記憶合金型アクチュエータ材料の開発においては、感温型合金について、急冷凝固法のプロセス適用が特性向上に非常に有効であることを実証した、磁性形状記憶合金アクチュエータ材料については、Ni-Mn-Ga 系合金で約 1 μm の膜厚まで成膜させることに成功し、特性評価にも着手することができた。

(3) 総合調査研究

各テーマの研究開発成果を総合するため技術委員会等を開催して、研究開発の進捗状況の点検等を行うとともに、技術の総合化に関連する調査研究、大学への再委託による共通基盤技術の研究開発を行うことを目標とした。

成果として、各要素研究および次年度から開始するデモンストレータ試験を含めて、課題と推進方針について技術委員会、幹事会、デモンストレータ準備会を開催して、検討を行った。要素研究で得られはじめた成果に基いた「もの作り」に指向するデモンストレータ

への指向の重要性で共通認識をもつことができた。

また、調査研究については、平成 10 年 10 月に幕張で行われた第 4 回インテリジェント材料国際会議に参加し、現時点での当分野における最新の研究開発の把握を行い、さらに米、欧での現状調査を実施し、関連技術分野の研究の最新情報を得ることができた。さらに再委託研究により、アクチュエータ材料について、委託先のワシントン大学において高分子系アクチュエータ材料利用等の基礎的検討にも着手した。

本 文

〔研究内容〕

I. スマートマニュファクチャリング技術の開発

1. 研究開発の成果と達成状況

1.1 研究開発の成果

1.1.1 要約

(1)和文

本年度は、複合材料/構造物のスマートマニュファクチャリング技術を開発するため、まず、成形品の内部状態を検出するためのセンシング技術について検討した。以下に、項目に分けて述べる。

(a)マトリックス樹脂の硬化状態の検出

誘電率センサを成形品に埋め込み、オートクレーブ成形実験を行うことにより、マトリックス樹脂の硬化状態が検出できることを明らかにした。また、RTM 成形については、マトリックス樹脂の硬化状態およびフローフロント位置の両方を検出することが可能な複合機能を有するセンサを新しく考案し、成形実験によりその有効性を実証した。

(b)内部ひずみの検出

成形品の内部ひずみについては、2種類の EFPI 光ファイバひずみセンサを用いて、成形過程における成形品の内部ひずみを測定した。測定の対象としたのは、エポキシ系およびビスマレイミド系樹脂をマトリックスとする FRP 積層板である。実験の結果、EFPI センサではその構造により、積層板に埋め込まれたことによる測定結果への影響が現れる場合と、現れない場合があること、また、その測定感度も異なることがわかった。

(c)フローフロントの検出

先に述べた複合機能を有するセンサを用いて、RTM 成形における 1 次元および 2 次元のフローフロントの検出を行った。その結果、本研究で開発したセンサにより、精度よく成形過程におけるフローフロントが検出できることがわかった。

センシング技術の確立に加えて、さらに、成形を行いながら、センサにより検出した成形品の内部状態のデータに基づいて、成形シミュレーションを同時に行い、最適な成形条件を決定する必要がある。成形シミュレーションのためには内部状態とともに、マトリックス樹脂の硬化特性、流動特性などの基礎的な物性を把握しておくことが不可欠である。そこで、本年度はエポキシ、タフエポキシ系およびビスマレイミド系樹脂について、示差熱分析(DSC)データを取得し、そのデータから硬化反応速度式を導出した。また、マトリックス樹脂の粘度を測定し、さらに、硬化反応速度式を用いてその粘度を温度と硬化度の関数として把握した。RTM 成形においては、特に、樹脂のプリフォームへの含浸過程において、樹脂と繊維の濡れ性が重要となるため、強化繊維(ガラス、炭素繊維)と熱硬化性樹脂(エポキシ樹脂等)の濡れ性について測定した。さらに、熱可塑性樹脂 FRP プレス成形において重要となる熱可塑性樹脂(PEEK、ポリプロピレン樹脂)の温度・溶融粘弾性関係のデータを測定した。

さらに、センサ、アクチュエータのスマート複合材料への一体化技術の開発が必要であるため、本年度は、EFPI 光ファイバセンサを埋め込んだ FRP 積層板について、その埋め込み部の顕微鏡による断面観察を行った。その結果、光ファイバセンサを強化繊維と角度を有して埋め込んだ場合、埋め込まれ

たセンサの周囲に樹脂リッチ部が形成され、積層板の力学的特性に影響が現れる可能性が示唆された。一方、光ファイバセンサを強化繊維と同方向に埋め込んだ場合は、樹脂リッチ部が形成されることもなく、埋め込みには適していることがわかった。

以上述べたように、本年度はセンシング技術による成形品の均質化の保証、基礎的データの取得による最適成形条件の決定、スマート複合材料への一体化技術の確立を実現するための成果が得られた。これらの成果は、製品の均質化、最適な成形条件による成形歩留まりの向上、信頼性の向上等により、省エネルギー、省資源に大いに貢献することが期待される。

(2)英文

In this fiscal year, the sensing techniques for detecting the internal state of molded composite are investigated in order to develop the smart manufacturing technology of composite materials/structures. The following are detail results obtained:

(a) Sensing of curing state of matrix resin

We conducted molding experiments in embedding dielectric sensors between prepregs. It is found that the curing state of matrix resin can be detected in autoclave molding process. For RTM processing, we developed a new sensor by which both the resin flow front and curing state of the resin can be detected. Precise molding experiments showed that this new multi-functional sensor system worked very well.

(b) Detection of internal strain

We used 2 different types of EFPI optical-fiber-strain sensor systems for monitoring the internal strain of composite materials in molding process. The FRP laminates with matrix resin of epoxy and bismaleimid resin are investigated. It is found that the embedding effects on the response of EFPI sensors can appear sometimes and does not appear in other cases, and 2 types of EFPI sensors have different sensitivity for strain.

(c) Detection of flow front

Using the aforementioned multi-functional sensor, we conducted a series of experiment for specifying its capability of flow front detection of resin. The newly developed sensor system could detect the flowing resin front with good accuracy in RTM resin filling stage.

One of main goals of the project is to perform process simulations of composites for determination of the optimum processing conditions being based on the data of the internal state of the materials. It is indispensable for such process simulation to furnish the fundamental properties of the resin such as cure and flow characteristics. We obtained the DSC data of epoxy, tough-epoxy and bismaleimid resins and deduced the reaction rate equations of these resins. We also measured the viscosity of resins and then, using the reaction rate equation, we could obtain the dependence of the viscosity on temperature and the degree of cure. Because the wettability

between fibers and resin is a crucial factor in RTM processing, particularly in impregnation stage of resin into fiber preforms, thus we measured the wettability between the reinforcing fibers (glass fiber, carbon fiber) and thermosetting resins. For the press forming of thermoplastic composites, we measured the data of the relation between temperature and melt visco-elasticity for PEEK and poly-propylene resins etc.

For the embedding technique of the sensors and actuators into smart composites, we observed precisely the cross section of embedded part of EFPI optical fiber sensor by microscope. If the optical fiber is in off-axis with the reinforcing fibers, the resin rich part is formed in the vicinity of the embedded optical fiber sensor, and it is strongly suggested that it affect the mechanical performance of the composite laminates. On the other hand, if the optical fiber is in co-axis with the reinforcing fibers, the resin rich part does not appear and it is suitable for embedding optical fiber sensors.

In summary, we obtained the results of confirming the composite product uniformity by development of sensing techniques, determination of the optimum molding conditions by obtaining basic data, and a way for embedding technology of sensors/actuators to smart composites. These results are expected to much contribute to the energy-saving and resource-saving by product uniformity, and by improving the cost-performance and reliability of composite products.

1.1.2 本文

(1)研究開発の目的

大型化、複雑化が進む機械・構造システムの省資源、省エネルギー化を実現するためには、複合材料/構造物にセンサ、アクチュエータを一体化して、そのスマート化を行うことが有効であると考えられる。複合材料/構造物のスマート化により、材料や構造の信頼性および安定性を向上させ、部材厚の低減、維持管理に要する作業量・頻度の軽減等が可能となり、材料や構造物の軽量化、長寿命化が実現される。

そこで、本研究開発は複合材料/構造物のスマート化を実現する上での基本技術となる、スマートマニファクチャリング技術を開発することを目的とするものである。

(2)全体計画

(2-1)グループ全体

(a)知的成形プロセス技術：センシング技術の確立

既存の各種のセンサについての文献調査および研究会形式の調査を行い、各種センサの限界、改善点などを検討する。

(b)知的成形プロセス技術：モデリング技術の開発

オートクレーブおよびRTM成形において、成形シミュレーションを行うための基礎データを得るため、マトリックス樹脂の基礎物性を測定する。さらに、誘電率センサなどを用いて成形過程における樹脂の流動、硬化特性を把握する。

(c)知的成形プロセス技術：モデリング技術の開発

精密プレス成形における熱可塑性樹脂の溶融と固化プロセスを明らかにするため、熱可塑性樹脂の基礎物性を計測し、成形シミュレーションに必要な物性データを収集する。

(d)一体化技術：材料健全性評価

各種センサを埋め込んだ複合材料を試作し、センサの埋め込み状態を詳しく検討する。そして、これらの結果を用いて、センサの最適な埋め込み位置を求める。

(2-2)知的成形プロセスの工業技術基盤の開発

平成10年度は、既存のセンサを用いて成形時の硬化モニタリングを検討し、成形シミュレーションの基礎データを取得する。又、複合材料母構造へセンサ一体化技術の基礎検討を行う。具体的には

(a)知的成形プロセス技術の開発

(a-1)センシング技術の確立

熱硬化性樹脂（タフエポキシ樹脂系、耐熱樹脂系材料）を対象に、既存のセンサを用いてオートクレーブ成形での樹脂硬化過程をモニタリングする上での問題点、改善点などを検討する。

(a-2)モデリング技術の開発

RTM成形における繊維プリフォーム中の樹脂流動の理論モデル化を検討する。

(b)母構造とセンサ、アクチュエータ等の一体化技術の確立

(b-1)健全性の評価と確保技術

成形中にセンサに破壊、機能低下を起こさない成形条件の検討評価を行う。

(2-3)知的FRPプレス成型技術の工業技術基盤の開発

初年度として、実験設備の購入仕様を検討して導入するとともに、基礎物性データの収集と取得を行う。購入仕様検討および物性データ収集のためには、既存設備による試験片の成形も行う。

(a)熱可塑FRPのプレス成形

- ・成形プロセスを詳細に観察するための装置を検討し、導入する。
- ・成形シミュレーションに必要な素材物性値のデータ収集、計測装置の導入を行う。

(b)熱硬化FRPのRTM成形

- ・各種センシングメカニズムの技術的検討を行うとともに、成形実験装置の仕様検討と導入を行う。
- ・マトリックス樹脂の基礎物性データを取得する。

(3)研究成果のまとめ

(3-1)知的成形プロセス技術の開発

(a)センシング技術の確立

(a-1) 成形過程における内部状態センシング用センサ

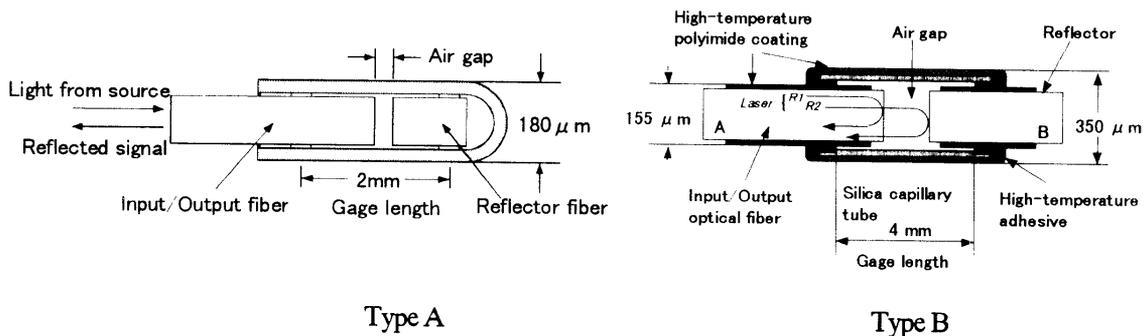
①マトリックス樹脂の硬化状態検出センサ

マトリックス樹脂の硬化状態の検出には、樹脂の硬化による誘電特性の変化を検出すること

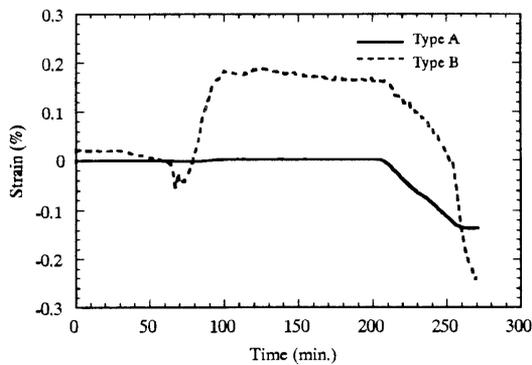
により可能となる。そこで、本研究ではFRP 成形品に埋め込みやすいように、フレキシブルな高分子フィルムに電極をプリントした楯形誘電センサを使用した。

②内部ひずみ測定センサ(オートクレーブ成形)

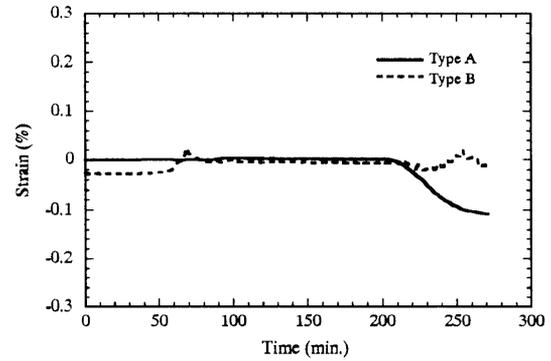
オートクレーブ成形における成形品の内部ひずみ測定には、埋め込みの影響が少なく、成形後のヘルスマonitoringにも使用可能であると考えられる EFPI 光ファイバひずみセンサを使用した。本研究では、センシング部の構造が少し異なる 2 種類の EFPI 光ファイバセンサ Type A (FISO 社製) と Type B (F&S 社製) を使用して(図(3-1).1)、まず、成形過程におけるガラス/エポキシ積層板の内部ひずみ測定を行った。図(3-1).2 と 3 に一方向強化 GFRP 積層板の強化繊維方向および繊維と直交する方向の内部ひずみ測定結果をそれぞれ示す。この結果より、成形過程の最後の冷却過程(成形開始後 200 分以降)で、Type B のセンサは強化繊維と直交する方向について引張ひずみを測定しており、正確な内部ひずみが測定できないのに対して、Type A のセンサは圧縮ひずみを検出していることから、内部ひずみが測定可能であることがわかった(図(3-1).3)。これは、図(3-1).1 に示すセンサの構造の相違に主に起因するものと考えられる。しかし、強化繊維方向のひずみ測定結果から、Type B センサは Type A センサに比べて、オートクレーブ内の加圧に対応してひずみ出力が変化しており、Type A に比べて、感度が高いことがわかった(図(3-1).2)。さらに、これらの結果より、2 種類のセンサを使い分けることにより、より有用なセンシングを行える可能性が示された。



図(3-1).1 EFPI 光ファイバセンサ



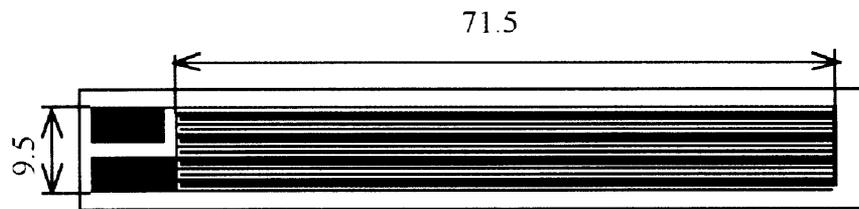
図(3-1).2 成形時間に対する GFRP 積層板の内部ひずみ測定結果(強化繊維方向)



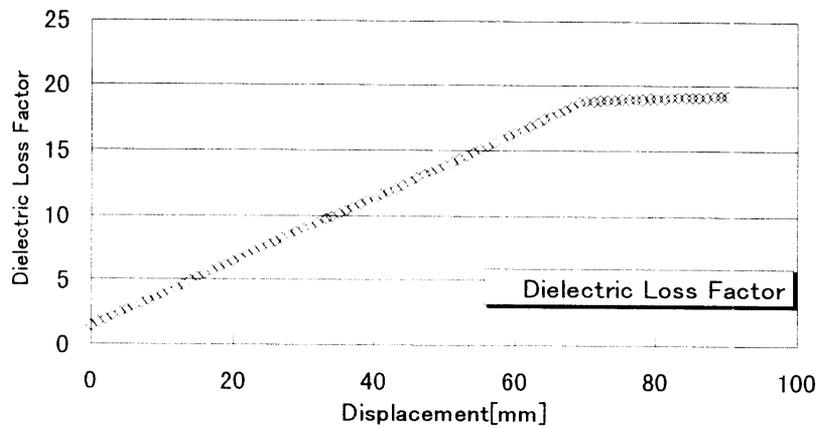
図(3-1).3 成形時間に対する GFRP 積層板の内部ひずみ測定結果(強化繊維と直交する方向)

③フローフロント・硬化状態検出多機能センサ(RTM 成形)

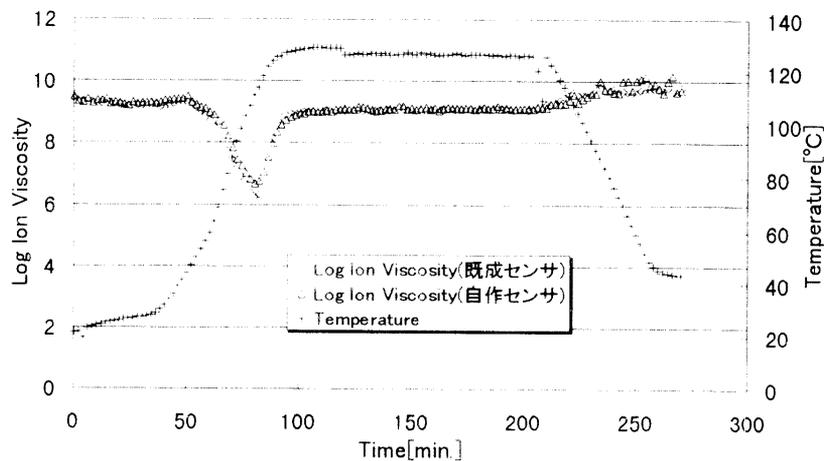
本研究では、楕円誘電センサを基本に、その形状などを工夫することにより、RTM 成形のフローフロントの検出およびその硬化状態を1つのセンサで測定できる多機能センサを開発した(図(3-1).4)。このセンサは、RTM 成形型に樹脂が流れる方向に設置して使用する構造になっている。図(3-1).5にセンサにおけるマトリックス樹脂の浸漬長さ(面積)と誘電特性の関係を示す。図から樹脂がセンサを覆った距離(面積)とセンサ出力の間に線型関係があることがわかる。したがって、このセンサによりマトリックス樹脂のフローフロントを検出できることがわかった。また、多機能センサおよび樹脂硬化測定用に一般に市販されている既成センサを設置した型へ樹脂を充填し、加熱硬化過程におけるセンサ出力を測定した。その結果を図(3-1).6に示す。この結果より、本多機能センサは樹脂硬化測定用の既成のセンサと同様にマトリックス樹脂の硬化状態の測定が可能であることがわかった。



図(3-1).4 フローフロント・硬化状態検出多機能センサ



図(3-1).5 センサにおけるマトリックス樹脂の浸漬長さと同電特性の関係



図(3-1).6 成形時間に対する既成センサと多機能センサ(自作センサ)のイオン粘度測定結果

④熱可塑性FRP成形用センサ

熱可塑性FRPの成形時に起こる成形不良には、ボイドやヒケのような欠陥や、樹脂の収縮や熱応力による寸法精度不良・ソリの発生などがある。これらは温度、ひずみ、樹脂の熔融粘度、といったパラメータによって分析できると考えられ、その測定のために適用可能なセンシングの方法について検討した。その結果、①熱電対（温度）、②光ファイバひずみセンサ（ひずみ）、③誘電率式センサ（粘度）、が候補として考えられることがわかった。

光ファイバセンサ適用の可能性について検討するため、光ファイバを埋めこんだ熱可塑性FRP平板の成形試験を行った。使用した材料は、炭素繊維/PEEK樹脂の一方強化プリプレグ、成形方法はオートクレーブ法である。最高温度は390℃、最大加圧力は0.98および0.49MPaである。光ファイバの埋めこみはプリプレグの層間へ挿入する方法によった。光ファイバを埋めこんで成形した平板について断面観察を行い、光ファイバの損傷の有無について確認した。

(a-2)成形過程における内部状態センシング技術

①マトリックス樹脂の硬化状態の検出

(イ)オートクレーブ成形

エポキシ樹脂/ガラス繊維プリプレグ積層板に先に述べた楕形誘電センサを埋め込み、成形過程における誘電率の変化を測定した。また、カーボン繊維(CF)/タフエポキシ系樹脂プリプレグ積層板及びCF/ビスマレイミド系樹脂プリプレグ積層板に楕形誘電センサを埋め込み、硬化度を測定した。反応熱の解析から導出した硬化反応速度式による計算値に比べ、センサの測定値は早期に反応終点を示した。(図(3-1).12 参照) 硬化過程を精度良くモニタリングするためには、より感度の良いセンサが必要と考えられる。

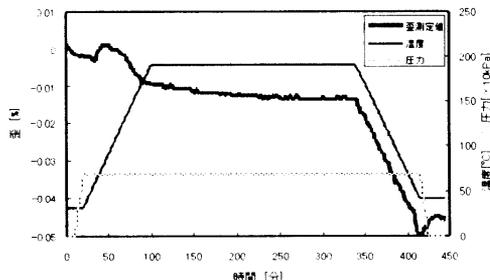
(ロ)RTM 成形

フローフロント・硬化状態検出多機能センサを金型に設置することにより、マトリックス樹脂の硬化状態が測定できることがわかった。

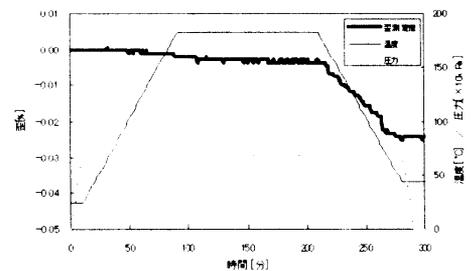
②内部ひずみ測定(オートクレーブ成形)

2種類のEFPI光ファイバセンサを使用したひずみ測定システムを使用して、成形過程におけるGF/エポキシ積層板の内部ひずみを測定した。そして、内部ひずみの測定がEFPI光ファイバセンサにより可能であることがわかった。

CF/タフエポキシ系樹脂プリプレグ積層板及びCF/ビスマレイミド系樹脂プリプレグ積層板に2種類(Type A, Type B)のEFPI光ファイバセンサを埋め込み、硬化過程での内部ひずみを測定した。そのうち、Type A(FISO社製)のセンサでは、硬化中にわずかに圧縮歪がかかり、降溫過程でさらに圧縮歪がかかる傾向が見られた(図(3-1).7.8)。感度は低いですが、硬化中の歪が樹脂の硬化収縮を検出しているものとすれば、硬化収縮によって生じる内部応力のモニタリング手段として有望であり、今後詳細な検討が必要と考えられる。



図(3-1).7 カーボン繊維/ビスマレイミド系樹脂プリプレグ積層板成形時の内部歪 (FISO社製光ファイバセンサ)



図(3-1).8 カーボン繊維/タフエポキシ系樹脂プリプレグ積層板成形時の内部歪 (FISO社製光ファイバセンサ)

③フローフロントの検出(RTM 成形)

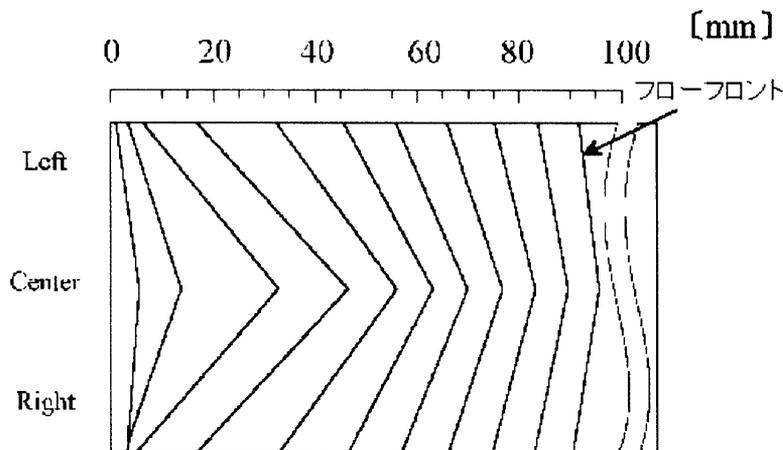
(イ)1次元流れの検出

図(3-1).5で示したように、フローフロント・硬化状態検出多機能センサにより、センサのマトリックス樹脂に浸される長さ、センサにより検出される誘電特性の変化の間に、線形

関係があることが示され、1次元流れのフローフロントの検出が可能であることがわかった。実際のRTM型内における1次元流れにおけるフローフロントの検出については、次の2次元流れにおけるフローフロントの検出が、3本の1次元流れを検出するセンサを組み合わせ、そのフローフロント検出結果を基本として実現されていることから、次に示す2次元流れのフローフロント検出結果が、1次元流れにおけるフローフロント検出能力を表していることになる。次の2次元流れの結果で示すように、1次元流れのフローフロント検出が本多機能センサにより可能であることがわかった。

(ロ)2次元流れの検出

金型内に複数(3本)のフローフロント・硬化状態検出多機能センサを設置し、マトリックス樹脂の代わりにシリコンオイルを型内に注入して、センサによるフローフロントの検出および目視による観察を行った。その結果を図(3-1).9に示す。測定結果では、目視観察結果とセンサによる結果との間に少しの違いが見られたが、図に示すように中央のフローフロントが両端より早く進む様子が検出され、2次元流れのフローフロントの検出が可能であることがわかった。

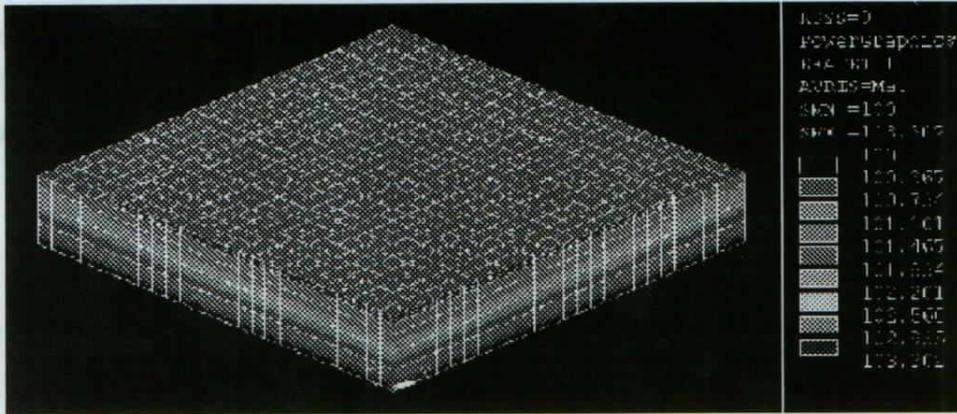


図(3-1).9 多機能センサにより測定されたフローフロントの変化

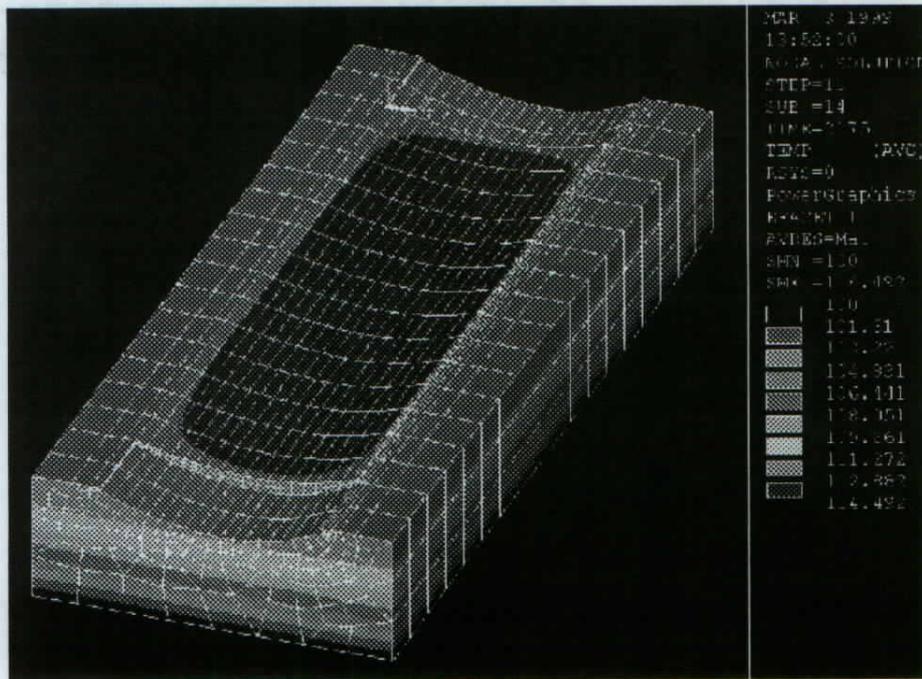
④センシング位置の検討（プレス成形）

ジェットエンジン静翼のような3次元複雑形状の成形品をプレス成形する場合には、成形品内の温度が均一にならず、温度分布ができることによってヒケやポイドといった成形不良が起る場合が多いと考えられる。これらを防ぐためには、成形品の中で温度が不均一になりやすい部分を知り、センサによってその場所の温度を監視することが必要である。そこで、①熱可塑性FRP平板と成形金型、②ジェットエンジン静翼と金型、を模擬したモデルを用い、成形中の冷却過程について3次元非定常の伝熱解析を行い、センサによるモニタが必要な部分について検討した。冷却速度はそれぞれの場合について1.8,16°C/minを設定し、冷却速度の違いによ

る温度分布の変化についても検討した。図(3-1).10 に平板の伝熱解析結果の例を、図(3-1).11 に静翼の伝熱解析結果の例を示す。



図(3-1).10 FRP 平板と金型の伝熱解析結果の例 (冷却速度 8°C/min の場合の温度分布)



図(3-1).11 FRP 静翼と金型の 3次元伝熱解析結果の例
(冷却速度 8°C/min の場合の温度分布)

(b)マトリックス樹脂の特性

(b-1) オートクレーブ成形用熱硬化樹脂

①硬化反応速度式

(イ)硬化反応過程解析の基本モデル

オートクレーブ成形過程の解析手法は、Springer ら¹²⁾により詳細に検討されており、プリフォーム中の温度/硬化度分布の予測に限れば、例えば以下の基礎式で表現できる。

$d\alpha/dt = \text{func.}(\alpha, T) \dots\dots$ [硬化反応速度式]

$$\rho C_p (\partial T / \partial t) = \rho Q (d\alpha / dt) + \lambda_x (\partial^2 T / \partial x^2) + \lambda_y (\partial^2 T / \partial y^2) + \lambda_z (\partial^2 T / \partial z^2)$$

(α : 硬化度、 ρ : プリフォーム密度、 $\lambda_x, \lambda_y, \lambda_z$: プリフォームの熱伝導度、 C_p : プリフォームの比熱、 Q : プリフォームの単位重量あたり反応熱)

ここで、樹脂の硬化反応速度式を導出する必要がある。等温加熱及び等速昇温での反応熱(示差熱分析データ)から硬化反応速度式を導出する方法¹³⁾⁴⁾が知られているが、ここでは等速昇温のデータのみを用いる簡易な方法を試みた。

(ロ)熱物性データからの硬化反応速度式の導出

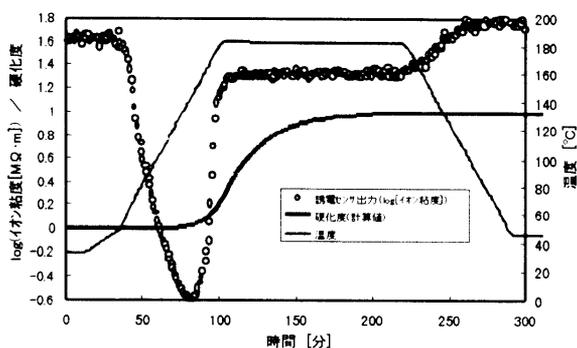
オートクレーブ硬化用のタフエポキシ系樹脂及びビスマレイミド系樹脂各1種について示差熱分析を実施し、そのデータを基に、下記の通り硬化反応速度式を求めた。

(α : 硬化度、 T : 温度[K])

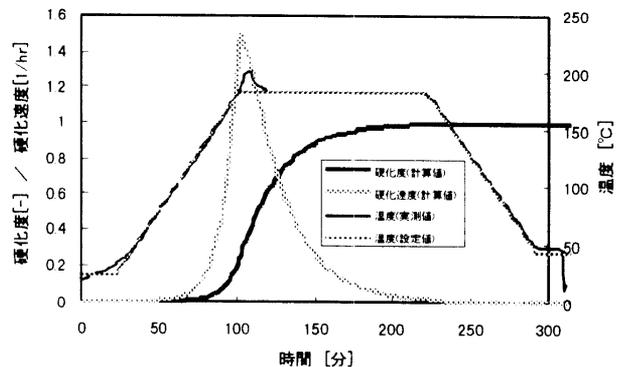
・タフエポキシ系 : $d\alpha/dt = [5035.7 \cdot \exp(-7803.7/T) + 1167100 \cdot \exp(-9695.7/T)] \cdot \alpha^{0.41} (1-\alpha)^{1.15}$

・ビスマレイミド系 : $d\alpha/dt = [15423 \cdot \exp(-8558/T) + 1538000 \cdot \exp(-10293/T)] \cdot \alpha^{0.32} (1-\alpha)^{1.02}$

タフエポキシ系樹脂について、硬化反応速度式から計算される硬化度の時間的推移を、(a-1) ①項の誘電センサでの測定値と比較した結果を図(3-1).12 に示す。計算値では硬化度が50~60%程度の時点で、誘電センサが反応終点を示すことがわかる。また、カーボン繊維/タフエポキシ系樹脂の厚板平板(88層、約12mm)の成形時に反応熱によるとみられる過昇温が生じたが、この過昇温がピークとなる時点と、上記の硬化反応速度式から計算される硬化速度(即ち発熱速度)がピークとなる時点がほぼ一致している(図(3-1).13)ことから、硬化反応速度式はほぼ妥当なものと思われる。



図(3-1).12 硬化度計算値と誘電センサ出力との比較(タフエポキシ系樹脂)



図(3-1).13 CFRP 成形時の過昇温と硬化速度計算値との比較(タフエポキシ系樹脂)

(b-2) RTM成形用熱硬化性樹脂

①硬化反応速度式

エポキシ系及びビスマレイミド系のRTM用熱硬化樹脂各1種について示差熱分析を実施し、そのデータを基に、(b-1) ①と同様に硬化反応速度式を求めた。

(α : 硬化度、 T : 温度[K])

・エポキシ系 : $d\alpha/dt = 17965 \cdot \exp(-7657.8/T) \cdot (1-\alpha)^{1.05}$

・ビスマレイミド系 : $d\alpha/dt = 150090 \cdot \exp(-9079/T) \cdot (1-\alpha)^{1.19}$

②粘度の温度・硬化度依存性

エポキシ系及びビスマレイミド系のRTM用熱硬化樹脂各1種について粘度測定を実施し、(b-2) ①項の硬化反応速度式を用いて、下記の通り粘度を温度と硬化度の関数として把握した。

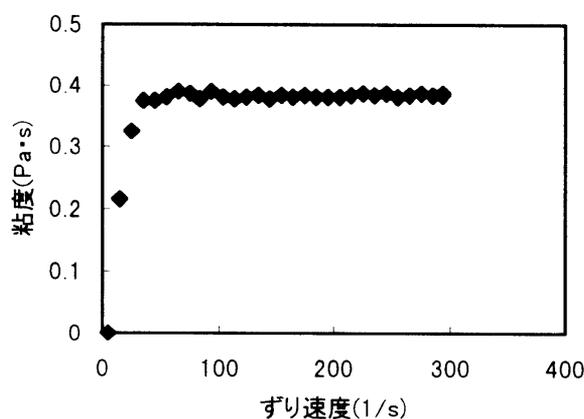
(μ : 粘度[Pa·s]、 α : 硬化度、 T : 温度[K])

・エポキシ系 : $\mu = 6.73 \times 10^{12} \cdot \exp(25.5\alpha + 10146/T)$

・ビスマレイミド系 : $\mu = 7.95 \times 10^{14} \cdot \exp(53.4\alpha + 12923/T)$

③ずり速度-粘度特性

濡れ性と樹脂含浸挙動の関係に関する実験を行うための基礎データとして、回転式粘度計を用いてエポキシ樹脂とシリコンオイル（比較用）のずり速度-粘度特性のデータを取得した。エポキシ樹脂（油化シェルEP801：YH300-＝重量比5:3）の粘度測定結果を図(3-1)14に示す。ずり速度25(1/s)以上ではほぼ一定の0.38Pa·sであった。比較用に測定したシリコンオイル（信越化学KF-96-50CS）において、ずり速度25(1/s)以上ではほぼ一定の0.055Pa·sであった。



図(3-1).14 エポキシ樹脂のずり速度—粘度 関係（主剤 EP801+硬化剤 YH300、20℃）

④濡れ性

(イ)濡れ性の測定

繊維プリフォームへの樹脂の含浸過程では、樹脂の加圧力や金型内の減圧力だけでなく、繊維と樹脂との「濡れ性」が考慮すべきパラメータとなる可能性がある。そこで、「濡れ性」の効果について検討するための基礎データとして、熱硬化性樹脂（エポキシ樹脂、比較用シリコンオイル）と繊維との濡れ性（接触角）を測定した。エポキシ樹脂とシリコンオイルは粘度を測定したものと同じものを用い、ガラス繊維と炭素繊維は織物から1本の繊維を抜き出して使用した。使用したガラス繊維織物は鐘紡 KS2750、炭素繊維織物は日本グラファイトファイバーPF50である。その結果、炭素繊維・ガラス繊維とも、エポキシ樹脂との接触角は約40°、シリコンオイルとの接触角は0°であった。

(ロ)濡れ性がRTM成形に及ぼす影響についての検討

測定した濡れ性が、樹脂の含浸速度やFRP成形品のボイド形成に及ぼす影響について、実際の平板成形時に樹脂の含浸速度を測定するとともに、成形品の断面観察を行い検討した。試験条件は濡れ性の影響が大きいと考えられる、高い（60%程度）の繊維体積含有率とした。

多孔質の物体や粒子空隙など、浸透性の物体中の流れの式として、RTM成形のシミュレーションにも一般的に用いられているDarcy則は、一次元流れの場合次の式で表される。

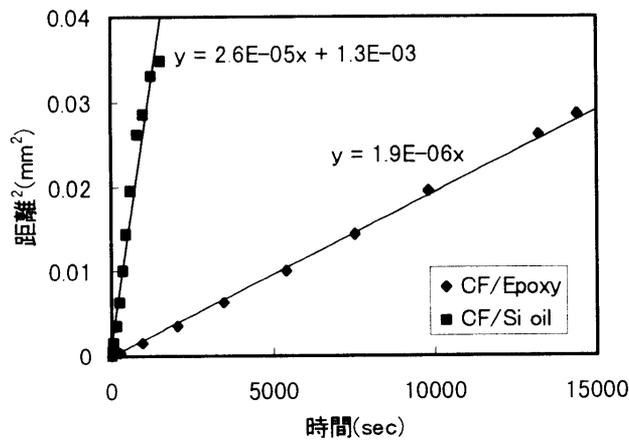
$$u = -k/\eta \cdot dP/dL$$

u は流れの速度、 η は流体の粘度、 dP/dL は圧力勾配、 k は物体の空隙率など浸透の容易さを表す定数である。この式を含浸した樹脂先端の位置 x と、樹脂入口と含浸先端との圧力差 ΔP を用いて書き直すと、次のようになる。

$$x^2 = 2k \cdot \Delta P \cdot t/\eta$$

RTM成形の樹脂含浸過程がこの式に従うとすると、物体への流体の浸透しやすさ（繊維織物の種類や繊維体積含有率）が同じで、圧力差が一定であれば、 x^2/t は粘度の逆数に比例することになる。

図(3-1).15に、炭素繊維織物PF50に対してエポキシ樹脂とシリコンオイルを含浸させた場合の、(時間 t)-(含浸距離の2乗 x^2)の関係の例を示す。板厚は1mm、温度は20°C、圧力条件は金型内減圧で樹脂加圧無し（大気圧）である。粘度がシリコンオイルで0.055(Pa・s)、エポキシ樹脂で0.38(Pa・s)であることから、含浸挙動がDarcy則に従うとすると(x^2/t)の値は粘度の比と同じ約7倍になるはずであるが、シリコンオイルの(x^2/t)の値はエポキシ樹脂の約14倍となっている。この原因の一つとして、エポキシ樹脂と炭素繊維よりも、シリコンオイルと炭素繊維との接触角がより小さい（濡れ性が高い）ことがあると考えられる。しかし、測定値のばらつきがやや大きかったことから、今後さらに検討が必要である。



図(3-1).15 含浸試験における時間—距離²の関係

⑤プリフォーム中の流動特性

(イ)樹脂流動解析の基本モデル

RTM 樹脂流動過程の解析には、多孔質媒体中を流れる流体(層流の場合)の流速と圧力損失の関係を記述する Darcy の式⁵⁾に基づいたアルゴリズム⁶⁾が広く用いられている。その解析モデルは、2次元系でかつ透過度に異方性がない場合には、下記のように簡略化される。

$$\cdot U_x = -(K/\mu) \cdot (\partial P / \partial x) \quad , \quad U_y = -(K/\mu) \cdot (\partial P / \partial y)$$

(U_x, U_y : 樹脂の流速、 K : 透過度、 μ : 樹脂粘度、 P : 圧力
[出口圧力との差])

・樹脂が 100% 充填されていない領域では、 $P=0$

・樹脂が 100% 充填された領域では、 $\partial U_x / \partial x + \partial U_y / \partial y = 0$ 、即ち、 $\nabla^2 P = 0$

この場合、対称領域を同じ大きさの長方形要素に分割できれば、差分法による簡易なシミュレーションも可能となる。

(ロ)樹脂流動簡易シミュレーションの試行

2次元系における流動フロント及び圧力分布の推移について、差分法による簡易なシミュレーションを、表計算ソフト(Microsoft Excel)を用いて試行した。得られた流動フロントの推移を図(3-1).16 左に、代表的な圧力分布を同図右に示す。流動フロント線上の数字 τ は、

$$(K \cdot P \cdot t) / (\mu \cdot \varepsilon \cdot \Delta x \cdot \Delta y)$$

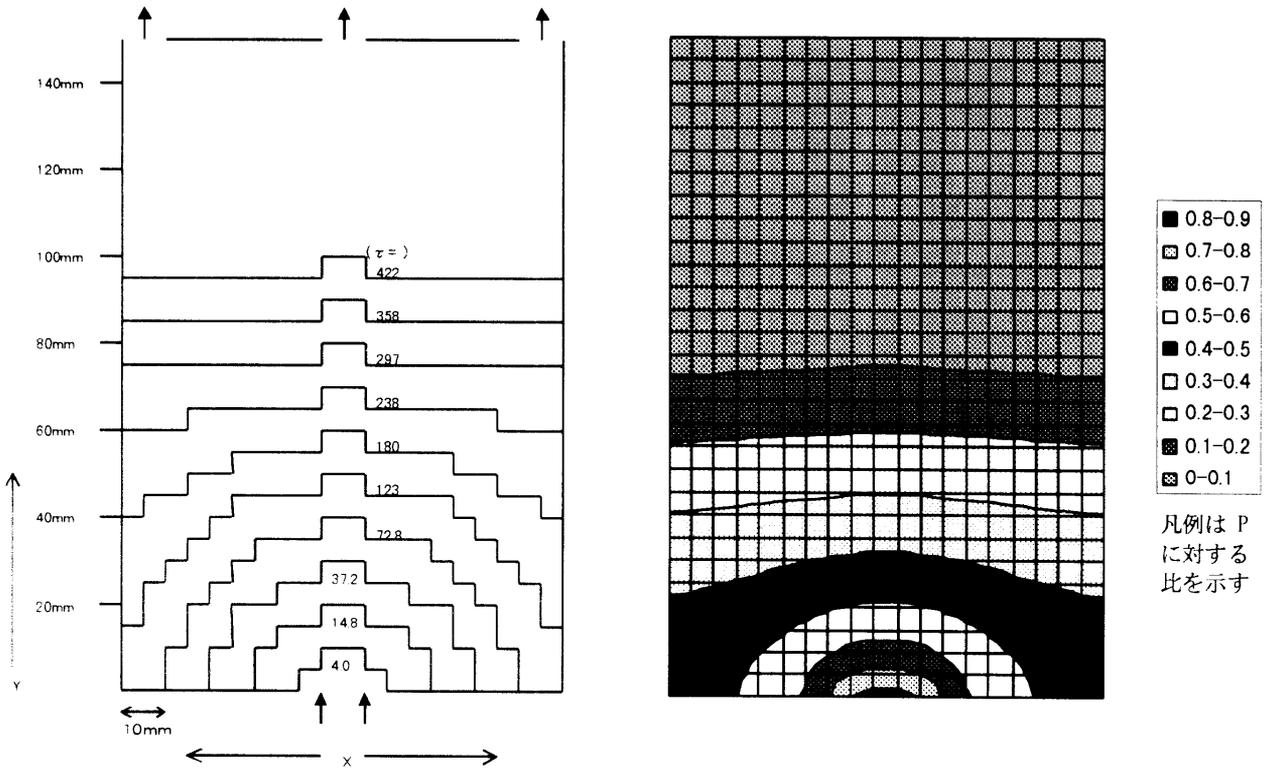
(t [s] : 時間、 $\Delta x, \Delta y$ [m] : 要素サイズ。このシミュレーションの場合は

$$\Delta x = \Delta y = 0.005 \text{ [m]、}$$

P [Pa] : 出入口圧力差、 K [m²] : 透過度、 μ [Pa·s] : 粘度、 ε : 空隙率)

で表される無次元数である。即ち、実験的に求められる t [s] と右図の τ より、次式からこの系の透過度が推算される。

$$(K \cdot P) / (\mu \cdot \varepsilon) = 2.5 \times 10^{-5} \cdot \tau \quad t$$



図(3-1).16 樹脂流動簡易シミュレーション結果

(流動フロントの推移を左図に、 $\tau=360$ の時点における圧力分布を右図に示す)

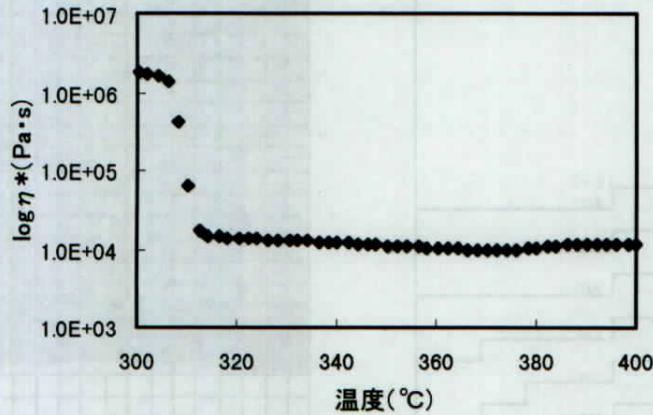
(ハ)モデル流体による2次元流動特性(透過度)

2枚の透明版の間にガラス又はカーボンのドライクロスを積層した平板プリフォームをはさみ、下側透明版中央の注入口からモデル流体(シリコンオイル)を注入して、2次元方向の流体の広がりを観察した。透過度の異方性は明確には把握できなかったため、平均的な(1次元の)透過度を算出し、同じクロスを用いて、かつ空隙率も同じプリフォームであれば、注入圧力や流体の粘度によらず、透過度はほぼ同じ値をとることを確認した。

(b-3)プレス成形用熱可塑性樹脂

①溶融粘度

熱可塑性FRPのプレス成形においては、樹脂の溶融粘度を適切なレベルに保ってプレス圧力をかけることが、欠陥等の不良の無い成形を行うために必要である。そこで、適切な成形条件の検討や成形シミュレーションを行う際の基礎データとして、熱可塑性樹脂の温度-溶融粘弾性関係のデータを測定した。対象樹脂はジェットエンジン用静翼部品に適用可能な耐熱性を有するPEEK樹脂とポリプロピレン樹脂(比較用)を選択した。試料は0.2mm厚さの樹脂フィルムを使用した。測定は回転式の動的粘弾性測定装置に平行平板式治具を組み合わせたものにより行った。PEEK樹脂について測定を行った結果を図(3-1).17に示す。



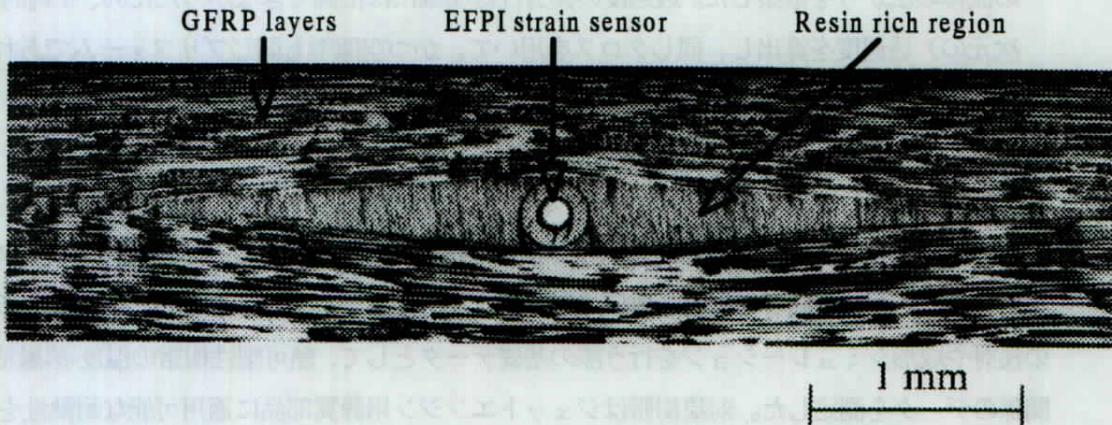
図(3-1). 17 PEEK 樹脂の溶融粘度測定結果

(3-2) 一体化技術の確立

(a) 材料健全性の評価

(a-1) センサ埋め込み状態の観察

EFPI 光ファイバセンサ(Type A)を強化繊維と直交する方向に埋め込んで成形したエポキシ樹脂/ガラス繊維 FRP 積層板のセンサ埋め込み部のセンサと直交する断面の顕微鏡観察を行った。その結果の一例を図(3-2).1 に示す。図からわかるようにセンサ埋め込み部周辺に樹脂リッチ部が形成され、センサに対して直交方向に圧力が加わることがわかった。この観察結果などから、埋め込み状態がセンサの測定結果へ影響を及ぼすことがわかり、センサの特徴を生かした埋め込み方法の必要性が明らかになった。



図(3-2).1 GFRP 積層板における光ファイバセンサ埋め込み部の断面写真

(a-2) センサ埋め込みCFRPの健全性

CF/タフエポキシ系樹脂プリプレグ積層板及びCF/ビスマレイミド系樹脂プリプレグ積層板に、光ファイバセンサ (Type A) を埋め込んだ平板プリフォームを、オートクレーブ成形し、断面観察、繊維体積含有率、ファイバ埋込部周辺の強度等を評価した結果、同一条件で成形した光ファイバを埋め込んでいない平板と比較して、圧縮強度は変わらなかったが、層間せん断強度はわずかな低下がみられた。

(3-3) 知的成形試験用装置の導入

(a) オートクレーブ成形機

成形物の内部状態に対応して、成形条件をリアルタイムで最適なものにコントロールするため、シミュレーション用のワークステーションによって決定された成形条件に基づいて成形品の成形条件をリアルタイムで設定することが可能な制御プログラムを導入した。

(b) RTM 成形機

RTM 法による知的成形に必要な装置仕様について検討した結果、樹脂の粘度に影響する温度と、樹脂への加圧力の精密な制御が可能な装置が必要であることがわかった。そのため、①熱風循環式の加熱炉、②樹脂の加圧装置、③金型内の減圧装置を組み合わせた RTM 成形装置を導入した。知的成形試験においては、成形品の寸法効果を考慮した実験や、センシング用の多数の治具を使用した実験を行う可能性があるため、金型の加熱炉は内寸法 800mm×800mm×800mm、床板の耐荷重は 100kg とした。正面扉には 300mm×300mm の観察窓、上面には採光用の窓を取り付けた。また、きめ細かな温度制御のため、炉の温度は最大 10 ステップのプログラムによって制御される。装置の外観を図(3-3).1 に示す。

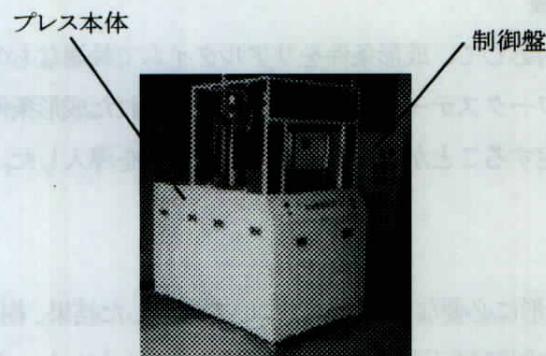


図(3-3).1 RTM 成形装置外観

(c) プレス成形機

知的成形を行うプレス装置に必要な条件について検討した。その結果、熱可塑性FRPにおいては、成形過程における樹脂の溶融・固化と、それに伴う体積変化を考慮した成形条件制御ができる必要

があることがわかった。体積変化を考慮した成形を行うためには、温度や加圧力のみならずプレス
の盤面位置についても精密な制御を行わなければならない。そこで、圧力・盤面位置制御機能の切
り替えと盤面の温度制御機能とを有する電動サーボモータ式のプレス成形装置を導入した。最大加
圧力は1.98kN、盤面大きさは300mm×300mm、ストロークは200mmである。精密な成形条件制
御のために、圧力制御の分解能は490N、位置制御の分解能は0.5mmとし、運転中の圧力/位置制
御切り替えと最大10ステップのプログラム制御が可能であるようにした。また、盤面と金型の温度
制御には合計8個のプログラム温度調節器を用い、それぞれ最大10ステップの温度制御が可能であ
るようにした。プレス装置の外観を図(3-3).2に示す。



図(3-3).2 プレス成形装置外観

[参考文献]

- 1) P. R. CIRISCIOLI, G. S. SPRINGER; "Smart Autoclave Cure of Composites", Technomic Publishing Co., Inc. (1990)
- 2) A. C. LOOS, G. S. SPRINGER; "Curing of Epoxy Matrix Composites", Journal of Composite Materials, vol.17, pp.135 (1983)
- 3) M. R. DUSI, W. I. LEE, P. R. CIRISCIOLI and G. S. SPRINGER; "Cure Kinetics and Viscosity of Fiberite 976 Resin", Journal of Composite Materials, vol.21, pp.243 (1987)
- 4) D. FRANK-SUSICH, D. LAANANEN and D. RUFFNER; "Computer-Aided Cure Optimization", 37 th International SAMPE Symposium, pp.1075 (1992)
- 5) 化学工学協会 編、「化学工学便覧、改訂五版」、丸善(1988)、pp.241
- 6) Y. F. CHEN, K. A. STELSON and V. R. VOLLER; "Prediction of Filling Time and Vent Locations for Resin Transfer Molds", Journal of Composite Materials, vol.31, pp.1141 (1997)

1.2 達成状況

1.2.1 知的成形プロセス技術の開発

(1) センシング技術の確立

マトリックス樹脂の硬化状態の最適なセンサとして、文献調査などを行った結果、誘電率センサが適し

ていることがわかった。そして、オートクレーブ成形において、その有効性を確かめた。また、RTM 成形についてはフローフロントおよびマトリックス樹脂の硬化状態の検出が可能な複合機能を有したセンサを開発した。そして、このセンサを用いて RTM 成形実験を行い、成形過程において樹脂フローフロントの検出および型充填後の硬化状態を検出できることがわかった。

また、オートクレーブ成形における内部ひずみの測定については、文献調査などの結果、EFPI 光ファイバひずみセンサが適していることがわかった。また、2 種類の構造が異なる EFPI センサがひずみ測定システムとして使用可能であることから、その 2 種類の EFPI センサを使用して、内部ひずみ測定実験を行った。その結果、FRP 成形に適した EFPI センサの構造が明らかになった。

(2)マトリックス樹脂の基礎物性の測定

オートクレーブおよび RTM 成形においてマトリックス樹脂の硬化反応速度を求めするため、エポキシ系およびビスマレイミド系樹脂の示差熱分析(DSC)データを取得した。また、これらのデータに基づき、硬化反応速度式を導出した。

RTM 成形用のエポキシ系およびビスマレイミド系樹脂について粘度データを取得した。そして、これらのデータと硬化速度式より、粘度を温度と硬化度の関数として求めた。

(3)樹脂の流動、硬化特性の測定

精密プレス成形における熱可塑性樹脂の熔融と固化プロセスを明らかにするため、熱可塑性樹脂(PEEK およびポリプロピレン樹脂)の温度・熔融粘弾性関係のデータを測定した。

1.2.2 一体化技術の確立

(1)材料健全性の評価

EFPI ひずみセンサを埋め込んだ GFRP 積層板について、埋め込み部の顕微鏡による断面観察を行い、センサ埋め込み状態を把握した。また、CFRP 積層板についても、同様に光ファイバセンサの埋め込み状態を顕微鏡により観察した。そして、光ファイバセンサを埋め込んだ部分の強度についても測定した。これらの結果から、光ファイバセンサを強化繊維と角度を有して埋め込んだ場合より、強化繊維方向に埋め込む方が、センサ埋め込みの影響が少ないことがわかった。また、光ファイバセンサ埋め込み状態の観察結果などから、埋め込み状態がセンサの測定結果へ影響を及ぼすことがわかり、センサの特徴を生かした埋め込み方法の必要性が明らかになった。

以上、センシング技術の確立による成形品の均質化の保証、マトリックス樹脂の基礎物性の測定により取得されたデータに基づいて、最適成形条件を決定するにより実現される知的成形プロセス技術の開発、および一体化技術の確立により得られた成果は、製品の均質化、最適な成形条件による成形歩留まりの向上、信頼性の向上等により、省エネルギー、省資源に大いに貢献することが期待される。

1.3 結論

1) 知的成形プロセス技術の開発

マトリックス樹脂の硬化状態、オートクレーブ成形における成形品の内部ひずみ、RTM 成形におけるフローフロント位置の検出について、これらが検出可能なセンシング技術を確立した。特に、RTM 成形においては樹脂のフローフロント位置と硬化状態が1つのセンサでセンシングできる多機能複合化センサを新しく考案し、その有用性を示した。また、センシングデータに基づいて最適成形条件を決定するための成形シミュレーションを行うために不可欠となるマトリックス樹脂の基礎物性を測定した。さらに、熱可塑性樹脂 FRP プレス成形に必要な熱可塑性樹脂についても、その基礎物性を測定した。

2) 一体化技術

光ファイバセンサの埋め込み状況を埋め込み部分の顕微鏡観察、繊維含有率の測定、強度評価などを行って、センサ埋め込みによる健全性への影響について検討した。また、光ファイバセンサ埋め込み状態の観察結果などから、埋め込み状態がセンサの測定結果へ影響を及ぼすことがわかり、センサの特徴を生かした埋め込み方法の必要性が明らかになった。

以上の成果より、成形品のセンシング技術については、内部ひずみについてさらに検討する必要があるものの、計画以上の成果をあげることができた。しかし、熱可塑性樹脂 FRP プレス成形、マトリックス樹脂の基礎物性測定および一体化技術の確立については、一応の成果が得られたものの、契約の遅れにより本年度使用する予定の装置の導入が遅れたため、計画より多少遅れている。したがって、これらの点を考慮して、H11 年度以降、研究を進めていく必要がある。

また、以上の知的成形プロセス技術の開発および一体化技術により得られた成果は、製品の均質化、最適な成形条件による成形歩留まりの向上、信頼性の向上等により、省エネルギー、省資源に大いに貢献することが期待される。

2. 研究発表・講演、文献、特許等の状況

2.1 研究発表

Use of EFPI Optical Fiber Sensors in FRP Laminates for Measurement of Internal Strains in Autoclave Molding	K.Osaka,S.Motogi and T.Fukuda	Asia-Australasian Conf.on Comp. Materials	1998.10.8
スマートRTM成形のための樹脂流れセンサーの開発	元木、伊藤、福田、山岸、北出、盛田	第28回FRPシンポジウム	1999.3.17
RTM成形における新しい樹脂流れセンサーを用いたpermeabilityの測定	山岸、北出、盛田、元木、福田、	第29回FRPシンポジウム	1999.3.17
オートクレーブ成形中の内部ひずみモニタリングにおけるEFPI光ファイバセンサの適用について	逢坂、福田	第30回FRPシンポジウム	1999.3.17

2.2 文献

該当無し

2.3 特許等

該当無し

2.4 その他の公表（プレス発表等）

該当無し

II. アクチュエータ材料・素子開発

1. 研究開発の成果と達成状況

1.1 研究開発の成果

1.1.1 要約

(1) 和文

本研究開発ではマイクロ波焼結法を用いることにより、セラミックスアクチュエータを短時間で焼結できるように、製作プロセスを改良し、省エネルギーを実現する。一方、作製したセラミックスと形状記憶合金アクチュエータは、より少ないエネルギー消費で大きな力と変位が発生でき、しかも、長時間の応答安定性、機械的強度、信頼性の点で優れた性能を持つことによって、省エネルギーを実現する。

(a) セラミックスアクチュエータ

本研究開発では、セラミックス材料の合成プロセス、焼結プロセスの研究で材料の高性能化を目指し、傾斜構造体を有するデバイス開発で新しいアクチュエータ素子の開発を目指している。また、アクチュエータの形状付与基礎技術となるシート化技術、線材化技術の開発も併せて実施している。

高性能化の研究では、PNN-PZT系材料で新合成プロセスを採用し、その特性状態図を作成してきている。焼結プロセスは、マイクロ波焼結法を用い、現在、焼結条件の検討を進めている。

傾斜構造のデバイス開発では、ディスク形状のモデル傾斜構造素子を試作し、そのアクチュエータ変位特性を測定した。その結果、傾斜機能化することで大きな変位が得られることを確認した。

(b) 形状記憶合金アクチュエータ

(b-1) 感温型形状記憶合金アクチュエータ

本分担テーマ（期間5年：平成10年度～14年度）では、SMAアクチュエータへの材料学的課題改善と高性能化研究開発指針を踏まえて革新的な材料製造プロセス技術として、“電磁浮遊溶解ノズルレス急冷凝固法”を提案し、その装置を開発・導入するところに大きな特徴がある。そして、電磁場制御下で溶湯を急速回転ロール上に流し込み（吹き出し）、急冷金属結晶組織形態を最適に制御させて、プロジェクト後半での目標であるデモンストレータに適用出来る高機能・高性能の感熱型SMAアクチュエータ材を開発・提供することを最終目的としている。初年度（平成10年度）は、先ず、電磁浮遊溶解（レビテーション）後の溶湯滴下制御と急冷回転ロールを組み込んだ“電磁場制御ノズルレス液体急冷凝固法”を提案・試作した。この方法で作製されたTiNi系の活性な形状記憶合金（金属間化合物）薄板では、微細な柱状結晶が形成されており、そこでの大きな結晶異方性（集

合組織)と低エネルギー粒界の存在頻度が高い特異な金属組織形成が確認出来た。そして、この急冷凝固組織では、形状記憶効果の高性能化が確認でき、さらに、著しい耐食性の向上の可能性が明らかになった。

(b-2) 磁性形状記憶合金アクチュエータ

- ① Ni_2MnGa について化学量論組成 (Ni_2MnGa) と非化学量論組成 ($\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$) の試料を作製し、合金組成の制御技術を確立した。
- ② Ni-Mn-Ga 系形状記憶合金の特性である「脆さ」を克服する一つの方向性として合金の薄膜化を行った。スパッタリング法による薄膜の組成制御技術を検討し、薄膜作製件を得た。薄膜においてもマルテンサイト変態を確認し、バルク材とは異なる形状磁気異方性の知見を得た。
- ③ 実用化の重要な因子である生活環境温度での結晶変態を実現出来ることを確認した。合金の組成と磁気転移点・変態点について制御の基礎となる条件を定量的に評価することが出来た。
- ④ 作製した非化学量論組成の合金の1組成において強磁場下ではあるが磁場誘起形状記憶効果を確認することが出来た。

以上によって、 Ni_2MnGa の磁氣的・機械的特性が合金の化学量論比によって制御可能であることを実証するとともに、合金を薄膜化することによって新たな特性が付加される可能性を検討した。これにより、合金と薄膜の形状記憶効果の組成制御の指針を得た。

(2) 英文

Since the sintering time of piezoelectric actuators can be shortened by improving the sintering process using microwave sintering method, saving of energy used for actuator manufacturing can be realized in the future. On the other hand, it is also expected that the new developed piezoelectric and SMA actuators will be able to generate the same level of force and displacement as the traditional actuators with lower energy consuming by improving the performance of the actuators.

(a) Piezoelectric Ceramic Actuators

In this research project, high performance piezoelectric actuators are to be developed by improving the synthesizing process and sintering process, and new actuator devices are to be developed by grading the material composition inside the actuators. Moreover, manufacturing process of piezoelectric sheets and fibers are to be developed for easy integration of actuators and host structures in smart structural systems.

In the development of high performance piezoelectric actuators, a new synthesizing process of PNN-PZT family material were used and the phase diagram of this family were build up. As a new sintering process of piezoelectric materials, microwave sintering process were adopted, and the sintering conditions of piezoelectric materials are being investigated.

In the development of functionally graded piezoelectric actuators, several specimens were fabricated and the displacement characteristics were measured. The measurement results showed that larger displacement output could be achieved from functionally graded piezoelectric actuators than traditional piezoelectric actuators.

(b) Shape Memory Alloy Actuators

(b-1) Thermal Shape Memory Alloys

In this subject in charge (for 5 years, HEISEI 10th-14th(1998-2002)), we propose the electromagnetically levitated nozzleless rapid solidification method as an innovative approach to improve materials properties and will develop the equipment. This characteristic attempt is grounded on the needs for metallurgical improvement of the processing to obtain high performance SMA-actuator mentioned above. Grain boundary microstructure can be changed by rapid solidification, controlling electromagnetic field in the high frequency coil to levitate the molten material before solidification. So, the objective of this work is to develop the high performance thermal SMA actuator and to apply it to the demonstrator which is the final objective of this project. The concept of the electromagnetically levitated nozzleless rapid solidification was proposed and the equipment consisting of twin rolls for rapid solidification and a control unit for electromagnetic levitation of molten material was experimentally produced in the first year of the project. Fine columnar grained microstructure having sharp texture and high frequency of special low-energy boundaries was observed in the SMA ribbon of intermetallic TiNi alloy produced by this method. Therefore, more effective SMA alloy could be obtained by adopting our proposal technique. Moreover, great potential for improvement of corrosion resistance by using our processing technique was also shown.

(b-2) Ferromagnetic Shape Memory Alloy

The research of the ferromagnetic shape memory alloy, Ni-Mn-Ga, conducted in the fiscal year of 1998 has shown the important two features. The first are the martensite and austenite transformations by an applied stress and temperatures. The second are the temperatures of the ferromagnetic transition (T_c) and the structural one with the change of the direction of magnetic anisotropy. To realize the magnetic shape memory effect by an external magnetic field, it is necessary to examine quantitatively these features of the Ni-Mn-Ga alloys as a first step. In order to clarify the composition dependencies of the martensitic and magnetic transition temperatures, we undertook mainly measurement of various physical properties to establish the way of sample preparation on the Ni-Mn-Ga alloys.

The following conclusions were derived from the results of our experiment.

- ① We established the method for the process of the material preparation by an arc-melting method for the alloy series of the stoichiometric and nonstoichiometric Ni_2MnGa .

- ② This material seems to be a rather promising shape memory actuator material if it can overcome the nature of brittleness. Several efforts have been made in order to fabricate thin films using a sputter-deposition method, which is considered to improve this disadvantage. We found the sputtering condition for the fabrication of the thin films, which showed the martensitic transformation.
- ③ In addition we found a structural magnetic anisotropy that was not shown in the alloys prepared by normal melting techniques.
- ④ We found a martensitic transformation at the temperature range that fits for the medical application on arc-melted alloys. The results show that the composition shift from stoichiometry greatly affects the characteristic temperatures of the alloys and finally we made clear the conditions of material preparation for the alloys.
- ⑤ One of nonstoichiometric $\text{Ni}_{2-x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$ exhibits the field induced shape memory effect, while the applied magnetic field is still high.

From above results we can conclude that we found the ways of material preparation for the shape memory alloys and thin films.

1.1.2 本文

(1) 研究開発の目的

(a) セラミックアクチュエータ

セラミック製造プロセスでは多大なエネルギーを必要とし、その省エネルギー化を実現するためには、原料から製造プロセス、素子デバイスまでの広範囲な技術開発が必要となっている。また、製品化技術の高度化、複雑化に伴い機能性セラミックにも高性能化が要求される状況で、セラミックの新製造プロセス技術の開発が不可欠となっている。本研究開発では、セラミックアクチュエータ材料・素子の新合成プロセス、新焼結プロセス、新素子デバイスの基盤技術の開発に着手し、「知的材料・構造システム」への適用を目標とする。開発目標として

- ①「傾斜構造型アクチュエータ素子の開発」では、傾斜構造でドーム型形状とした屈曲型圧電アクチュエータ素子の発生力を2倍以上に向上させる。
- ②「PNN-PZT系セラミック材料の高性能化の研究」では、高性能化圧電または電歪材料を用い積層型アクチュエータ素子の変位を2倍以上に向上させる。
- ③「圧電セラミックのシート化の研究」では、シート成型法による厚さ20 μm 以下の圧電セラミック素子の作製技術を確立する。
- ④「圧電セラミックの線材化の研究」では、導電性コア構造を有す線径100 μm 以下の圧電セラミック線材化の基礎技術を確立する。

(b) 形状記憶合金型アクチュエータ

大型化、複雑化が進む機械・構造システムの省資源、省エネルギー化を実現するために

は、材料の多機能化を図ることが重要である。そのためには材料の機能性を高め、信頼性及び安定性を向上させることが不可欠である。形状記憶合金は温度や応力センサーとアクチュエータの二つの機能を持つ。本研究では、感温型形状記憶材料の機械的特性を大幅に向上させるとともに、高温で相変態温度を有する形状記憶材料を開発する。さらに、磁場でも形状記憶効果を起こす強磁性形状記憶合金を開発し、応答性の良い多機能性材料を作製し、形状記憶合金系アクチュエータの開発を行うものである。開発目標として

(b-1) 感温型形状記憶材料の開発

- ①感温型形状記憶材料の変態歪量及び耐久性（機械的疲労・冷熱繰り返し疲労）を2倍以上に向上させる。
- ②1000℃以上の相変態温度を有する感温型形状記憶材料を創製する。
- ③感温型形状記憶材料の製造コストを1/2以下に低減する細線化・薄膜化技術を確立する。

(b-2) 磁性形状記憶合金材料の開発

- ①形状記憶効果を1 T以下の磁場で発現する。

(2) 全体計画

(a) セラミックスアクチュエータ

平成10年度は、装置導入立ち上げ及び関連基礎研究、調査を行う。具体的には、

- ①「傾斜構造型アクチュエータ素子の開発」では、既存組成物を用いたモデル矩形傾斜構造素子を試作しアクチュエータ機能を確認する。
- ②「PNN-PZT系セラミックス材料の高性能化の研究」では、傾斜化及び高性能化の基となるPNN-PZ-PT系の新合成プロセス法を用いたときの状態図を作製する。また、マイクロ波焼結法の焼結技術の確立とその微構造組織への影響を明らかにする。
- ③「圧電セラミックスのシート化の研究」では、薄板シート化の基礎研究として、50μm以下のシート塗布条件の確立を目指す。
- ④「圧電セラミックスの線材化の研究」では、基礎段階としてベースとなるPZTゾルゲル前駆体の調整方法の条件確立をする。

(b) 形状記憶合金型アクチュエータ

平成10年度は、電磁浮遊急凝固法を開発するとともに、強磁性形状記憶合金の作製を中心として良質の合金を作製する。具体的には、

(b-1) 感温型形状記憶材料の開発

- ①電磁浮遊ノズルレス急凝固法の開発への基礎的実験を行う。特に、浮遊溶解温度溶解量と通電量、高周波コイル形状の相関性、浮遊溶湯連続滴下量制御への基礎的研究を行う。
- ②急凝固固有な材料組織制御（結晶粒度とその方位制御、結晶界面性格分布）の可能性とその特性向上効果の定量的相互関係を明らかにする。

③細線、薄膜形状記憶合金での形状記憶効果の耐久性試験・評価装置組立とデータ採取を行い、耐久性評価方法を確立する。

(b-2) 磁性形状記憶合金材料の開発

- ①Ni-Mn-Ga 系磁性形状記憶合金の各成分制御条件及び合金均質化条件を明確にする。
- ②薄膜化に係る製造の諸因子を解明し、特性評価用試験片の製作を可能にする。
- ③物理的特性（変態温度、キュリー温度など）と、合金成分の関係を定量的に把握する
- ④合金成分が持つ形状記憶効果発現の基本的条件を明らかにする。
- ⑤Ni-Mn-Ga 合金系の成分と磁気特性・材料特性の関係を明確にし、特性改善の指針を得る。

(3) 研究成果のまとめ

(3-1) セラミックスアクチュエータ材料・素子の開発

(a) 傾斜機能圧電アクチュエータの作製

①従来の研究背景と本研究の目標

技術の高速化に向けてサブミクロンのオーダーで位置を制御する変位素子が所望されるようになり、圧電/電歪アクチュエータの研究が進められてきた。⁽¹⁾ この圧電/電歪アクチュエータに関する研究の多くは、 $10\mu\text{m}$ 以下の微小変位素子として電界誘起歪みの縦および横効果をそのまま利用した単純型圧電素子に関するものであった。しかし近年、リアモータ、ポンプ、スイッチ、スピーカ、ノイズ低減素子、可変焦点鏡、レーザー反射板等への応用が期待されるようになり、 $100\mu\text{m}$ 以上の変位が得られる素子が必要となってきた。このような大変位を得られる素子の一つとして、ユニモルフ型やバイモルフ型の素子がある。これらの素子は、圧電セラミックスとシムと呼ばれる薄い金属を貼り合わせた構造であるが、接着剤を用いているため、接着面での応力の不連続による割れなどが生じる。そのため高信頼性を要求される計測制御機器などに応用するには問題がある。そこで最近提案された素子が RAINBOW アクチュエータである。⁽²⁾ RAINBOW アクチュエータとは、圧電材料の化学的な還元反応を利用してシムを作り出し、従来接着剤で貼り合わせていたユニモルフ型素子を一体構造にした素子である。従来のユニモルフ型素子と異なり、界面は化学的に結合しており、界面での割れ等を生じる恐れがないとされている。しかしながらこの材料は、高温中での還元反応を利用するため、熱膨張係数の違いによる初期応力を有している。そのため圧電セラミック側に引張応力が発生し、壊れる要因となっている。コンピュータを用いたシミュレーションの結果から、圧電セラミックと高誘電材料を組み合わせ、素子の厚さ方向の材料組成を傾斜させることにより、初期応力と電圧印加時の応力集中を緩和できることがわかっている。そこで本研究では実際にそのような傾斜機能圧電アクチュエータの作製、評価を行った。

②材料の選択

この傾斜型素子を作製するため、5種類のセラミック同士を傾斜させた。大きな変位を得るためには、圧電定数が大きく誘電定数の小さい材料と圧電定数が小さく誘電定数の大きい材料で焼結特性のよく似た材料を選ぶ必要がある。⁽³⁾ 今回は、 $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbTiO_3 - PbZrO_3 (以下 PNN-PT-PZ)系の材料を用いた。⁽⁴⁾

$\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.5}(\text{Ti}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})_{0.5}\text{O}_3$ は結晶構造(図(3-1).1)での MPB 付近にあり、高い圧電性を示す。そこで圧電材料 A として用いた。また、PNN のキュリー点は約 -120°C と低いため、 $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.7}(\text{Ti}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})_{0.3}\text{O}_3$ のキュリー点は室温近傍であり、高い誘電性を持つ。そこで誘電材料 B として用いた。さらに AB 間の $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.65}(\text{Ti}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})_{0.35}\text{O}_3$ を C と

して、 $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.6}(\text{Ti}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})_{0.4}\text{O}_3$ を D として、 $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.55}(\text{Ti}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})_{0.45}\text{O}_3$ を E として用いた。

③実験方法

A～E の材料を得るため出発原料として構成原子の酸化物 PbO 、 ZrO_2 、 TiO_2 、 NiO 、 Nb_2O_5 (和光純薬、純度 99.9%)を所定の組成になるように秤量した。原料粉はボールミルによって混合した。その後、蓋付きの坩堝に混合粉末をいれ、電気炉を用いて 950°C 、4 時間で、昇温、冷却速度 $100^\circ\text{C}/\text{h}$ で仮焼成を行った。その後、エタノールを用いた湿式ボールミルを 6 時間行い、微粉化した。このスラリー状の粉末を 150 メッシュ($100\mu\text{m}$)の篩に通した後、十分乾燥させ仮焼粉を得た。バインダーとして濃度 7.5wt%ポリビニルアルコール溶液を仮焼粉の質量の 6.25%十分混合した後、50 メッシュ($300\mu\text{m}$)の篩に通し、材料 A～E を得た。

今回は 2 層型、3 層型、5 層型、5 層型について厚さの薄い a タイプと厚い b タイプ、合計 4 種類のアクチュエータを作製した。2 層型は組成 A と B を、3 層型は組成 A、B と組成的に A と B のちょうど中間にある D を、5 層型は組成 A～E の材料をそれぞれステンレス製の型の中に積層し(図(3-1).1～4) 厚さ方向に $1\text{t}/\text{cm}^2$ の圧力で一軸加圧して円盤状に成型した。

これらの試験片をアルミナのさやに入れ、電気炉で焼成を行った。(図(3-1).5) まず昇温速度 $20^\circ\text{C}/\text{h}$ で室温から 600°C まで昇温し、5 時間で脱バインダを行った。その後、室温まで自然冷却し、さやに蓋をした。 1200°C まで $100^\circ\text{C}/\text{h}$ で昇温し、2 時間で本焼結を行った。 600°C まで $60^\circ\text{C}/\text{h}$ で冷却し、その後、室温まで自然冷却した。

焼結後の試験片の結晶構造を片面ずつ XRD で測定した。試験片の密度も測定した。試験片の両面を研磨した後、銀電極を塗布し、 700°C で 1 時間をかけ乾燥した。また 120°C のシリコンオイルバス中で $2\text{kV}/\text{mm}$ の電界を 30 分印加し、分極を行った。インピーダンスアナライザ(HP4194A)を用いて、共振反共振法により圧電アクチュエータの圧電特性を評価する定数である電気機械結合定数(k_p と k_t)を求めた。RADIANT を用いて P-E ヒステリシスを測定した。変位の測定はレーザーセンサ(キーエンス社製、分解能 $0.01\mu\text{m}$)を用いて行った。

④実験結果および考察

試験片の材料 A 側を上に向けて焼成を行うと各材料の収縮率の違いから A 側が凸になり試験片が反ってしまった。そこで材料 B 側を上に向けて焼成を行ったところ、試験片の自重により反りを抑えることができた。

焼成後の試験片の厚さ、質量と体積から求めたかさ密度を表(3-1).1 に示した。密度はその試験片についても約 $8\text{g}/\text{cm}^3$ である。どの試験片も焼成後に割れはまったく見られなか

たが、分極中に 5L-b タイプを除くすべての試験片が割れてしまった。この主な原因として試験片の反りを押さえたことによる残留応力が分極中に一気に開放されたことが考えられる。割れの無かった 5L-b タイプの電気機械結合定数(k_p と k_d)はそれぞれ 0.32、0.33 とそれほど高い値ではない、これは材料 A から B に向かって圧電性が低くなっているためである。XRD の測定結果を図(3-1).6 に示す。パイロクロア相のピークがやや見られる。これは 1200℃で焼結を行ったため材料中の Pb が一部蒸発してしまったためと考えられる。

図(3-1).7 には P-E ヒステリシスを示した。ヒステリシスループの中心がややプラス方向にシフトしているのは分極後に測定を行ったためである。

試験片の厚さ方向の変位は、円盤の中心を測定点として測定した。図(3-1).8 には印加電圧を-100V から 300V の間で変化させたときの変位を示す。試験片 5L-b-1 と 5L-b-2 の印加電圧 300V 時の変位はそれぞれ $2.5\mu\text{m}$ と $1.9\mu\text{m}$ であった。印加電圧を 800V まで上げると変位はそれぞれ $8\mu\text{m}$ と $9.5\mu\text{m}$ になった。(図(3-1).9) この試験片の厚さが約 1.9 mm であるので、 d_{33} 効果のみによる変位は、最大でも厚さの 0.1% の $1.9\mu\text{m}$ 程のはずである。したがって、今回の結果は、 d_{33} 効果による変位だけでなく、高誘電材料と圧電材料の組み合わせからの形状効果による変位によって得られたと考えられる。

⑤改善すべき問題点と今後の研究計画

(7) 焼成中の Pb の蒸発によるパイロクロア相の発生

これについては試験片の 5wt% の PbO をさやの中に充填することにより、焼成中にさやの中が Pb 雰囲気になるようにした。すると以前よりもパイロクロア相が減少した。(図(3-1).10~12) 特に組成 B 側については以前と比較するとかなり改善されている。このパイロクロア相が減少した試験片の変位はまだ測定していない。パイロクロア相の発生は誘電率を減少させるため、この改善により組成 B の誘電率が増加し、さらに大きな変位が得られることが期待される。

(1) 分極中の残留応力の開放による割れの発生

残留応力として、焼成時の反りを押さえたことによるもの、また各材料の熱膨張係数の違いによるものなどが考えられる。

(ウ) 今後の方針

焼成時の収縮率、熱膨張係数だけに限らず、ヤング率、ポアッソン比、圧電定数、誘電定数などの特性を、(b)とも関連してくることであるが、組成 A~E それぞれについて測定する。その結果からコンピュータを用いて、残留応力、電圧印加時の応力も解析する。変位についても解析結果と実際に作製した試験片の測定結果の比較を行う。また各層の厚さを変えるなどの方法を用いて、より応力を緩和する構造を考案し、それについても解析結果と実際の測定結果の比較を行う。

また、各組成のグリーンシートを作製し、それらを積層し評価を行う。

(b) PNN-PZT系セラミックスの高性能化の研究

(b-1) 従来の研究背景と本研究の目的

優れた圧電性を示すPZT系セラミックスは様々な分野で使用されているが、知的構造システムに組み込むためには材料素子、製造方法の新しい成果が必要である。

材料素子の開発として、積層化した傾斜機能構造材料の高性能化の基になる

$\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-\text{PbTiO}_3-\text{PbZrO}_3$ 系（以後PNN-PZT系とする）セラミックスを、名古屋工業技術研究所の考案した新合成プロセス法（過剰鉛添加法）を用いたときの状態図を作製し、各組成の圧電、電歪特性について評価する。⁽⁵⁾

また、製造方法の開発としては、マイクロ波焼結炉による特性の向上を図る。

マイクロ波焼結は材料内部から自己発熱を利用しているため、従来の外部加熱方式にはない多くの特徴があると期待されて、たとえばコスト削減、急速過熱、新素材の合成、など従来方法では不可能であったことが可能であるとの研究報告がある。⁽⁶⁾しかしこれらの研究報告はほとんど

2.45GHzであり、波長が長いことためアプリケーション内のマイクロ波の分布を均一にすることが困難で、結果として焼成ムラや割れ等が発生し良質な焼結体を得ることができなかった。⁽⁷⁾

本プロジェクトにおいては波長が桁小さい28GHzのマイクロ波焼結装置を導入し、今まで困難であった焼結を実現し、高性能なアクチュエータ素子の作製を目標にする。

本年度は、PZT系セラミックスのマイクロ波焼結法の焼結技術の確立とその微細構造組織への影響を明らかにし、傾斜化焼成、及びシートによる薄板焼成への基礎研究とする。

(b-2) 実験方法

(7) 新合成プロセス法を用いたPNN-PZTセラミックスの作製方法

PNN-PZT系セラミックスを3成分系状態図より図(3-1).13に示した40組成を選定した。

作製方法は図(3-1).14のフローチャートに示すように、出発原料としてPbO、ZrO₂、TiO₂、NiO、Nb₂O₅を所定の組成になるように秤量し、PbOを1.5~2モル量過剰に添加した。混合、仮焼き終了後に過剰鉛を酢酸溶出させ、ろ過して得たPNN-PZT系粉末は、X線回折チャートによりパイロクロア相の有無を確認した。図(3-1).13中より構造相転移(MPB)付近の組成を選定しφ15で成形後PbO雰囲気焼成を行い、再度X線回折でパイロクロア相の有無を確認した。その後、φ12-1tに加工し、表面に銀ペーストを焼き付け、室温のシリコンオイル中で2KV/mmの電圧を印可し分極したものを評価用試料とした。

(4) 新合成プロセス法を用いたPNN-PZT系セラミックスの諸特性測定方法

作製した試料を強誘電体物性評価システムラジアントRT-6000HVSによりP-Eヒステリシスを測定し強誘電性の確認を行った。また、共振反共振法により圧電、電歪特性をHP-4194Aを用いて測定した。さらに、レーザー変位計（キーエンス製：分解能0.01μm）により変位の

電圧依存性測定を行った。

(ウ)マイクロ波焼結と焼結方法

マイクロ波焼結炉は富士電波工業製 ジャイラトロン 3 (CPI) を利用した。試料形状は(株)富士セラミックス製 PZT 材料 C-82 を用いた。試料形状はφ20-1t でマイクロ波焼結前に電気炉で 600℃ の脱バイを行った。マイクロ波焼結は図(3-1).15 の焼結プロファイルを用いた。

(エ)マイクロ波焼結で焼成した P Z T 系セラミックスの諸特性

既存材料である(株)富士セラミックス製 PZT 材料 C-82 材の圧電性と微細構造を比較検討した。測定項目は電気機械結合係数 K_p 、 K_t 、誘電率 ϵ 、密度 ρ 、を共振反共振法により HP-4194A を用いて測定した。

微細構造は電子顕微鏡 (SEM) により観察し、既存材料との比較を行った。また、X線回折により結晶構造状態の確認を行った。

(b-3) 実験結果

(ア)新合成プロセス方法の PNN-PZT 系セラミックスの状態図

新合成プロセス法で作製した PNN-PZT 系セラミックスは、図(3-1).16 のように 1 μ m 程度の自形の現われた単結晶を確認した。また、図(3-1).17 の X線回折に示すように一般的な製法で作製したものと比較するとパイロクロア相の無い単一相であることも確認できた。図(3-1).18 の焼成体の X線回折から分かるようにわずかにパイロクロア相が現われるが、これは焼成時に PbO が飛散するため起こるもので、今後、PbO 雰囲気等の詳細な検討が必要と思われる。

(イ)新合成プロセス方法の PNN-PZT 系セラミックスの圧電、電歪特性及び変位特性

強誘電体評価システムラジアント RT-6000HVS により、図(3-1).19 に示すようなヒステリシス曲線を得ることができ、各組成における強誘電性を確認することができた。MPB 境界線付近に近づくに従い、ヒステリシスも大きくなり圧電性が高くなることを確認した。また、図(3-1).20、及び表(3-1).2 のように MPB 境界より菱面体晶側は、圧電定数、変位量、共に正方晶側より少ないが誘電率が高く、変位量のヒステリシスが少ない電圧依存性変化を確認した。

(ウ)マイクロ波焼結した PZT 系セラミックスの圧電特性と微細構造

PZT 系材料は PbO の飛散があるため、マイクロ波焼結では局部的に焼結ムラが生じ、良質な焼結体を得ることは困難であると言われ、現在までほとんど報告がない。

表(3-1).3 にマイクロ波焼結と一般的な電気炉で焼結した試料の圧電特性測定結果を示す。すべての圧電特性において低い値になったが、クラックのない均一焼成が確認できた。

また、図(3-1).21 にマイクロ波焼結と一般的な電気炉で焼結した C-82 材の SEM 観察写真を示す。マイクロ波焼結の方が電気炉に比べ粒子径が小さい結果となった。これはマイクロ波焼結の影響か焼成条件の影響か、現在のところ分かっていない。しかし 5 倍の昇温速度で急速焼成してもクラックなしで焼成できることはマイクロ波焼結の特徴であると認識できた。

図(3-1).22 にマイクロ波焼結と電気炉焼結の X 線回折チャートを示す。マイクロ波焼結には (002)、(200) のピーク・スプリットが現われ電気炉焼結より正方晶性の強い結晶構造になっていることが確認できた。

今後は詳細な焼成条件の検討を行うことで、さらに良質な焼成体を得ることが目標となる。

(b-4) 考察

新合成プロセス法を用いることでパイロクロア相のない単一相の PNN-PZT 系セラミックスを得ることができる。しかし焼成時の PbO の飛散を考慮した焼成条件を確立しないと再びパイロクロア相を生じることになる。また、PNN-PZT 系 3 成分組成の MPB 境界線付近の組成と菱面体晶、また正方晶の組成を選び傾斜機能構造素子を作製することで高性能化が期待できる。

(b-5) 今後の方針

マイクロ波焼結による PZT 系組成物の焼成条件を確立できたが、さらに、良質な焼結体を得るためには多くの条件の設定が必要であり同時に、マイクロ波焼結を利用し傾斜機能構造素子への応用を検討することで PNN-PZT 系セラミックスの高性能化を目指す。

(c) 圧電セラミックスのシート化の研究

(c-1) 従来の研究背景と本研究の目標

誘電材および圧電材などに実用化されるセラミックスは、いわゆるシートと呼ばれる薄くて比較的広い表面積を持っていることが望ましい。このようなシートを作製する技術としては圧粉法、押し出し法、テープキャスト法（ドクターブレード）法などが挙げられる。ドクターブレード法を用いると均一で高い成形密度を持つセラミックスのシートが得られるとともに、スタンプ処理により多層キャパシター（MLC）および多層セラミックパッキング（MLCP）を容易に作製することが可能である^(8, 9)。この方法は 1947 年 Howatt らによる酸化チタンシート作製にその概念が初めて提案され⁽¹⁰⁾、それ以降、酸化アルミナのシート作製を中心とした研究が多数報告⁽¹¹⁾⁻⁽¹³⁾されるなど、機能性セラミックスの作製にその適用が試みられてきた。しかし、この方法により作製した多層および大型セラミックシートの実用化に関する報告は未だに少ないのが現状である。

本報告ではセラミックシート作製の基礎事項であるドクターブレード法の概要、シートの作製手順、スラリー作製および簡単なシート作製例を紹介する。

(c-2) ドクターブレード法によるシート化研究

① ドクターブレード法の概要と装置

ドクターブレード法はセラミック粉末に結合剤、可塑剤、溶剤などを混合して調整した

スラリーを送られてくる薄板（フィルム）の上に流し出し、その厚みをブレードで調整してグリーンシートを作製する方法である。形成されたグリーンシートを切断、孔あけなどを行って乾燥、焼成してセラミックシートを得る。図(3-1).23 に本研究で用いたドクターブレード装置（Drei Cast Model 101）の概略図を示す。この装置はスラリーが塗布されるマイラー（Mylar: glycol terephthalic acid polyester）フィルムを図(3-1).23 の 1 に、フィルム受け用ロールを 2 部分にセットし、一定の速度でフィルムを送りながらシートを作製する構造になっている。調整したスラリーをブレードユニット（図(3-1).23 の 3 の部分）に注入し、ブレードで厚みを調節しながらグリーンシートを作製する。フィルムに塗布されるスラリーは 5 つの加熱板（図(3-1).23 の 4～8）により乾燥され、フィルム受け用ロールに巻かれる。本装置では厚み 5～100 μm に精密制御でき、最大幅 180mm までのシートを作製できる。

②シートの作製手順

図(3-1).24 にドクターブレード法の一般的な実験手順を示した。セラミックシート作製はスラリーの調整（混合段階からスラリーのフィルタ段階まで）、グリーンシートの作製と焼成に大きく分けられる。スラリー作製の最初の段階は混合（Milling）である。混合は 2 段階に分けられ、1 段階の混合は原料粉末の凝集状態を解除し、その表面に解膠剤を塗布することを目的として行われる。混合の 2 段階では添加剤とセラミック粉末の均一な混合が行われる。通常これらの混合はボールミルを用いる。均一に調整されたスラリーはガス除去を通じ、粘度を調節した後シート作製に移される。

ドクターブレード装置によって作製されるシートの厚みはスラリーの粘性、フィルムの送り速度とブレードの寸法により決まるので、これらの条件を変化させながら目的に合わせた所定の厚みを持つシートを作製する。また、多層のシートを作製する場合には、一度作製した異なる成分を持つグリーンシートを重ね、スタンプ処理などを行い積層化する。

作製の最終段階は焼成で、焼成も添加剤の除去段階と緻密化段階に分けて行う。スラリー作製段階で添加した有機物は全て除去することが望ましい。添加物の種類により焼成温度は異なるが、添加物は通常 500 $^{\circ}\text{C}$ 以下で全て除去される。焼成後のシートの収縮が問題になっているが、均一で高い密度を持つグリーンシートを作製することによりシートの寸法制御が容易になる。以下ではシート作製過程であるスラリー調整について詳述する。

③スラリーの作製

ドクターブレード用のスラリーを調整する際にはセラミック粉末にシート作製に必要な性質を与えるために結合剤、可塑剤、解膠剤と溶剤などを添加する。それらの添加物の役割と一般的な添加率は次の通りである。

-結合剤 (Binder) : 溶剤に溶解してスラリーの粘性を増加させるとともに溶剤が除去された後、グリーンシートに十分な強度を与える。従って、シート作製に使用するフィルムに吸着しやすいものを選択する。典型的な添加率はセラミック粉末 100 g に対し 3~8g 程度である。

・可塑剤 (Plasticizer) : スラリー中の結合剤の分散を改善するとともにグリーンシートの作業性などを高めるために結合剤の粘性を低下させる。結合剤と同量を添加する。

・解膠剤 (Deflocculant) : セラミック粉末の粒子をコーティングし、スラリーの中に安定に浮遊させる。混合の過程で周期的に添加するが、全体の添加量はセラミック粉末 100 g に対し 3ml が限度である。

・溶剤 (Solvent) : 結合剤と可塑剤および解膠剤を溶解させ、スラリー全体に分散させるが、セラミック粉末との反応は禁物である。通常融点と粘性が低いものを選択する。

表 (3-1). 4 にはスラリー調整に使われる添加剤を示す。添加剤は原料セラミック粉末の特性以外にも (イ) 添加物の除去温度、(ロ) 粘性の範囲、(ハ) 溶剤の制限性、(ニ) スラリーを塗布するフィルムの種類、(ヘ) コストなどを総合的に考慮し選択する。これらの添加剤の中で、結合剤としてはポリビニルブチラール (PVB: poly vinyl butyral) ⁽¹⁴⁾、可塑剤としてはポリエチレングリコール (PEG: polyethylene glycol) ⁽¹⁵⁾、解膠剤は魚油 (fish oil) ⁽¹⁶⁾ が主に使われている。一方、溶剤はトルエン (Toluene) などのアルコール類が使用されるが、トリクロロエチレン (trichloroethylene) とエチルアルコール (ethyl alcohol) ⁽¹⁷⁾、メチルエチルケトン (methylethyl ketone) とエタノール (ethanol) ⁽¹⁸⁾ のように 2 つの溶剤の混合剤を使用し粘度を下げている。

④ 圧電セラミックシート作製の例

上述したようにドクターブレード法を用いてセラミックのグリーンシートを作製する際、スラリー粘性とグリーンシートの厚みには密接な関係がある。ここでは、本研究で行った圧電材のグリーンシート作製例を紹介することによりスラリー粘性とグリーンシートの厚みとの関係を検討する。

表(3-1).5 に異なる成分を持つスラリーの粘性、ブレードの寸法および作製したグリーンシートの厚みをまとめて示す。実験には優れた圧電特性で知られている $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3\text{-PbZrO}_3$ 系で異なる組成を持つ 5 種類のスラリー (A = $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.5}(\text{Ti}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})_{0.5}\text{O}_3$ 、B = $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.7}(\text{Ti}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})_{0.3}\text{O}_3$ 、C = $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.65}(\text{Ti}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})_{0.35}\text{O}_3$ 、D = $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.6}(\text{Ti}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})_{0.4}\text{O}_3$ 、E = $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.55}(\text{Ti}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})_{0.45}\text{O}_3$) を用いた。グリーンシート作製には Drei Cast Model 101 のドクターブレード装置を用い、ブレードは 400、200、100 μm の 3 種類を使用した。これらのブレードによって作製されるグリーンシートの厚みはブレード寸法の 1/4 になるので、期待されるシートの厚みは各々 100、50、25 μm

である。全てのシート作製にフィルムの送り速度は 0.5mm/min、5つの加熱板の温度は 35～70℃に調節した。表に示した結果から、比較的厚い 400μm のブレードを使用した場合、各成分のスラリーの粘度範囲は 2250～3000cps で、作製されたシートの厚みは 150～120μm であることがわかる。この結果を期待厚み(100μm)に比較すると 20～50μm 厚いが、各スラリーの粘度を考慮すると粘度が高いほどシートが薄くなり、期待厚みに近づく傾向を示していることが分かる。一方、200と100μmのブレードで作製したグリーンシートの場合には各スラリーの粘度の差がそれほど大きくなかったため、スラリーの粘度による傾向は見られず、期待厚みにほぼ近い制御されたシートが得られた。これらの結果を見る限りでは、比較的厚いシートを作製する場合にはスラリーの粘性を高める必要があると考えられる。また、シートの厚みはスラリーの組成より粘度に影響を大きく受けると考えられるが、より精密な検討が必要である。

(c-3) 今後の方針

上述したようにドクターブレード法を用いて全体が均一な厚みで比較的広い表面積を持つ PNN-PT-PZ 系のグリーンシートを得られることがわかった。これらの技術に基づき、今後は 20μm 以下の薄板シートの作製と焼結方法の探索および多層のシートを作製するための積層化技術確立を目指す。

(d) ゼルゲル法による P Z T 薄膜の配向制御

(d-1) 従来の研究背景と本研究の目標

近年、セラミックス薄膜を生成する成膜技術はいくつか研究されている。本研究ではゾルゲル法を用いて P Z T 薄膜を生成し、その評価を行った。[111]方向に配向された白金基盤の上にゾルゲル法を用いて P Z T 薄膜を作成すると、そのときの熱処理温度によって P Z T 薄膜の配向性を制御できる。本研究の目的は、ゾルゲル法による P Z T 配向薄膜の作製と、その電気特性等を評価し良質な薄膜アクチュエータを作成することで、線材化への足がかりとする。

本研究では、鉛($\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COOH})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$)、チタン($\text{Ti}((\text{CH}_2)_3 \cdot \text{OH})_4$)、ジルコン($\text{Zr}((\text{CH}_2)_3 \cdot \text{OH})_4$)の化合物をグローブボックス内で秤量し、それらを混合、還流して金属アルコキシドの前駆体を菱面晶(以下 R: rhombohedral)、モルフォトリック・フェイズ・バウンダリ(以下 MPB)、正方晶(以下 T; tetragonal)の3種類作製した。その後各溶液に安定化剤として酢酸もしくはジエタノールアミンを混入し、白金基盤の上に熱処理の条件を変えてスピンコートを用いて薄膜を生成した。その後電気炉で焼成しスパッタにより白金の上部電極をつけた。その後、X線回折により結晶構造の分析を行い電気特性を測定した。

(d-2) ゾルゲル法

ゾルゲル法とは、溶液から出発して、微粒子を含むゾルの状態を通り、さらに、固体の骨組みの隙間に液体あるいは空気を含むゲルの状態を経てガラスあるいはセラミックスなどを作る方法である²⁰⁾。粉体からセラミックスを生成する方法よりも、均質でムラのないセラミックスを生成できると言われている。本研究では、P Z T 薄膜の作製にそれを応用する (図(3-1).25)。

酢酸鉛 3 水和物 ($\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COOH})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$) をグローブボックス内で秤量し溶媒として 2-メトキシエタノールに溶解させオイルバスに入れて 137℃ で約 10 時間蒸留する。その後、ジルコニウムイソプロポキシド ($\text{Zr}((\text{CH}_2)_3 \cdot \text{OH})_4$) とチタニウムイソプロポキシド ($\text{Ti}((\text{CH}_2)_3 \cdot \text{OH})_4$) をグローブボックス内で秤量し、蒸留脱水された酢酸鉛に混入し、さらに 5 時間還流する。各溶液に対する秤量値は表 1 に示す。ただし、R、T については 0.5mol 溶液 100ml、MPB については 0.5mol 溶液 200ml を作製する場合の分量を示してある。還流後、液温が 50℃ 以下になるまで待ち、その後溶液を 2 つに分け、安定化剤として酢酸もしくはジエタノールアミン(DEA)を混入し、ホットプレートの上において約 30 分間攪拌する。安定化剤は、出来あがった前駆体溶液の加水分解の進行を抑制したり、沈澱の生成を防ぐ役割がある。後述するが、安定化剤は、出来あがった P Z T に影響を及ぼす。

できあがった前駆体溶液を注射器に入れ、スピンコート法を用いて薄膜を生成する²¹⁾(図(3-1).26)。このとき乾燥過程 (120℃) の有無、有機物熱分解温度 (400℃、450℃、520℃)、2 種類の安定化剤それぞれについて薄膜を作製する。スピンコート後、電気炉により 650℃ で 1 分間、酸素雰囲気中で焼成する。その後、スパッタにより白金の上部電極をつける (図(3-1).27)。

(d-3) X線回折

[111]方向に配向された白金基盤 (図(3-1).28) の上にスピンコートにより P Z T 薄膜を生成する過程の熱処理によって薄膜の配向性が制御できる (図(3-1).25)。熱処理は前述したように、400、450、520℃ である。3 つの熱分解温度のうち 1 つを選択することによって、配向性が異なってくることが期待できる。

焼成された薄膜の配向性を調べるために、X線回折測定を行った (図(3-1).29、30)。図(3-1).29 では[111]優先配向の P Z T 薄膜、図(3-1).30 では[100]優先配向の P Z T 薄膜であると言える。

その後、結晶の配向性を比較するために、[100]のピーク値と[111]のピーク値との比をとり、グラフに表した (図(3-1).31)。図(3-1).31 では、値が 1 を超えると[100]のピーク強度が[111]のそれよりも大きいことを示しているため、1 を超えたら[100]配向の傾向が強く、

1より小さければ[111]配向の傾向が強いと見える。

[100]方向のピークは出にくく、特に熱処理温度 450℃のときに[100]の傾向がでにくくなっているが、400℃まで熱処理温度を下げると[100]傾向も見られる。一概に傾向とは言えないが、安定化剤が酢酸のときよりも DEA のときの方が、[100]傾向が得やすいようである(図(3-1).32)。また、乾燥過程も、配向性に少なからず影響を及ぼしていると考えられる。

(d-4) 電気特性

その後、電気特性 (I-V、キャパシタンス、P-E ヒステリシス) を測定した。

上部電極は P Z T 薄膜上に図(3-1).26 のようについており、そのすべての電極において測定を行ったが、測定可能な点と不可能な点があり、その測定可能率は、膜の生成条件によって異なるようである。安定化剤として DEA を使ったとき、もしくは乾燥課程なしのとき測定可能率が低いように思われる。

P-E 特性を、上記の電気測定が可能な点においてのみ測定した。ほとんど全ての場合において、強誘電特性を示した(図(3-1).33、34)。

以上、ゾルゲル法により生成された P Z T 薄膜について、配向性を制御できた。また、強誘電性を示す膜の生成方法を確認できた。

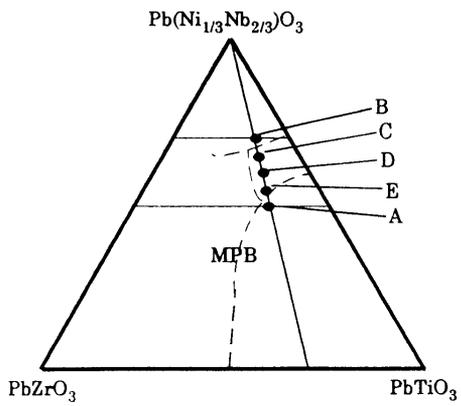
(d-5) 今後の方針

今後は PNN-PZT ゾルゲル前駆体のコア基材への塗布方法及び焼結方法の探査を行う。

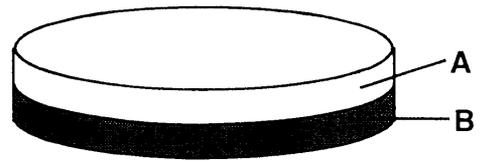
参考文献

- 1.内野研二：圧電/電歪アクチュエータ、森北出版(1986)
- 2.Gane H. Heartling, Am. Ceram. Soc. Bull., Vol.73, (1994), pp.93-96.
3. T. Kawai and S. Miyazaki, J. Ceram. Soc. Jpn, Vol. 98, (1990), pp.900-904
4. H. Banno, T. Tsunooka, and I. Shimano, Proc. 1st Meet. Ferroelectric Mater. And Their App., (1977), Kyoto, pp.339-344
5. T.Sekiya, Journal of the Korean Physical Society., Vol.32, February 1998, pp.S1201
6. H.Fukushima, Trans.Mat;Res,Jpn.,Vol14A (1993)
- 7.佐治他三郎,セラミックス.,29(1994) 383-386
8. D. J. Shanefield, R. E. Mistler : Journal of American Ceramic Bulletin, 53 (1974), pp.416.
9. R. E. Mistler : Journal of American Ceramic Bulletin, 69 (1974), pp. 1022.

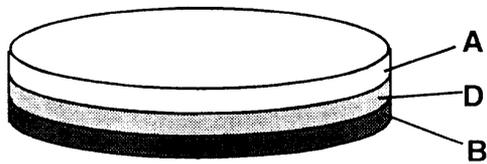
10. G. N. Howatt, R. G. Breckenridge, J. M. Brownlow : Journal of American Ceramic Society, 30 (1947), pp. 237.
11. H. W. Stetson, B. Schwartz : American Ceramic Society Bulletin, 40 (1961), pp. 584.
12. D. J. Shanefield, R. E. Mistler : American Ceramic Society Bulletin, 52 (1973), pp. 375.
13. R. B. Runk, M. J. Andrejco : American Ceramic Society Bulletin, 54 (1975), pp. 199.
14. R. J. Hetherington, G. E. Melvin, S. A. Milkovich, E. N. Urfer : U.S. Patent No. 4 336 088 (1982)
15. J. Thompson : American Ceramic Society Bulletin, 42 (1963), pp. 488
16. B. H. Ryu, M. Takahasi, S. Suzuki : . Journal of the Ceramic Society of Japan, 100 (1992), pp.422.
17. H. W. Stetson, W. J. Gyurk : Schwartz : U.S. Patent No. 3 698 923 (1972)
18. L. Braun, J. R. Morris, Jr., W.R. Cannon : American Ceramic Society Bulletin, 64 (1985), pp.727.
19. R. E. Mistler : Ceramic Bulletin, 69 (1990), pp. 1022. 佐治他三郎, セラミックス., 29(1994) 383-386
20. 作花濟夫 : ゾルーゲル法の科学、アグネ承風車
21. 梨本恵一、菅原義之 : セラミックス実験技術講座・ゾルーゲル法(2)、セラミックス 33 (1998) No.5



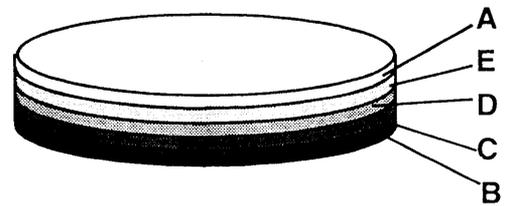
図(3-1).1 結晶構造



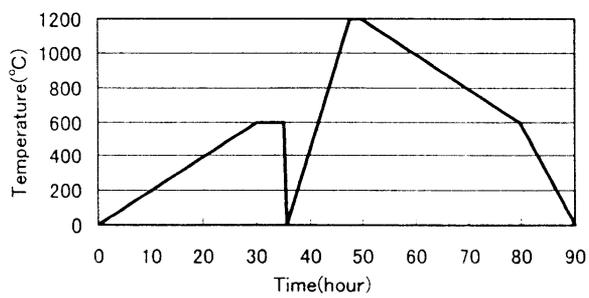
図(3-1).2 2層型



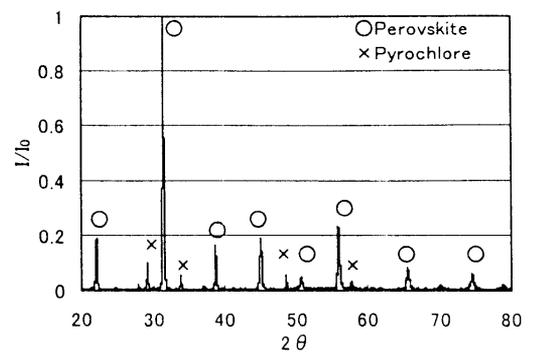
図(3-1).3 3層型



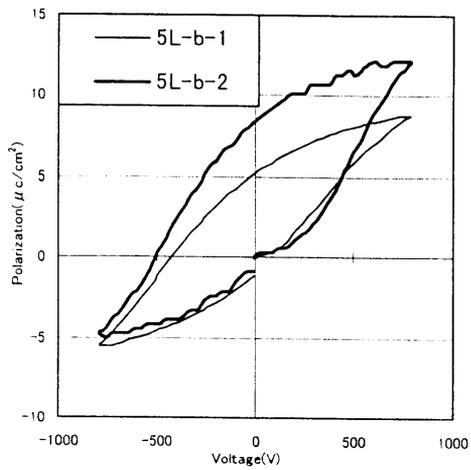
図(3-1).4 5層型



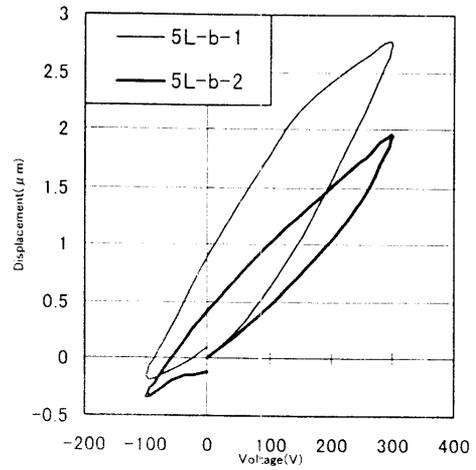
図(3-1).5 焼結スケジュール



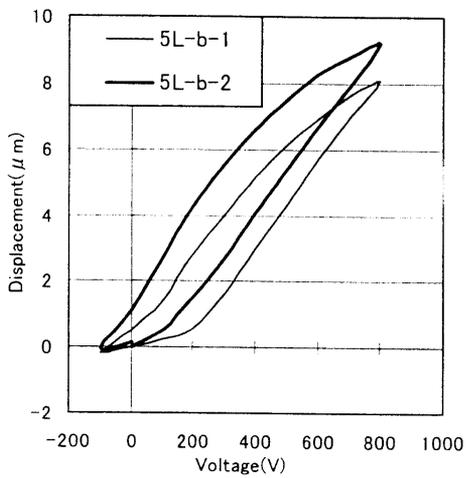
図(3-1).6 XRD結果(A側)



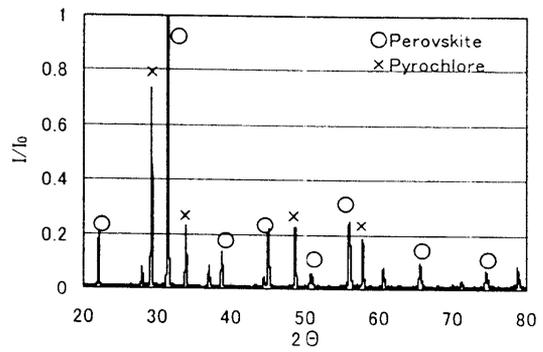
図(3-1).7 P-Eヒステリシス



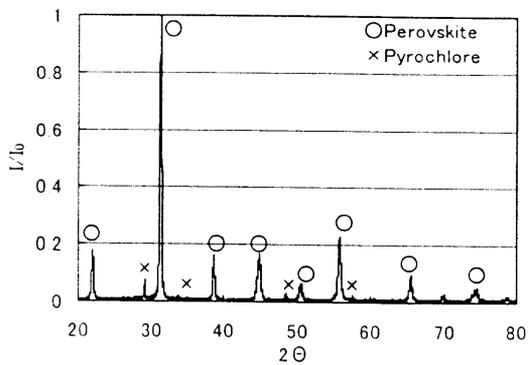
図(3-1).8 変位測定結果(300V)



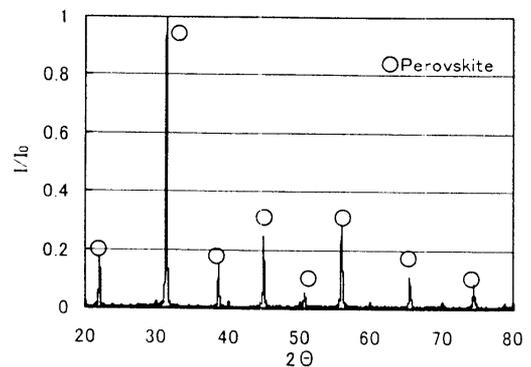
図(3-1).9 変位(800V)



図(3-1).10 XRD結果(B側)



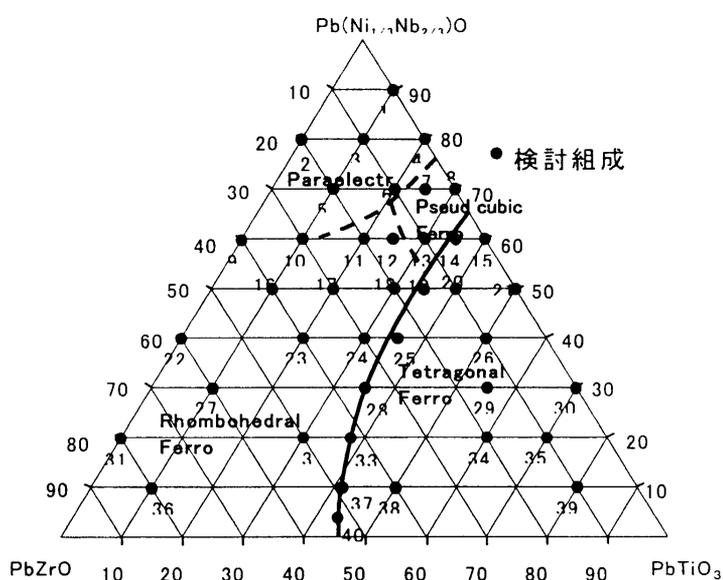
図(3-1).11 XRD結果(A側, Pb雰囲気)



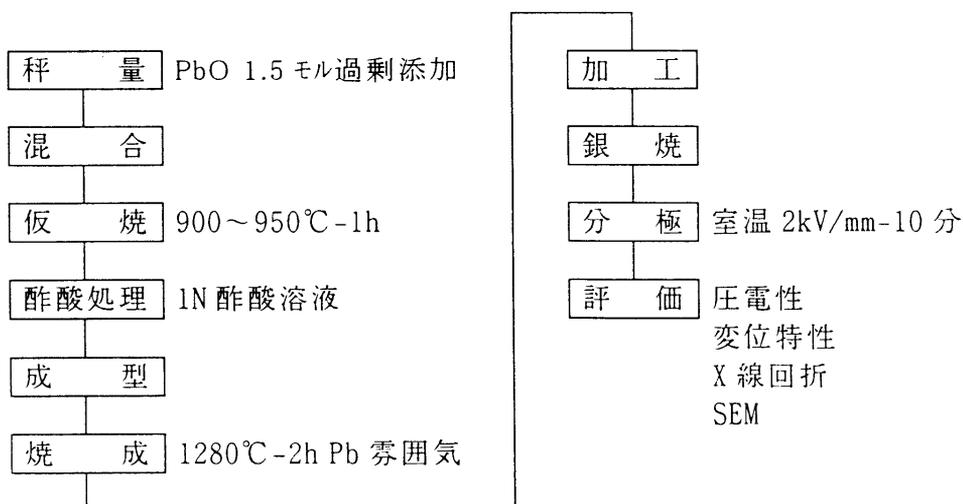
図(3-1).12 XRD結果(B側, Pb雰囲気)

表(3-1).1 試験片の密度、厚さ

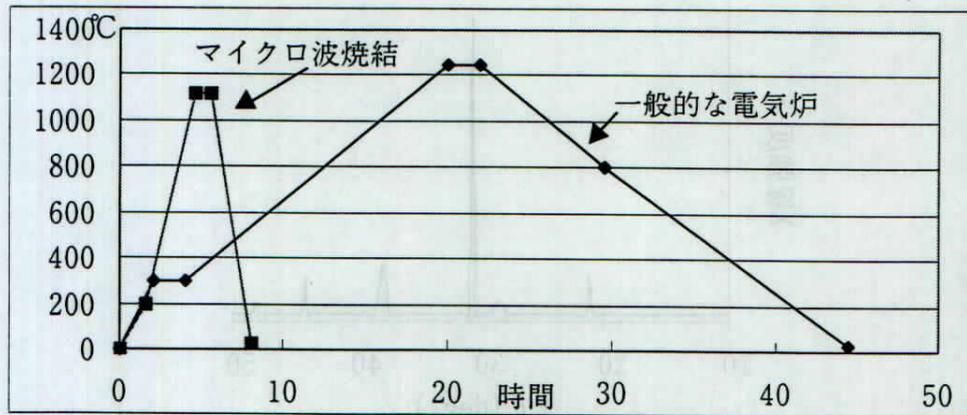
試験片	密度	厚さ	分極後
2L-1	7.81g/cm ³	1.15mm	割れ
2L-2	8.24g/cm ³	1.15mm	割れ
3L-1	8.06g/cm ³	1.15mm	割れ
3L-2	7.77g/cm ³	1.15mm	割れ
5L-a-1	7.82g/cm ³	1.0mm	割れ
5L-a-2	7.99g/cm ³	1.0mm	割れ
5L-b-1	8.06g/cm ³	1.91mm	割れなし
5L-b-2	8.00g/cm ³	1.95mm	割れなし



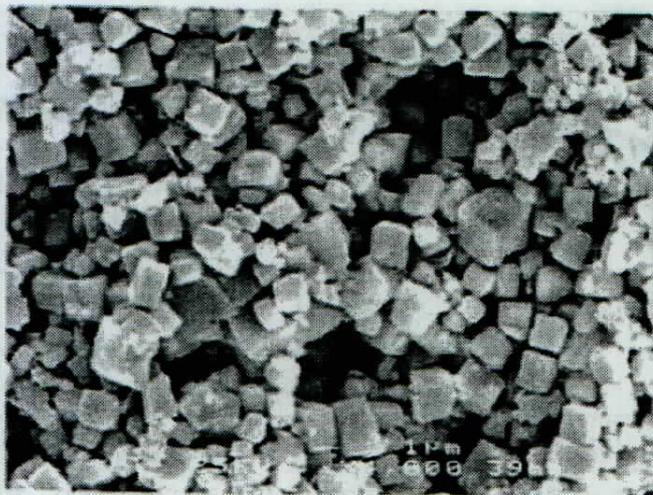
図(3-1).13 PNN-PZT系セラミックス3成分系状態図



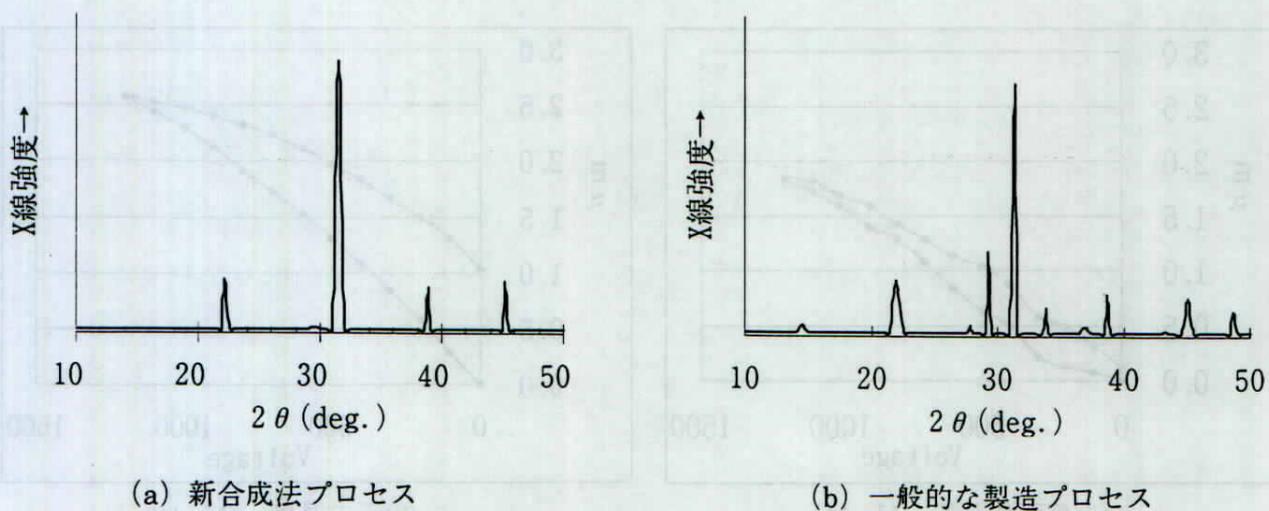
図(3-1).14 PNN-PZT系セラミックス作製フローチャート



図(3-1).15 マイクロ波焼結と一般的電気炉の焼成プロファイル



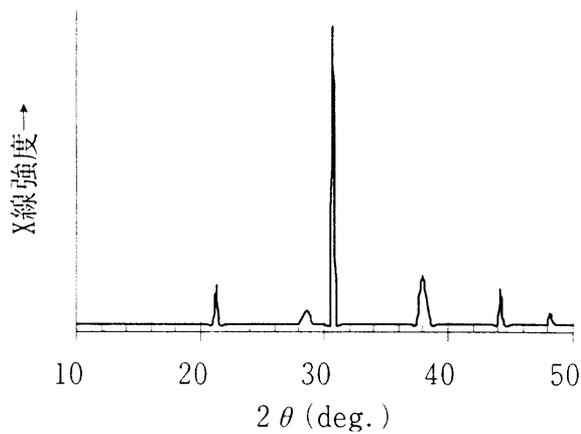
図(3-1).16 新合成プロセスで作製した PNN-PZ T 系粉末の SEM 写真



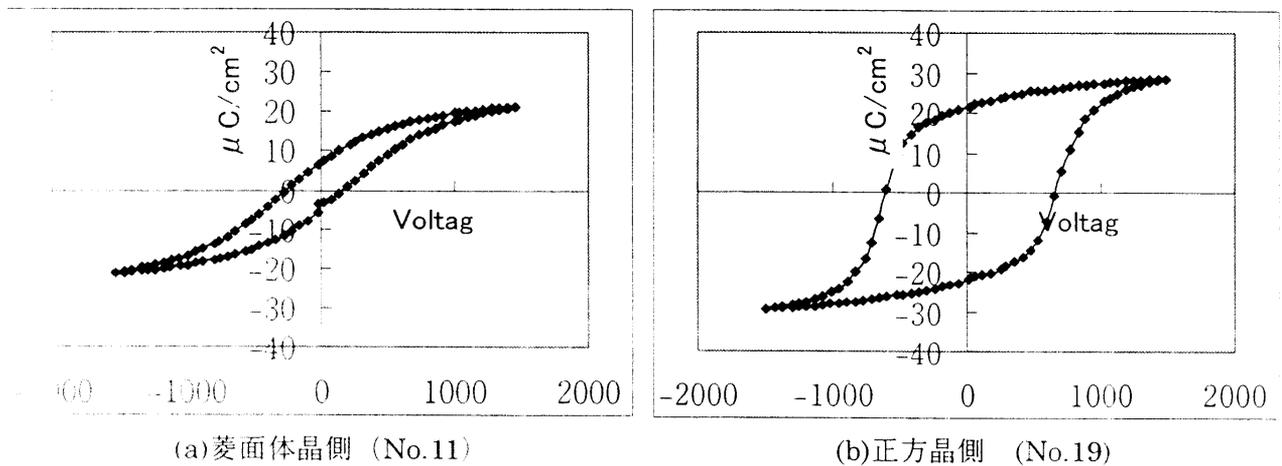
(a) 新合成法プロセス

(b) 一般的な製造プロセス

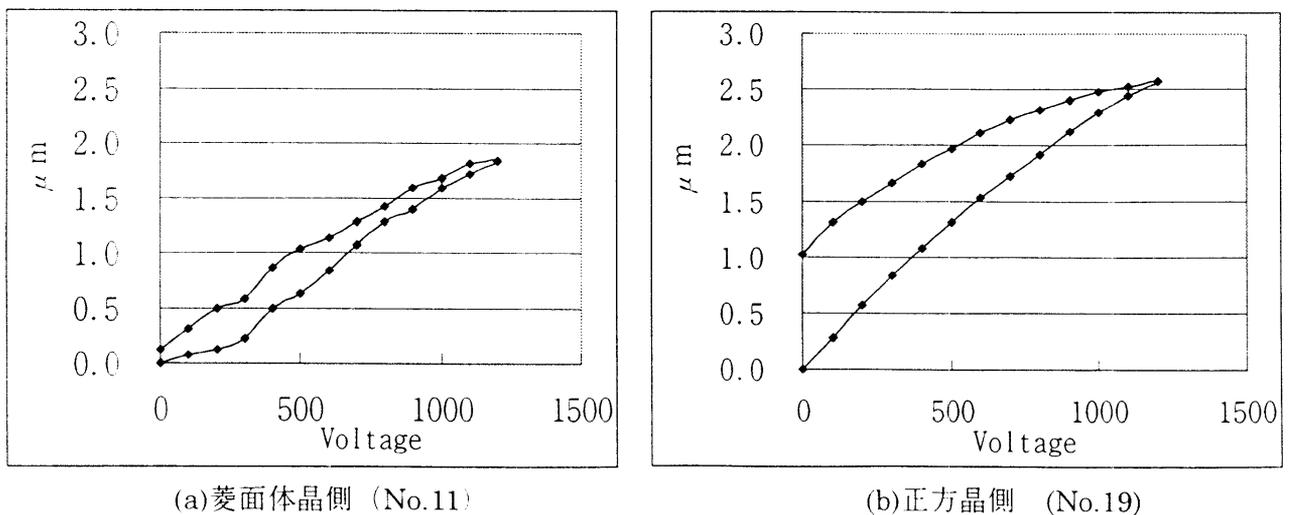
図(3-1).17 PNN-PZT 系セラミックスの X 線回折



図(3-1).18 PbO 雰囲気による焼成後 PNN-PZT 系セラミックスの X 線回折



図(3-1).19 新合成プロセスで作製した PNN-PZT 系セラミックスの P-E ヒステリシス曲線



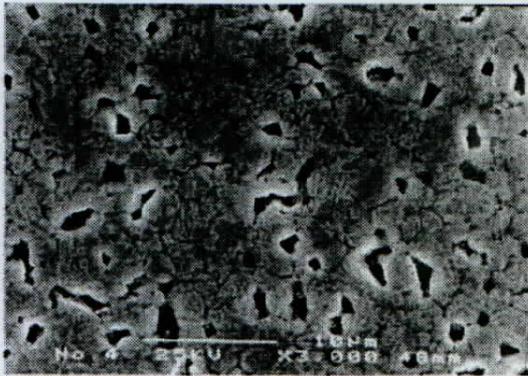
図(3-1).20 新合成プロセスで作製した PNN-PZT 系セラミックスの変位の電圧依存性

表(3-1).2 PNN-PZT系セラミックスの圧電特性と変位量

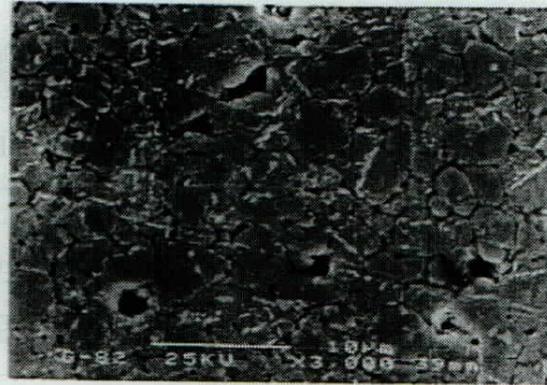
	菱面体晶側 No.11	正方晶側 No.19
K_p (%)	21.4	56.7
ϵ_{33}	7000	5600
ρ (g/cm^3)	7.6	7.7
変位量/1000V (μm)	1.83	2.57

表(3-1).3 マイクロ波焼結と一般的な電気炉による圧電特性

	K_p	K_t	Q_m	ϵ_{33}	ρ
	%	%			g/cm^3
マイクロ波	62.47	50.47	66.46	3060	7.2
電気炉	67.97	52.66	64.65	3359	7.4

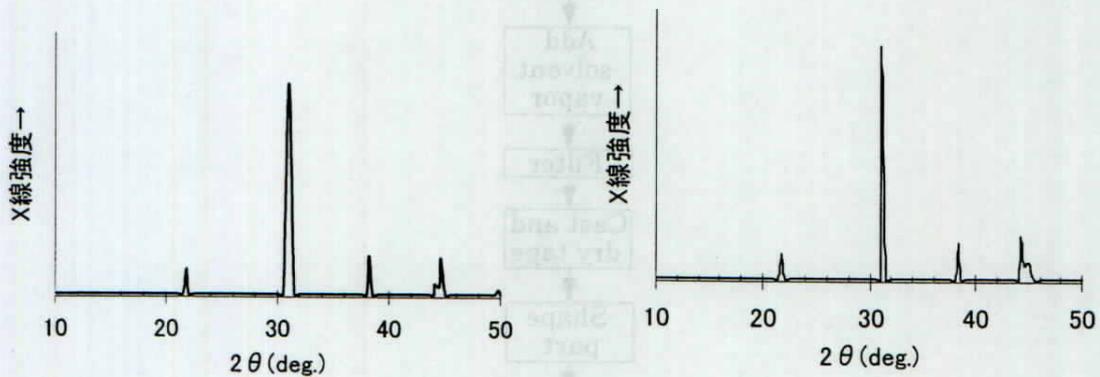


(a) マイクロ波焼結



(b) 一般的な電気炉

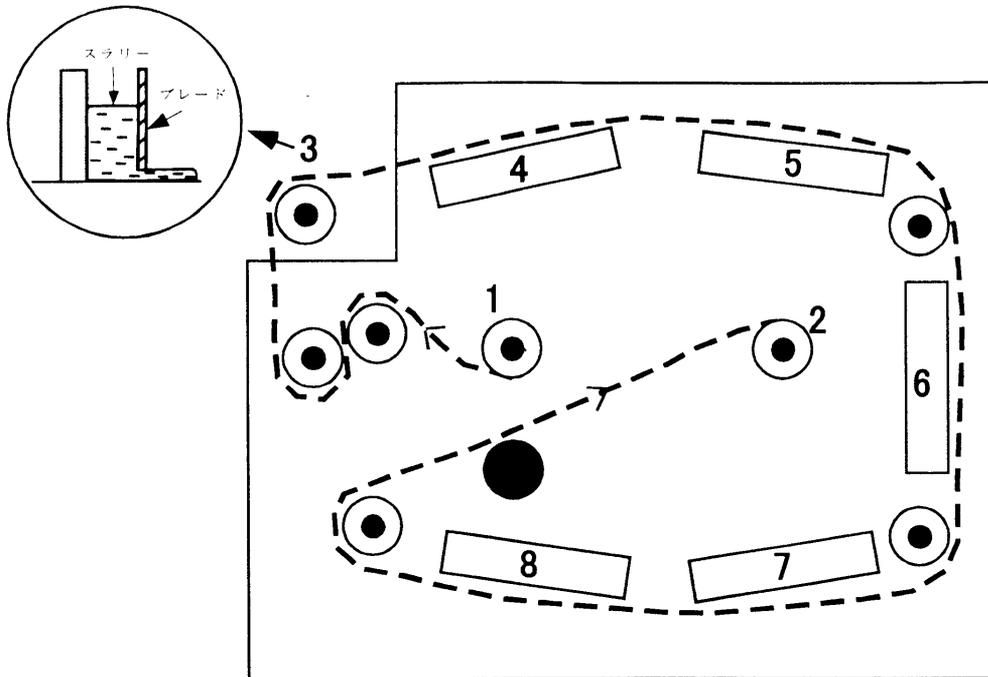
図(3-1).21 マイクロ波焼結と一般的な電気炉で焼結した断面組織 SEM 写真



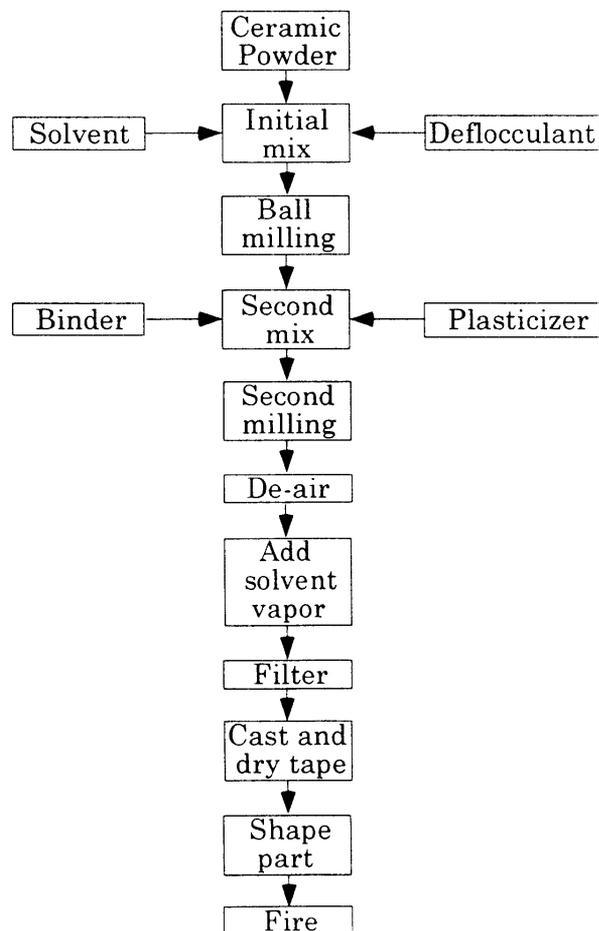
(a) マイクロ波焼結

(b) 一般的な電気炉

図(3-1).22 マイクロ波焼結と一般的な電気炉で焼結したX線回折チャート



図(3-1).23 ドクターブレード装置の概略図 (1:マイラーフィルムセットロール、
2:フィルム受け用ロール、3:ブレードユニット、4~8:加熱板)



図(3-1).24 ドクターブレード法によるセラミック
シートの作製手順

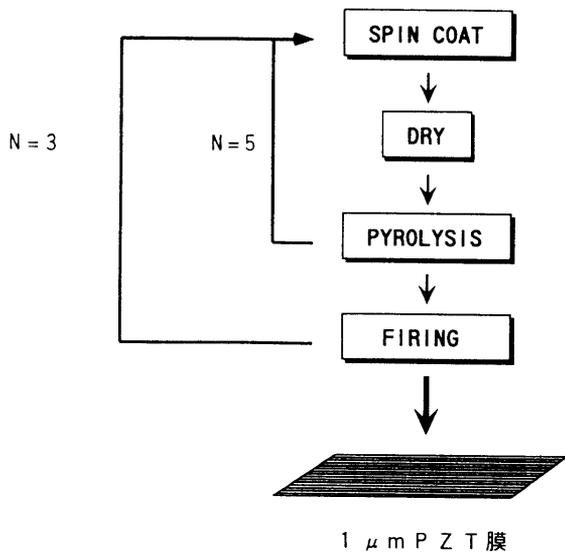
表(3-1).4 スラリー作製に使用する添加剤の分類¹⁹⁾

Solvent	Binder	Deflocculants
Acetone	Cellulose acetate butyrate	Fatty acids (glyceryltriolate)
Ethyl alcohol	Nitrocellulose	Fish oil
Bezene	Petroleum resins	Synthetic surfactants
Bromochloromethane	Poly(ethylene)	oil-soluble sulfonates
Butanol	Polyacrylate esters	Alkylaryl polyether alcohols
Diacetone	Poly(methyl methacrylate)	Ethyl ether of poly(ethylene glycol)
Isopropyl alcohol	Poly(vinyl alcohol)	Ethyl phenyl glycol
Methyl isobutyl ketone	Poly(vinyl butyral)	Polyoxyethylene acetate
Toluene	Poly(vinyl chloride)	Ployoxyethylene ester
Trichloroethylene	Vinyl choride acetate	Alkyl ether of poly(ethylene glycol)
Xylene	Ethyl cellulose	Oleic acid ethylene oxide adduct
Tetrachloroethylene	Poly(tetrafluoroethylene)	Sorbitan trioleate
Methanol	Ploy(a-methylstyrene)	Phosphate ester
Cyclohexanone		Steric acid amide ethylene oxide adduct
Methyl ethyl ketone		
Plasticizers		
Benzyl butyl phthalate		
Butyl stearate		
Dibutyl phthalate		
Dimethyl phthalate		
Methyl abietate		
Mixed phthalate esters		
Poly(ethylene glycol)		
Poly(alkylene glycol)		
Tricresyl phosphate		
Dioctyl phthalate		
Dipropylglycol dibenzoate		

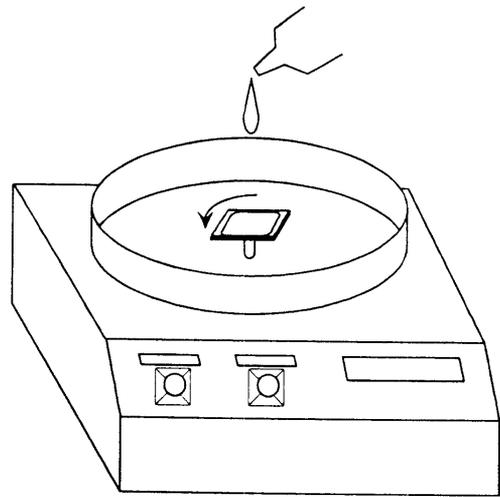
表(3-1).5 調整した PNN-PT-PZ 系スラリーの粘度とドクターブレード法により作製されたグリーンシートの厚さ

A=Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})_{0.5}(Ti_{0.7}Zr_{0.3})_{0.5}O₃, B=Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})_{0.7}(Ti_{0.7}Zr_{0.3})_{0.3}O₃,
 C=Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})_{0.65}(Ti_{0.7}Zr_{0.3})_{0.35}O₃, D=Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})_{0.6}(Ti_{0.7}Zr_{0.3})_{0.4}O₃,
 E=Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})_{0.55}(Ti_{0.7}Zr_{0.3})_{0.45}O₃

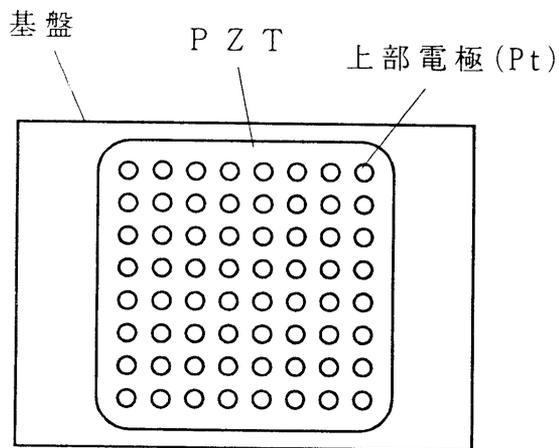
スラリー種類	ブレードギャップ	スラリー粘度(cps)	グリーンシートの厚さ(μm)
A	400μm	2250	145±5
B		3000	118
C		2200	122±1
D		2200	125±3
E		2900	120±1
A	200μm	540	43±1
B		650	50±1
C		650	50±1
D		570	52±2
E		860	50±1
A	100μm	810	22
B		650	23±1
C		650	24±1
E		570	23±1
D		860	25±1



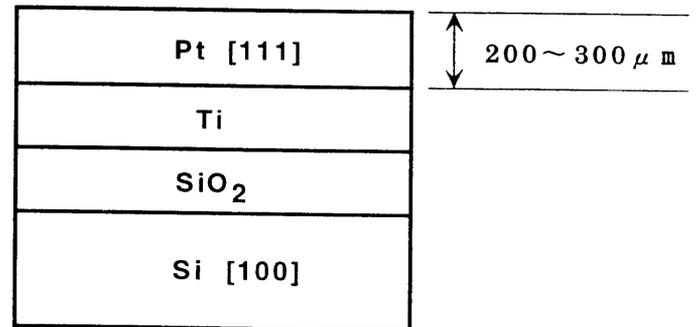
図(3-1).25 作業工程



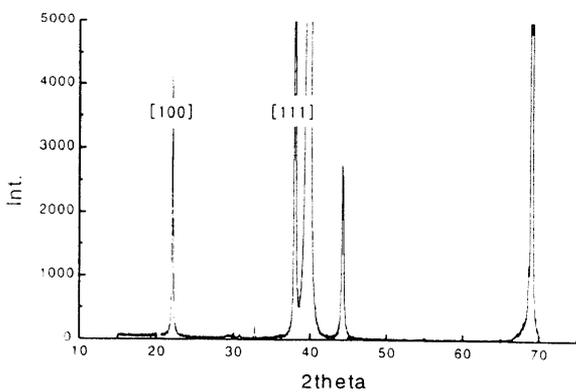
図(3-1).26 スピンコーター



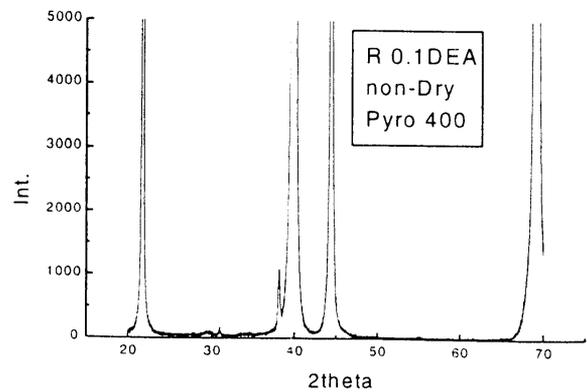
図(3-1).27 P Z T 薄膜



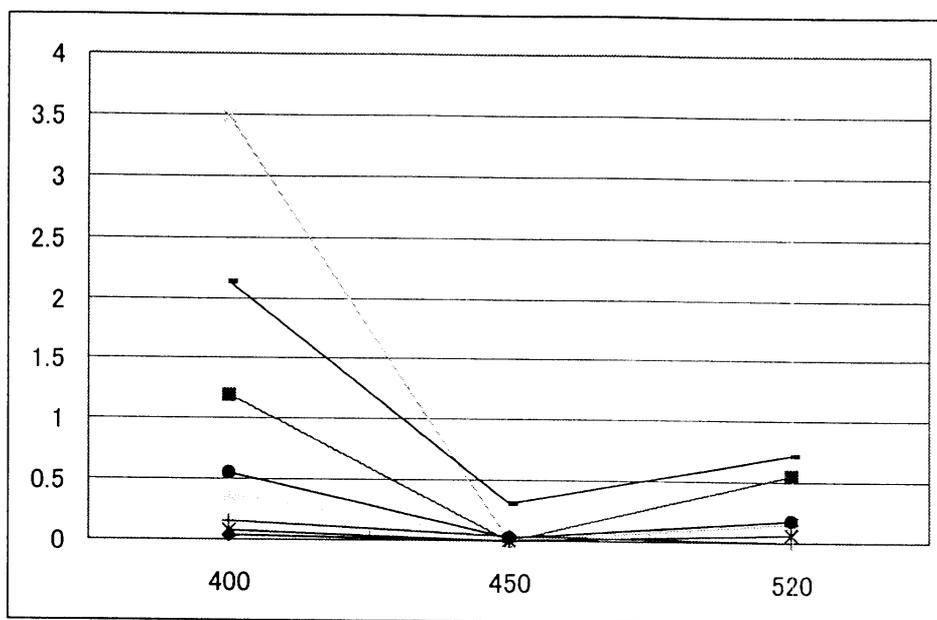
図(3-1).28 白金基盤 (厚さ方向)



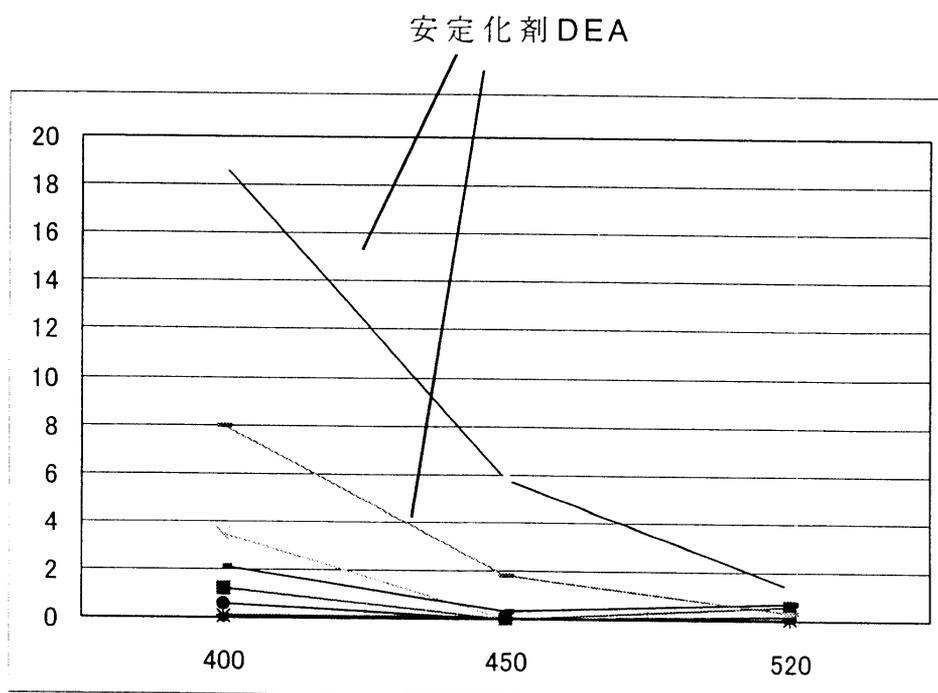
図(3-1).29 X線回折



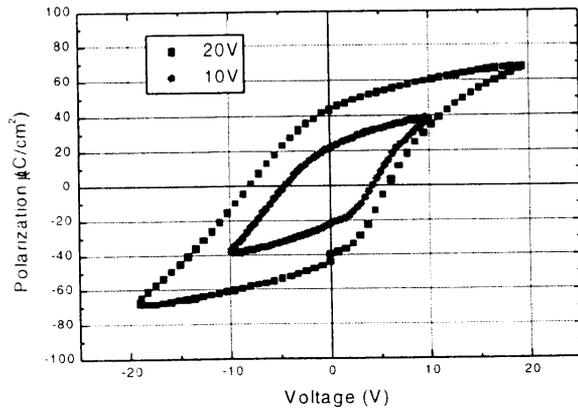
図(3-1).30 X線回折



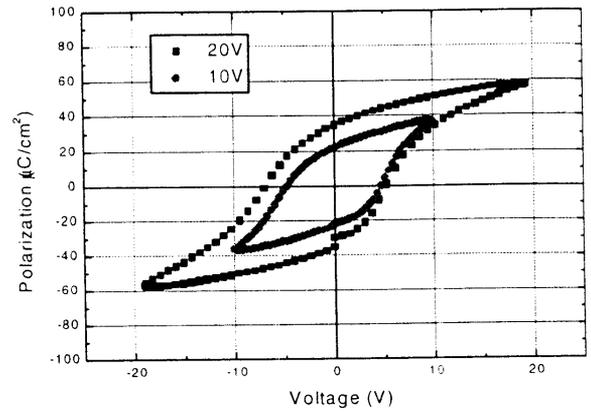
図(3-1).31 [100]/[111] 配向比



図(3-1).32 [100]/[111] 配向比



図(3-1).33 P-Eヒステリシス



図(3-1).34 P-Eヒステリシス

表(3-1).6 各試薬の秤量値

	R	MPB	T
$\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COOH})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ (g)	19.061	38.123	19.061
$\text{Ti}((\text{CH}_2)_3 \cdot \text{OH})_4$ (g)	10.028	17.716	7.521
$\text{Zr}((\text{CH}_2)_3 \cdot \text{OH})_4$ (g)	5.685	13.773	7.817

(3-2) 感温型形状記憶合金アクチュエータの開発

(a) 本研究の目標

本研究開発プロジェクトの主題である「知的材料・構造システム」を実現させるためには、そこに組み込む各種センサ（検知）・アクチュエータ（駆動）材料・素子の高性能化と合目的改質・形状付与技術の開発を進めることが不可欠である。形状記憶合金（SMA）は温度や応力センサとアクチュエータの二つの機能を併せ持つが、本研究では、感温型形状記憶合金（Thermal SMA, 以下、TSMA）の機械的特性を大幅に向上させるとともに、高温での相変態温度を有する新たなSMAの開発も視野に入れている。開発目標として、以下の項目が挙げられる。

- ・感温型形状記憶合金（TSMA）の変態歪み量および耐久性（機械的疲労、冷熱繰り返し疲労）を2倍以上に向上させる。
- ・1000℃以上の相変態温度を有するTSMAを創製する。
- ・TSMAの製造コストを1/2以下に低減する細線化・薄膜化技術を確立する。

表.(3-2).1には、感熱型形状記憶合金(Thermal Shape Memory Alloy, TSMA)を主体とした、アクチュエータ・センサ要素の材料学的課題とその対策をまとめた。(I)改善すべき問題点、(II)その対策、(III)技術展開の方向を指摘した。すなわち、我々が現状から取れるべき対策としては、①材料微視組織制御による高性能新素材開発、②革新的な材料製造プロセス採用による、機能性素材の迅速、省エネ、量産化、低コスト化実現、さらに、③素材の性能を出来るだけ低下させない合目的な材料複合バルク化加工技術の考案などが鍵となることが分かる。

本分担テーマ（期間5年：平成10年度～14年度）では、以上のSMAアクチュエータへの材料学的課題改善と高性能化研究開発指針を踏まえて革新的な材料製造プロセス技術として、“電磁浮遊溶解ノズルレス急冷凝固法”を提案し、その装置を開発・導入するところに大きな特徴がある。そして、電磁場制御下で溶湯を急速回転ロール上に流し込み（吹き出し）、急冷金属結晶組織形態を最適に制御させて、プロジェクト後半での目標であるデモンストレータに適用出来る高機能・高性能の感熱型SMAアクチュエータ材を開発・提供することを最終目的としている。

(b) 本年度研究テーマ

本分担テーマ（感温型形状記憶合金（SMA））での初年度（平成10年度）の研究開発テーマの概要は以下の通りである。

(b-1) 新溶解凝固技術（電磁浮遊溶解ノズルレス急冷凝固法）の設計・開発

高純度で均質、かつ高性能な形状記憶合金（SMA）を開発するための新材料製造プロセス技術となる『電磁浮遊溶解ノズルレス急冷凝固法』の概念提案を行い、その装置設計と製造・組立（一式）を行う。本新規材料製造プロセス技術で最も重要となる高周波電磁浮遊溶解から急冷用回転ロール上への溶湯滴下制御システムの最適化を検討する。高周波

コイル形状やその通電量、原料素材供給量と溶湯滴下量との平衡状態維持による定常的滴下流発生条件の把握、回転急冷双ロール間隔と回転速度（急冷速度）などとの相互関係を調整しながら、従来からの石英（セラミックス系）ノズルを使用しないでSMAの連続的薄板作成の成功に努める。

（b-2）急冷凝固法による材料組織制御・高性能化

代表的なチタン・ニッケル（TiNi）系の形状記憶合金（SMA）を対象にして、溶湯急冷凝固条件（急冷ロール回転速度）を変えながらSMAの金属組織制御を行い、SMAアクチュエータ素子とその特性の高性能化を目指した。非結晶質（アモルファス）形成条件よりも少し手前の急冷用ロール回転速度が遅い冷却条件で、板厚方向に結晶方位の揃った特徴有る微細柱状結晶組織が形成されるかどうか調べる。また、熱弾性型相変態時に双結晶（ドメイン）が拡大・移動する際に障害となる結晶界面の構造は変態特性に大きな影響を与えるので、粒界性格分布を調べる。そして、金属間化合物として硬く脆い性質であった、従来のTiNi系合金の延性・強度などの特性向上効果が期待されることが分かった。さらに、実機適用の際に問題となる長期使用環境下での耐食性を調べる目的で、電位分極法による耐食性実験も試みて、従来の溶解後加工材料との特性比較を試みる。

（b-3）形状記憶効果の耐久性試験・評価法の検討

デモンストレータなど実機にTSMAを適用する場合に重要なファクターとなる、形状記憶効果の耐久性やその際の特性変化を評価する試験機を組み立て、かつ、耐久性評価方法を確立することを目指した。

（c）研究結果

（c-1）電磁浮遊溶解ノズルレス液体急冷凝固装置

液体溶湯回転急冷法(Melt-spinning Method)は、図(3-2).1に模式図として示される様に、金属溶湯を回転ロールや冷媒（溶液）中に吹き出して、急冷凝固（ $101 \sim 106 \text{ }^\circ\text{C} / \text{sec}$ ）と材料加工・製品（薄板、細線）化を瞬時に行える、マイクロ（ナノ～メゾ）結晶からアモルファス非結晶までの各種金属系新素材の開発と既存材料の高性能化が可能な有力な材料（開発）製造プロセス法として、ここ10数年間活発に研究されてきた²⁾。例えば、報告者（古屋、松本ら）の研究結果^{3) 4)}として、単ロール液体急冷法で作成された微細柱状結晶からなるTi50Ni40Cu10at%系急冷薄帯（厚さ= $30 \mu\text{m}$ ）で通常の溶解加工材よりも大幅な形状記憶変態ひずみの増加（図(3-2).2参照）や耐熱疲労性の向上が確認されている。しかしながら、石英ノズルを使用した従来の急冷凝固法には、以下の問題（トラブル）がしばしば起こり、解決すべき技術的課題として残されていた。すなわち、ガラスノズル使用の溶湯吹出し法では、①溶湯とノズル間での反応（酸化、不純物巻き込み）のため（図(3-2).3参照）、②活性金属、高融点（ $T_m \geq 1500 \text{ }^\circ\text{C}$ ）金属への適用が困難、③ノズル劣化などのため連続的生産・低コスト化が出来ないことなどである。

そこで、本研究では、この回転ロール溶湯急冷凝固法(Rapid Solidification, Melt-

spinning Method)での、さらなる高融点・活性金属間化合物系への安定・高効率製造へのプロセス制御革新技術として、上記の技術課題に対して、電磁力浮遊溶解（レビテーション）技術と急冷回転ロールを組み込んだ『電磁場制御ノズルレス液体急冷凝固法』^{5) 6)}を開発することを試みた。そして、最終的には各種急冷凝固材料開発への新プロセス技術化を、生産工学的な観点から実機の装置として実現させることも考えて開発を進めた。

本プロセス装置の大きな特徴は、図(3-2).4に示される様に、①上方から溶解用金属（原料）を定常・連続的に供給する機構を組み込み、②活性な金属間化合物（TiNi、NiAl系合金など）を真空（または不活性ガス）状態で電磁誘導加熱方式で非接触浮遊（ローレンツ浮遊力）・攪拌溶解して均質・高純度化をはかり、③コイル内に溶湯金属溜まりを作らせながら、試作コイル形状の工夫により、その下方での溶湯滴下量を電磁力で絞り込み、細かい定常流を作り、④冷却用回転銅ロール上で急冷凝固させて金属組織制御を行い、材料の高性能・高機能化を目指すところにある。また、本法では電磁浮遊方式採用にもかかわらず、溶湯滴下量（連続的生産量）が常に上方からの原料素材供給量の増減（停止）で調節（中断）出来る利点もある。

図(3-2).5には、本法での連続的生産化にとって最も重要な電磁浮遊溶解とその後の急冷ロールまでの滴下溶湯の連続化過程の最適化制御部分を示し、図(3-2).6には、連続的急冷材料製造のための素材供給（最上部）、電磁浮遊溶解（中央部）および急冷凝固薄帯製造部（下部）からなる本体装置の概略を模式図で示した。また、図(3-2).7は、本体装置（チャンバー）内の装置部品写真である。

(c-2) 溶湯滴下と急冷凝固の制御

出来るだけ連続・均質性のある急冷凝固試料（薄帯、ファイバ）を得るためには、上方一次高周波浮遊溶解コイル形状を逆三角形にして、その中に有る程度の湯溜まりを形成させて溶解金属の均質攪拌化を促進させる。さらに、その上方から連続的に原料素材（棒状）を一定最適速度で送り込み、溶湯量（重量）が漸増して、次第に一次コイルの浮遊力を超えていく。その後の溶湯滴下流の絞り込みと連続流形成のための2次高周波コイルによる制御システムが必要になる。図(3-2).8には、これらの溶湯滴下と急冷凝固の最適化に重要となる主要な制御パラメータを模式図で示した。主に、一次コイル形状を工夫しながら、その後の滴下流をも変化させようとしているが、そのための一次コイル形状を逆円錐形として、上方からの原料素材棒先端溶解部での溶解金属湯溜まりを作っている。電磁浮遊溶解には、上方の1次コイルの形状（角度 θ ）と高周波通電量（ i_1 ）、その後の溶湯滴下流絞り込み制御には下方第2次コイルの内径（ ϕ ）と通電量（ i_2 ）制御が重要であり、一次コイル、二次コイル間の距離（ S ）や通電量の大きさの相互関係（ $i_1 \geq i_2$ 等）の調整が重要になる。このように、高速回転する下方急冷ロールまでの溶湯滴下流制御は本法の実用化にとって最重要の基礎研究課題であり、材料により各制御パラメータの最適値が検討された。

(c-3) 急凝固による材料組織制御

急凝固特有の材料組織制御（結晶粒度とその方位制御、結晶粒界性格分布）の可能性とその特性向上効果との定量的な相互関係を明らかにする目的でも研究・開発が進められた。走査型電子顕微鏡-電子線後方散乱パターン(SEM-EBSP)による、結晶方位および粒界性格解析⁷⁾を行い、材料の粒界微細組織について詳細な調査を行った。この SEM-EBSP/OIM システムを用いることで材料の微細組織を定量的に評価することが可能となり、粒界性格形態図(図(3-2).9)から試料解析表面の結晶粒の大きさや各種粒界の幾何的配置を容易に知ることができる。破壊や腐食に対して強い抵抗を示す低エネルギー粒界の頻度は、粒界性格形態図で色付けられていて定量的に評価できる。粒界の存在頻度を表したものが粒界性格分布(図(3-2).10)である。これによりランダムな材料組織をもつ通常が多結晶材料との比較を容易に行うことができる。この粒界性格分布から急凝固材は通常が多結晶材料に比べ、結晶粒の微細化、すなわち、粒組織が緻密で粒界の存在頻度が高いことだけでなく、急凝固材においては更に粒界そのものが破壊・腐食に強い抵抗を示す低エネルギー粒界の存在頻度が高いことがわかった。

急凝固法により作製された材料は、これまでの方法で製造された材料に比べ、図(3-2).11に示される様に、極めて耐食性に優れていることがわかってきた。急凝固材と従来の製造法による材料との OIM 解析結果の比較から急凝固材が特有の結晶配向性を持ち、なおかつ組織が緻密であることが、その原因であることが予想される。また、急凝固材は $\langle 100 \rangle$ 集合組織を形成することが粒方位分布(図(3-2).10)より確認された。従来の方法で製造された材料は、数回の冷間圧延・熱処理を施すことでようやく集合組織を形成するが、急凝固材は1回の急凝固の段階で既に微細な $\langle 100 \rangle$ 方向結晶集合組織が形成される。なお、その形態(結晶集合方位、結晶粒度、形状など)は両者で大幅に異なり、電磁浮遊ノズルレス急凝固法は、材料加工行程を大幅に省力化、迅速化でき、より安価な形状記憶合金(SMA)素材提供が可能となる技法であることが証明された。

(c-4) 形状記憶効果の評価

細線・薄膜形状記憶合金での形状記憶効果の耐久性試験・評価装置組立とデータ採取を行い、耐久性評価方法を確立させるべく実験が行われた。試料を丸め、温度を上昇させていき、丸めた試料の直径から形状記憶回復率を評価し、形状記憶特性試験とした。急凝固材と従来の材料との比較(図(3-2).12参照)から急凝固材は形状記憶効果も従来材と比較して格段に向上していることが確認された⁸⁾。変態温度は急凝固時に導入された内部応力場などの影響からやや高温側に移動していたが、急冷材でも 85°C 付近で逆変態終了点(A_f)に達しているため、これらの性能向上は、急凝固材特有の $\langle 100 \rangle$ 集合組織と低エネルギー結晶粒界界面性格分布の存在に起因するものと考えられる。なお、温度変化を与えた場合の熱疲労型耐久性評価装置は現在準備段階であり、系統的データを得るには至っていない。しかし、従来材での室温での繰り返し負荷・除荷による超弾性効果

域での疲労試験結果とその前後での前述の OIM 解析により、低エネルギー粒界には転位が蓄積されにくく、いわゆる繰り返し超弾性ほけ（崩れ）が発生しにくくなる傾向が認められ、この点からも急冷凝固効果による性能向上が確認できた^{9) 10)}。今後は低エネルギー粒界の幾何的配置と形状記憶効果の耐久性との関連性についての詳しい調査を行い、形状記憶効果の耐久性評価方法の確立とそれに適した装置の試作を目指す予定である。

(d) 小括

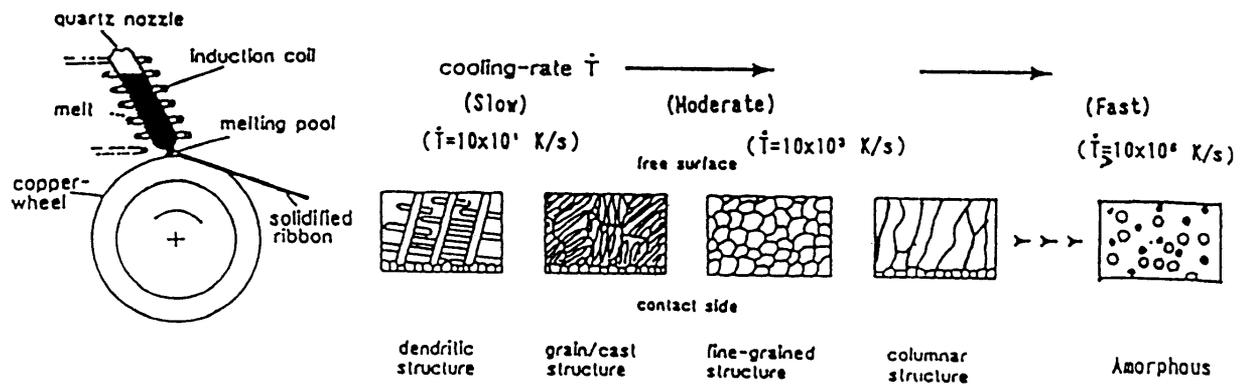
電磁浮遊溶解（レビテーション）後の溶湯滴下制御と急冷回転ロールを組み込んだ “電磁場制御ノズルレス液体急冷凝固法” を提案・試作した。この方法で作製された TiNi 系の活性な形状記憶合金（金属間化合物）薄板では、微細な柱状結晶が形成されており、そこでの大きな結晶異方性（集合組織）と低エネルギー粒界の存在頻度の高い特異な金属組織形成が確認出来た。そして、この急冷凝固組織では、形状記憶効果の高性能化が確認でき、さらに、著しい耐食性の向上の可能性が明らかになった。

参考文献

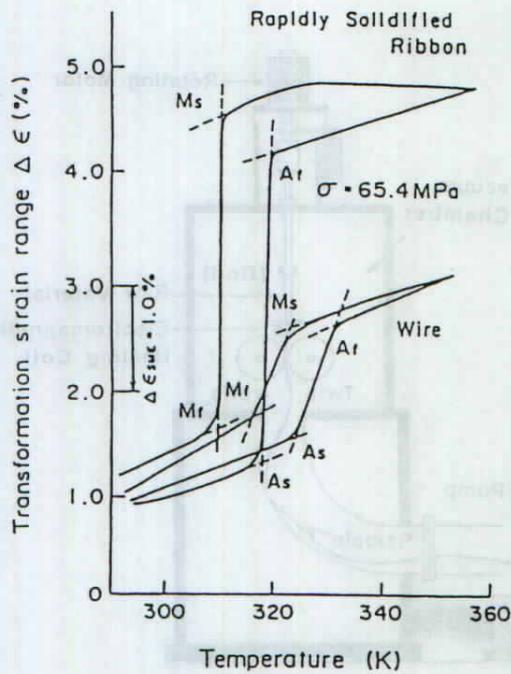
1. 特集 “形状記憶合金とその応用”，日本金属学会会報，24,1(1985)
2. 増本 健：アモルファス金属の基礎、オーム社出版(1982).
3. Y.Furuya, M. Matsumoto, H. Kimura and T. Masumoto: Mater. Sci. Engng., A147, 7-11(1991).
4. Y. Furuya, H. Kimura, M. Matsumoto and T. Masumoto: Proc. Int. Symp. Shape Memory Materials (SMM-94), Beijing, China, 283-288(1994).
5. 古屋 泰文：材料とプロセス、10, 4, pp.831(1997).
6. Y. Furuya: Proc. Japan-France Seminar on Intelligent Material and Structures, (October 27-28, 1997, Sendai) , pp.113-122.
7. T.Watanabe: Res Mechanica, 11, 47-53(1984).
8. 古屋 泰文：第7回インテリジェント材料シンポジウム講演要旨集，pp.18-20(1998).
9. Y.Furuya: Abstract Booklet of the ICAT 24 Smart Actuator Symposium(April 20-21,1998, Penn. State University, PA,USA), pp.6.
10. Y. Furuya, N.W. Hagood, H.M. Kimura, T. Watanabe and J. Tani: Proc. 9th Inter. Conf. Adaptive Structure and Technology, (edited by N.Hagood and M.Allata (Oct.14-16, Boston, Masachussetts), pp.271-280.

表(3-2).1 センサ・アクチュエータ材料要素への材料学的課題

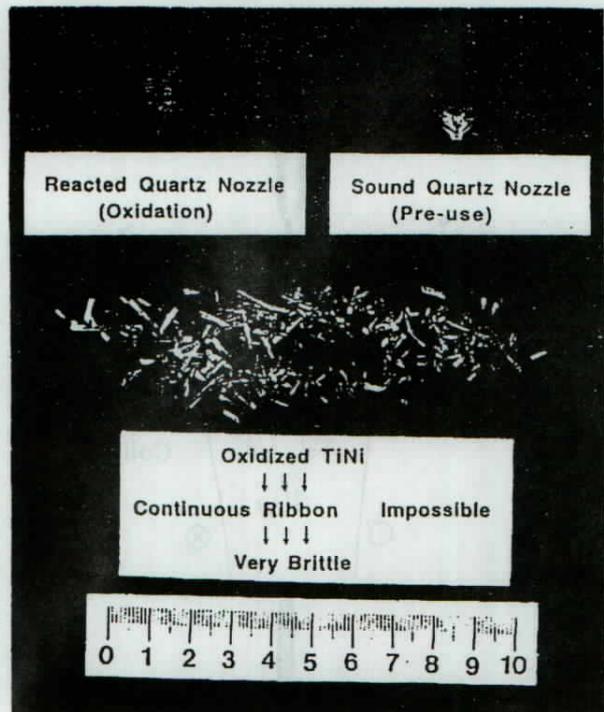
<p>(I) 改善すべき問題点</p> <ul style="list-style-type: none"> ○変態ひずみ (応力) 量 大 ○相変態時の “エネルギー変換効率” 大 ○変態ヒステリシス特性 変数に敏感、安定 ○応答性 (周波数応答特性) ○繰り返し耐久性 大 (機能劣化少ない) ○バルク、ファイバ、薄膜化 加工可能 ○耐環境性 (耐腐食性など) 必要 <p>↓↓↓</p> <p>(II) 対策→①<<高性能新素材開発→組成組織制御>> ②<<革新的な材料プロセッシング採用>> ③<<合目的材料加工技術の開発>>など</p> <p>↓↓↓</p> <p>(III) 技術展開の方向性</p> <ul style="list-style-type: none"> ◎高性能化、迅速加工、低コスト化 <p style="text-align: center;">→→国際競争力維持</p>



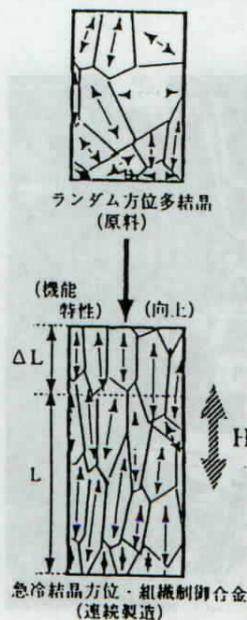
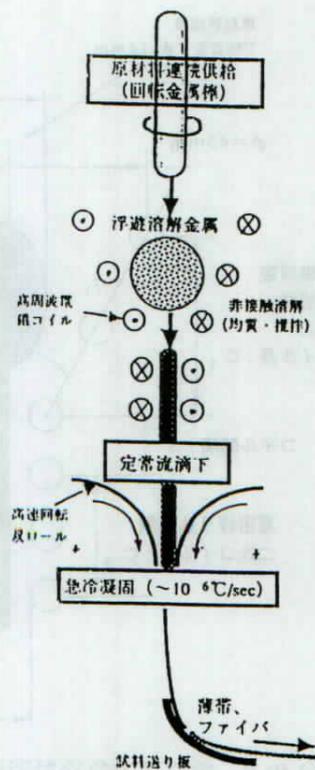
図(3-2).1 単ロール液体急冷凝固法での冷却速度 (ロール速度) に伴う金属微視組織の変化を示す模式図



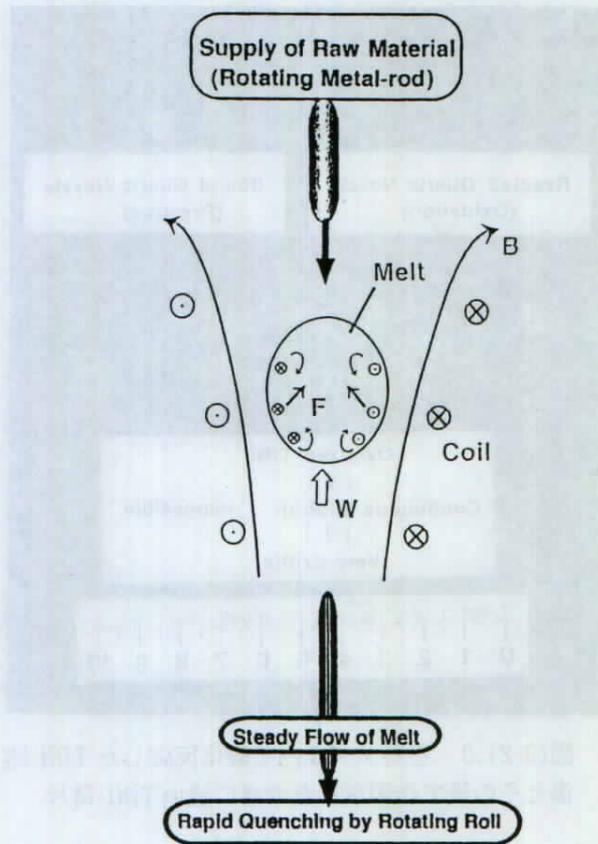
図(3-2).2 急冷凝固 Ti50Ni40Cu10(at%)合金薄帯で得られた大きな形状記憶変態歪みの一例 (従来の熔解加工材との比較で示す。)



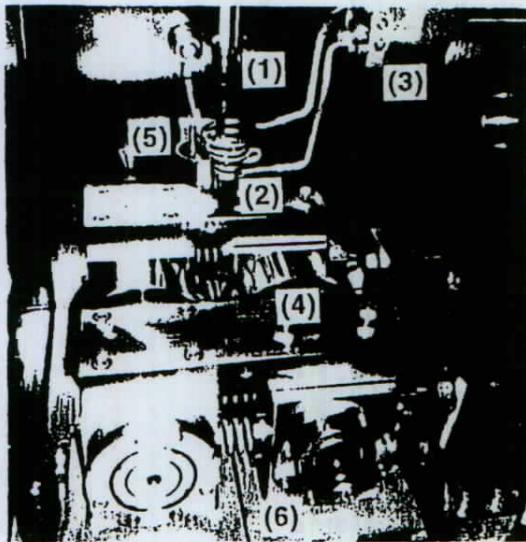
図(3-2).3 石英ノズル内で酸化反応した TiNi 熔湯とその後で作製された非常に脆い TiNi 薄片



図(3-2).4 電磁浮遊急冷凝固法の概念図

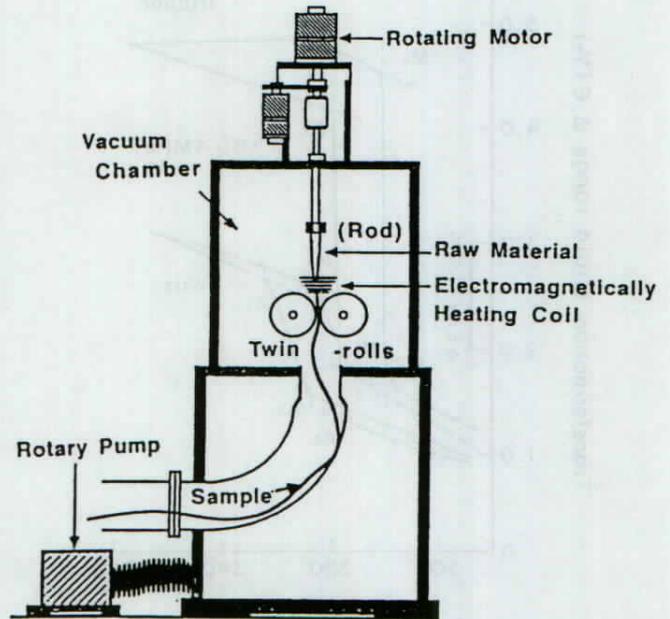


図(3-2).5 電磁浮遊急凝固法における最適化制御部

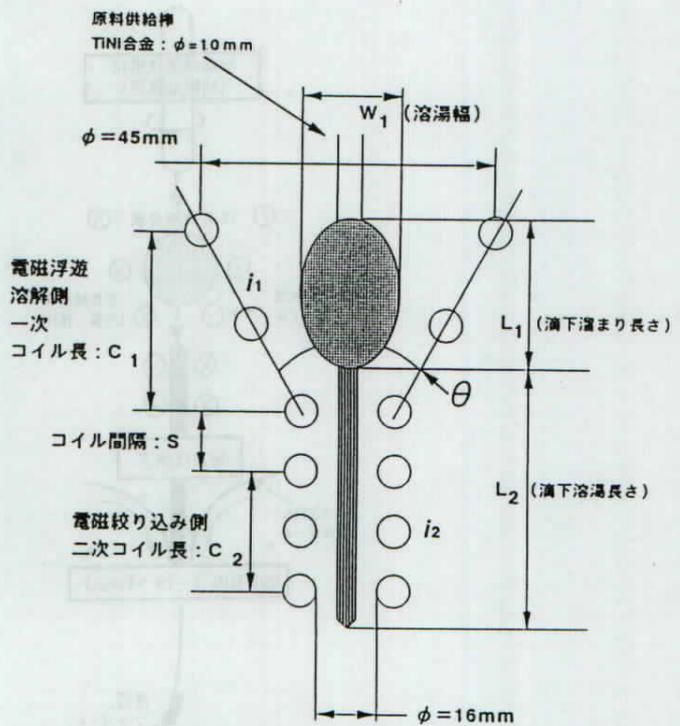


- (1) Raw Material
- (2) High Freq. Magnetic Coil (Rotation)
- (3) Electrodes
- (4) Rotating Twin Roll
- (5) Melt Holder
- (6) Roll-base Stand

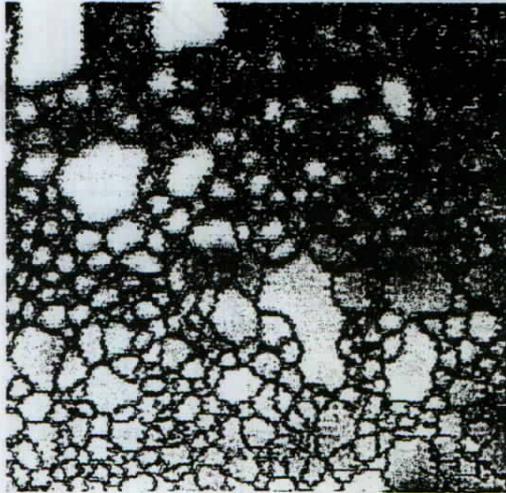
図(3-2).7 本体内部 (チャンバー) の電磁浮遊溶解、連続的滴下溶湯制御および回転双ロールにわたる部分の写真



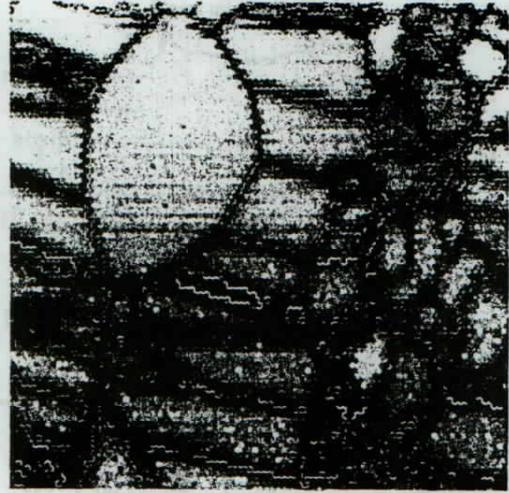
図(3-2).6 試作した電磁浮遊ノズルレス急凝固装置の本体装置の概略図



図(3-2).8 電磁浮遊急凝固法における制御パラメータ

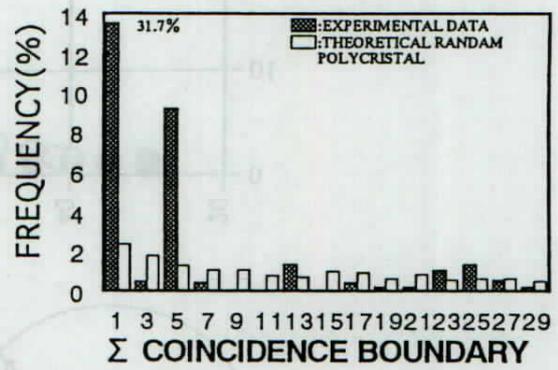
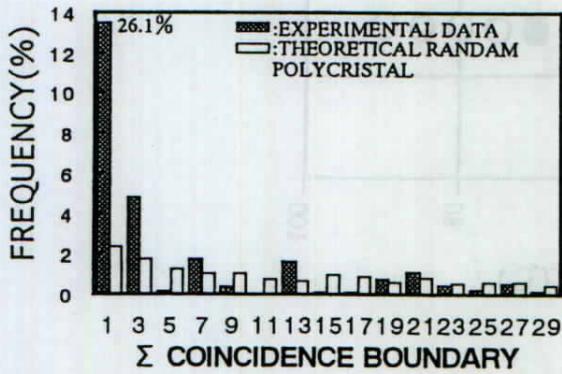


100 μm

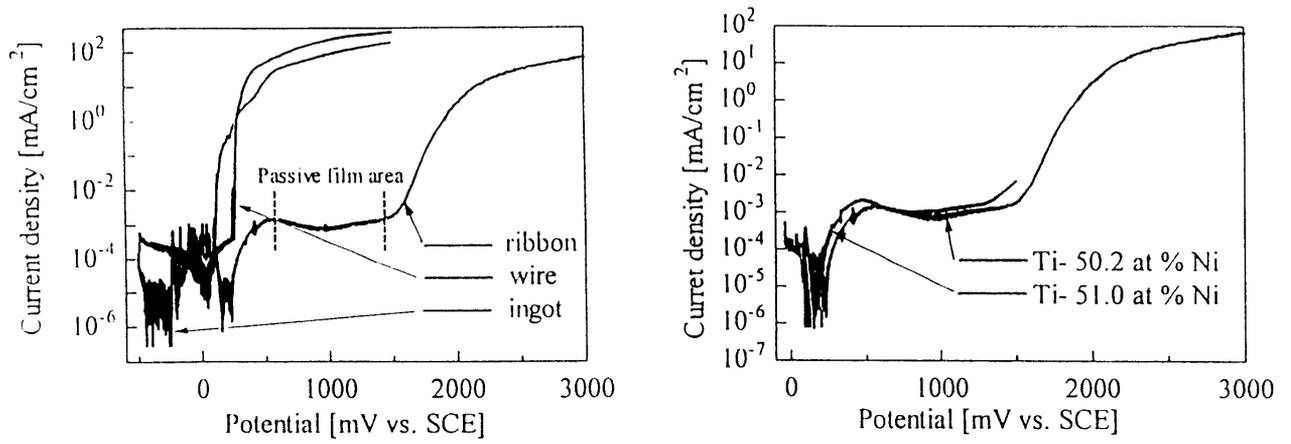


5 μm

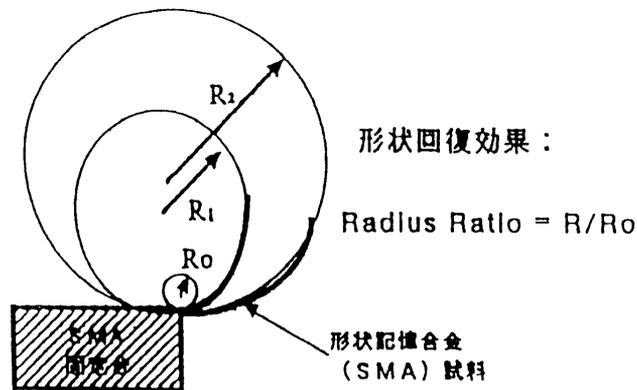
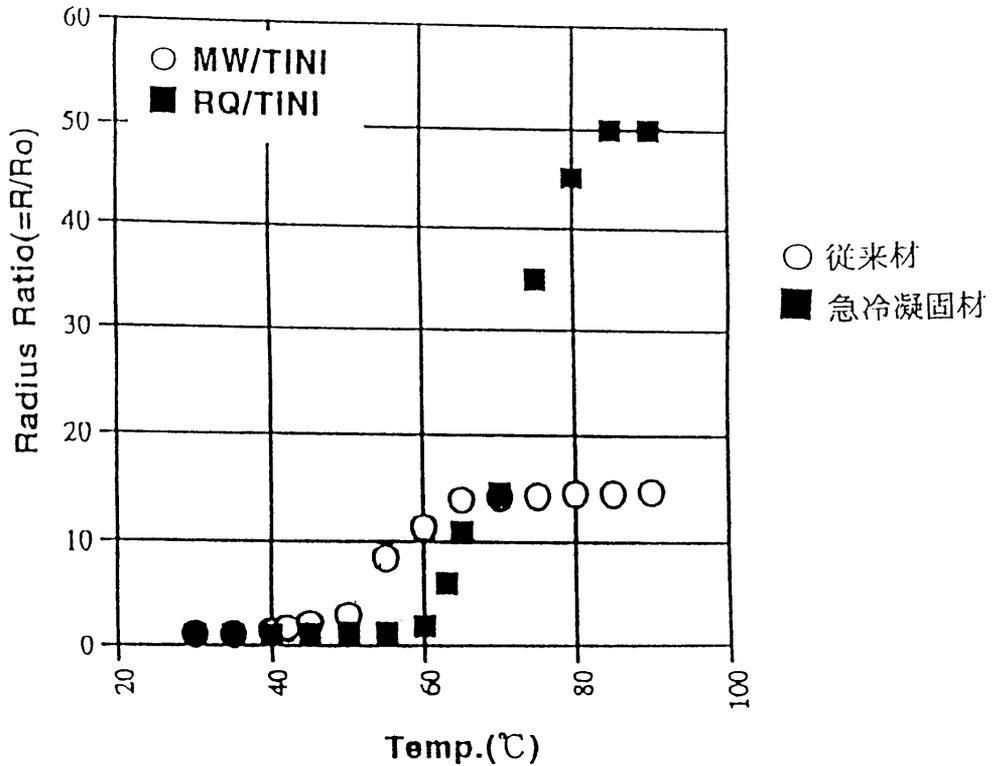
图(3-2).9 晶界性格形态图



图(3-2).10 晶界性格分布



図(3-2).11 腐食特性試験結果



図(3-2).12 形状回復特性試験結果

(3-3) 磁性形状記憶合金アクチュエータの開発

(a) 合金組成制御技術

Ni_2MnGa の特性の合金組成による変化を調べるために化学量論組成 (Ni_2MnGa) 及び非化学量論組成 ($\text{Ni}_{2-x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$) の試料を作製した。

試料の原料にはトーキン物産より購入した電解ニッケル、電解マンガン、ガリウム粒をそれぞれ必要量に応じて秤量を行い、アーク溶解炉により溶解混合、冷却を行った。アーク溶解後、組成の均一化と規則格子合金形成のために熱処理を行っている。具体的な熱処理の過程は、表面の酸化防止のために石英管に真空封入された試料を電気炉において1100 K で9日間保持した後、氷水中に焼き入れを行った。熱処理を施した合金の均一化と規則格子合金形成の度合いについて十分な効果が現れていることがX線回折によって確認された。熱処理の温度と保持する時間については試行の後に最適なものを採用している。

作成した試料の組成について EPMA (Electron Probe Micro Analyzer) を用いて分析した結果を表 (3-3).1 に示した。表(3-3).1 で示された結果では Ga が一様に秤量値 25.0 at% より少ない値を示しているが、測定 of 補正に使用する標準物質が異なるために生じる避けられない誤差である。ここでは、試料が溶解時に組成のずれを生じないことを定性的に明らかにした。

結晶構造の確認は粉末ディフракトメーターを用いたX線回折により室温で行った。この測定法では、粉末化した試料に単色化されたX線を照射したときに見られる回折線を散乱角の関数として測定するもので、Ni の組成によって正方晶、立方晶の2つの結晶構造が確認された。図 (3-3).1 に Ni_2MnGa (立方晶)、図 (3-3).2 に $\text{Ni}_{2.14}\text{Mn}_{0.86}\text{Ga}$ (正方晶) のそれぞれの組成の試料についてX線回折図形を示した。

この2つの結晶構造はそれぞれ相転移前と後の組成に対応しており、組成を変化させることによって相変態を起こす温度が変化していることも同時に示している。

作製した試料の各元素の混合状態の確認と熱処理による結晶粒形を確認するために、顕微鏡による研磨表面の観察を行った。熱処理前の写真では結晶の部位によって明瞭な結晶粒の違いが見られている。結晶の中央部では冷却の方向に結晶が成長するために柱状の結晶粒が見られるが、端部では急速に周囲から冷却が起こっているために結晶粒が球状になることが示されている。熱処理をした後では結晶粒の成長が見られると同時に、マルテンサイト相を示す兄弟相の割合が大きくなっている組成も見られた。これらのことから、試料は溶解時に均一に混合されており、その後の熱処理によって結晶粒が大きく成長していることが確認された。

このことから均一な $\text{Ni}_{2-x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$ 合金の作成技術が可能になった。

(b) 薄膜製造技術

(b-1) ターゲット成分の違いによる生成薄膜成分制御条件の検討

高周波マグネットスパッタリング装置を用い、ターゲット成分と生成薄膜成分の関係を明らかにした。

Ni₂MnGa の薄膜は高周波マグネットスパッタリング装置を用い、高周波電力を変化させてガラス基板または銅基板上に約 1 μm の膜厚まで成膜させた。ターゲットには成分組成の異なる 3 種類のものを用いている。ターゲットの化学組成を表 (3-3). 2 に示す。得られた膜厚の測定には触針式膜厚計を、組成分析には ICP 発光分析装置を、構造解析には X 線回折を用いた。

薄膜の成膜速度は高周波電力の増加に伴って大きくなり、得られた薄膜の組成は高周波電力によらずターゲットの組成によって Ni 含有量に違いが見られた。また、高周波電力の増加に伴い、Ni 及び Mn の組成は単調に減少し、これに伴って Ga の組成が増加した。これは、それぞれの元素において高周波電力に対するスパッタリング効率の変化の程度が異なるためであると考えている。一方、高周波電力を一定として基板温度を変化させた場合にはターゲットの違いによる変化は見られなかった。以上のことから、薄膜の化学組成は高周波電力を変化させることにより制御できることがわかった。

得られた薄膜はスパッタリングしたままの状態立方晶の結晶構造を示しており、薄膜の縦断面の走査電子顕微鏡組織観察では結晶粒が基板に垂直方向に伸びた柱状組織が確認された。

これにより、薄膜の化学組成の制御技術を得た。

(b-2) 示差走査熱量測定

示差走査熱量測定 (Differential Scanning Calorimetry, DSC) によって薄膜試料においてもマルテンサイト変態に伴う変態点を確認した。

図 (3-3). 3 に Ni_{2.17}MnGa ターゲットによって得られた薄膜の DSC 曲線を示した。(a) は冷却過程、(b) は加熱過程である。マルテンサイト変態に起因する冷却過程の発熱ピークと加熱過程の吸熱ピークが現れ、この曲線からマルテンサイト変態開始点 M_s、終了点 M_f、逆変態開始点 A_s、終了点 A_f を求めることができる。

変態点を確認された薄膜では熱処理時間の増加により変態点が上昇することが明らかになった。熱処理時間に伴う変態温度の相違は、高温相の安定化の度合いに起因するものと理解できる。高温相の安定化の要因は主として原子の規則化と材料内の応力状態が互いに影響しあうことによるものと考えられるが、特に後者は基盤上に成膜された薄膜に作用する圧縮応力を示した薄膜特有の要因である。

薄膜とバルク材の変態点を比較すると、変態点の値はバルク材とほぼ同様な値を示し、熱処理時間の増加に伴い規則度が増すことによって変態点の値がバルク材に近づく傾向があることが示された。

(b-3) 磁化測定

薄膜の磁氣的性質は加熱過程においてマルテンサイト変態に伴う急激な磁化の上昇が起こり、低温相（正方晶）の結晶磁気異方性を示すことが磁化測定から明らかになった。薄膜による磁化測定の結果を化学量論組成のバルク材の結果と比較すると薄膜はバルク材に比べて磁化しやすいが飽和磁化は若干小さいという特徴を示している。また、薄膜に対する磁気異方性はバルク材で見られる結晶磁気異方性とは異なり、磁化の方向が膜に垂直な方向であるか、膜に平行な方向であるかの違いによって生じる形状磁気異方性によるものではないかと示唆する結果も示されている。

図 (3-3).4 に $\text{Ni}_{2.00}\text{MnGa}$ ターゲットによって得られた薄膜について、印加磁場の方向を膜に平行、垂直にしたものについて加熱過程における磁化の温度依存性を示した。磁場を膜面と垂直にした場合には磁化は飽和せず膜厚方向には磁化されにくいことを示している。

これによってマルテンサイト変態を起こす薄膜の作製が可能になった。

(c) 合金組成と特性の関係

(c-1) 示差走査熱量

(a-1) で作製した合金の変態温度の組成依存性を示差走査熱量測定によって明らかにした。Ni の量によって変態温度は変化し、変態温度が室温以下から室温以上にまで連続的に変化することが示された。

$\text{Ni}_{2.10}\text{Mn}_{0.90}\text{Ga}$ について行った熱量測定の結果を図 (3-3).5、図 (3-3).6 に示す。図 (3-3).5 は冷却過程の DSC 曲線、図 (3-3).6 は加熱過程の測定結果である。薄膜における DSC 曲線と異なり発熱（吸熱）ピークのほかに磁気転移点を示す小さなピークが確認されるが、これは薄膜の磁気測定で示されているバルク材と薄膜の磁気特性の違いとして理解できる。

図 (3-3).7 に $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$ の変態点の組成依存性を示した。Ni 量の増加によって相変態温度は上昇し、磁気変態温度が低下することを示している。

(c-2) 磁化

磁気変態の Ni 依存性は低磁場帯磁率の温度変化を低温から高温まで連続して測定することによって調べられた。非化学量論組成の測定によれば磁化の温度変化の過程では変化の挙動そのものに変化はなく、Ni 量の増加に伴って相変態温度は上昇し、磁気変態温度は低下することが確認された。図 (3-3).8 に $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$ の帯磁率の温度変化の組成依存性を示した。非化学量論組成の材料についても化学量論組成のものと同様の磁気特性を持っていることが示されている。

飽和磁化の組成依存性はそれほど大きくなく、結晶変態点と磁気転移点を制御することによって形状記憶効果の発現を制御することが可能であることが示された。

この様に変態温度と磁気転移温度の組成依存性を定量化することによって、生活環境温

度での結晶変態の実現の指針を得た。

(d)磁気特性・材料特性改善技術研究

(d-1) 熱機械的特性

機械的特性の評価では、三点曲げ試験によるヤング率の温度依存性、圧縮試験による形状記憶効果の確認を行った。ヤング率については相変態によるヤング率の変化を定性的に評価し、熱による形状記憶効果を確認した。

つぎに本年度購入した動弾性率測定装置のこれまでの成果について述べる。

はじめに、装置の測定原理について簡単に記す。動弾性率測定装置はセンサーから発せられたパルス超音波の縦波と横波の伝搬速度及び縦波、横波の対数減衰率を測定することにより、縦波音速、横波音速、ヤング率等の物理的特性を同時に測定することが可能な装置である。一般に金属やセラミックスなどの固体材料では、材料の持つ機械的性質は弾性率や内部磨耗、デバイ温度に著しく影響される。これらのうち、力学特性の把握は実用上重要であり、特に弾性あるいは力学的特性が直接的に材料機能に関わる本研究ではそれらの評価が実用化を決定する。光学的測定や電子スピン共鳴の測定などの絶縁体や半導体の物性評価に使われる手法が金属に利用できない中で、動弾性定数測定は基本的に原子間あるいは原子面間ポテンシャルを反映する基礎物理量であり、金属の物性評価の有力な評価法である。

現在は装置の特性評価に取り組んでおり、形状記憶効果を示す典型的な物質であるTiNi合金を用いた測定によってマルテンサイト変態に伴う縦波音速、横波音速、ヤング率等の温度変化を示す結果を得ている。図(3-3).9、図(3-3).10に一例としてTiNi合金の縦波音速、横波音速、ヤング率の測定結果を示す。これらのデータの蓄積はNi-Mn-Ga系形状記憶合金における形状記憶効果の評価の際に必要なものであり、今後はNi-Mn-Ga系合金の試料評価を随時行ってゆく。

(d-2) 電磁的特性

圧縮による残留歪みを持たせた非化学量論組成の合金に磁場を作用させた結果、磁場による歪み量の変化が磁歪の変化量よりも大きいことが示された。ここでは、強磁場下ではあるが磁場誘起形状記憶効果が確認された。

これにより形状回復現象の磁場制御の指針を得た。

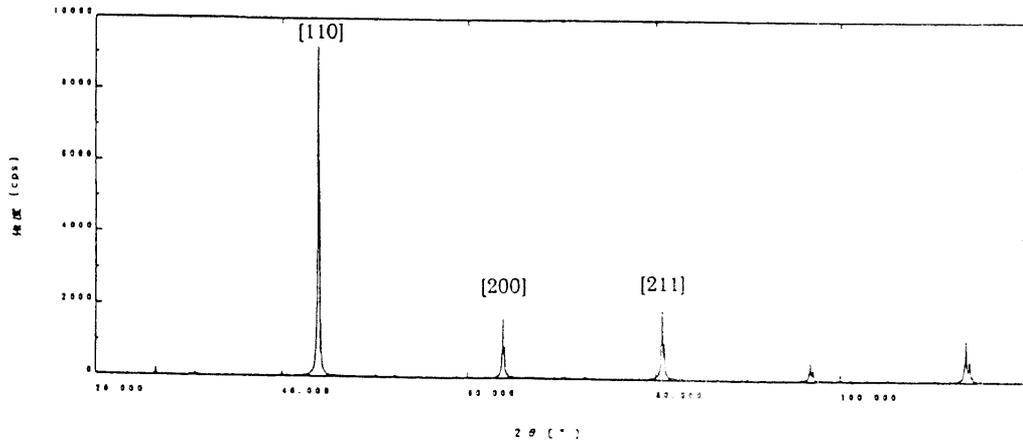


図 (3-3).1 X線回折スペクトル (Ni_2MnGa)

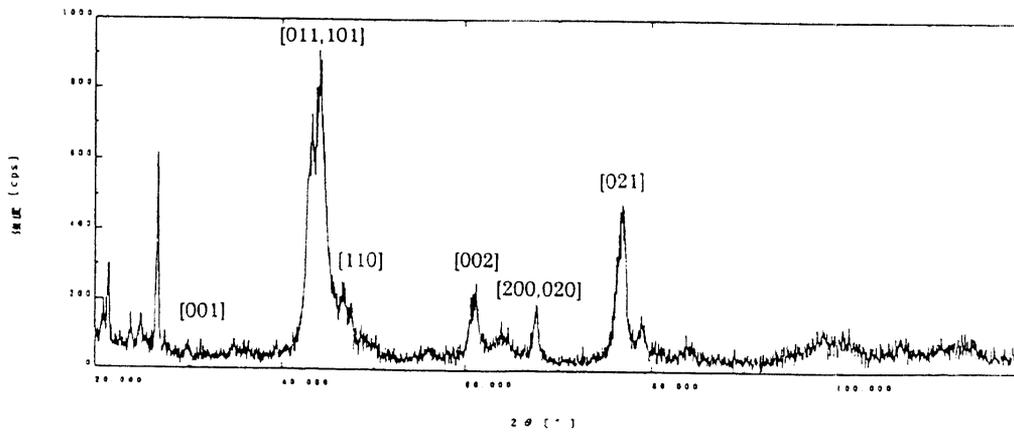


図 (3-3).2 X線回折スペクトル ($\text{Ni}_{2.14}\text{Mn}_{0.86}\text{Ga}$)

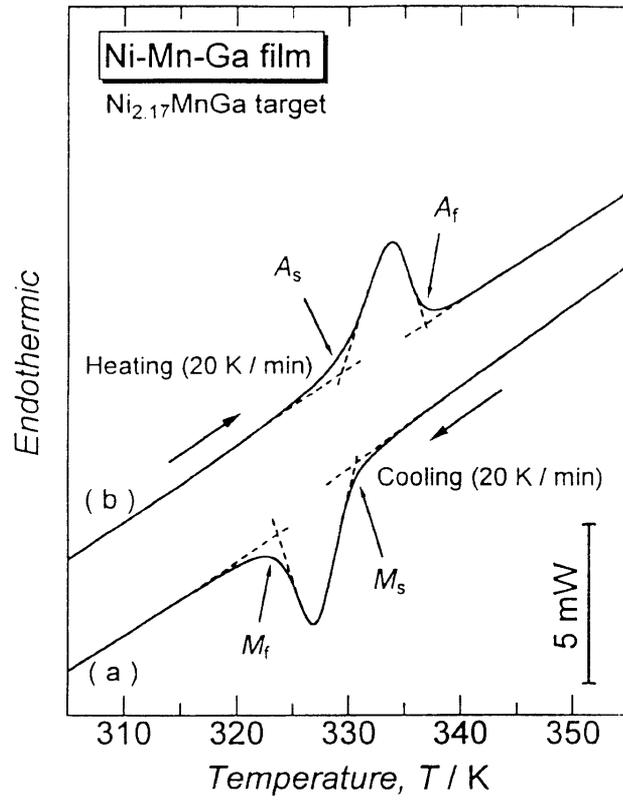


図 (3-3).3 : Ni_{2.17}MnGa ターゲットによって得られた薄膜の DSC 曲線

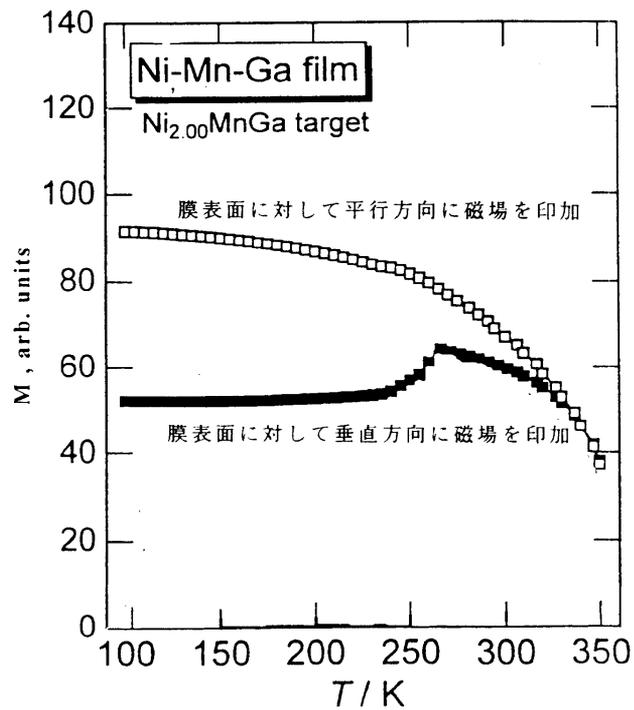


図 (3-3).4 : Ni_{2.00}MnGa ターゲットによって得られた薄膜に厚さ方向に対して平行、垂直に磁場を印加した場合の加熱過程におけるそれぞれの方向の温度—磁化曲線

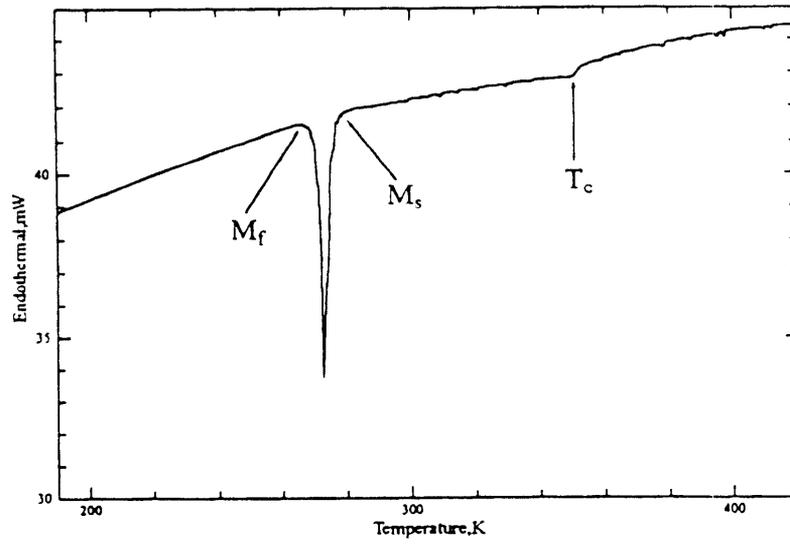


図 (3-3).5 Ni_{2.10}Mn_{0.90}Ga の DSC 曲線 (冷却過程、10K/min.)

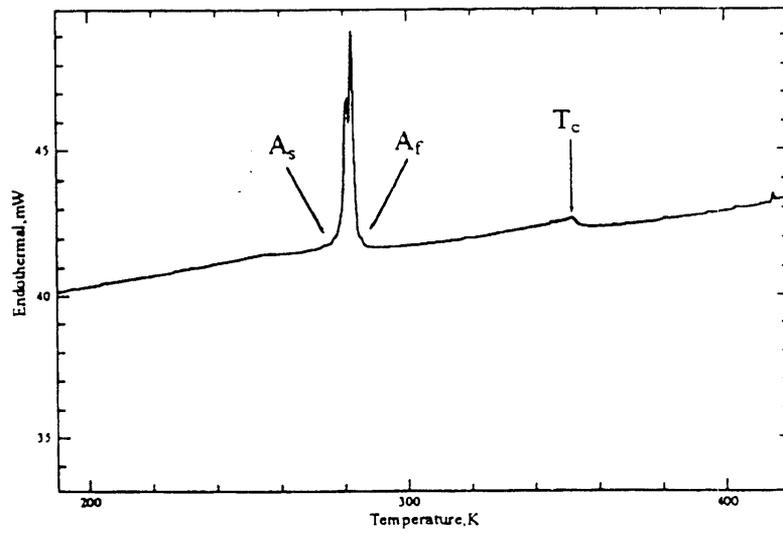


図 (3-3).6 Ni_{2.10}Mn_{0.90}Ga の DSC 曲線 (加熱過程、10K/min.)

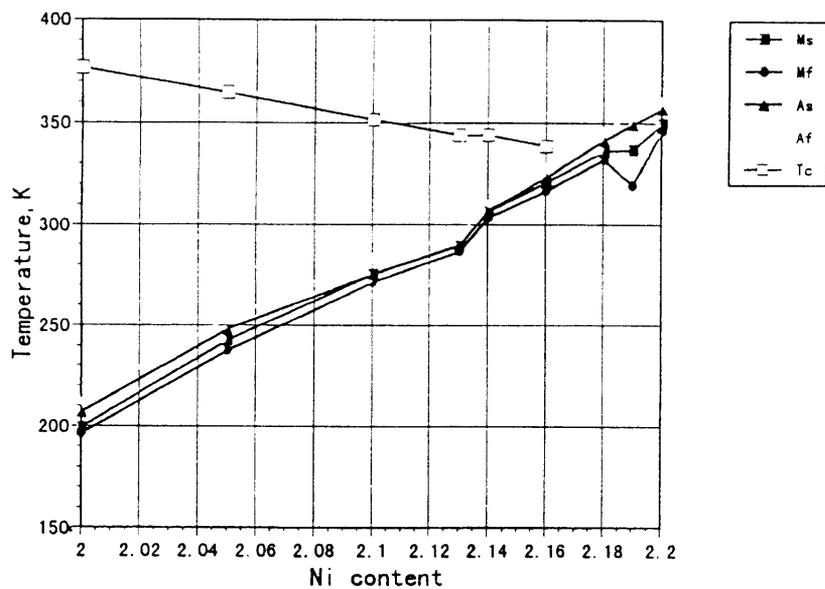


図 (3-3).7 : $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$ の変態点の組成依存性

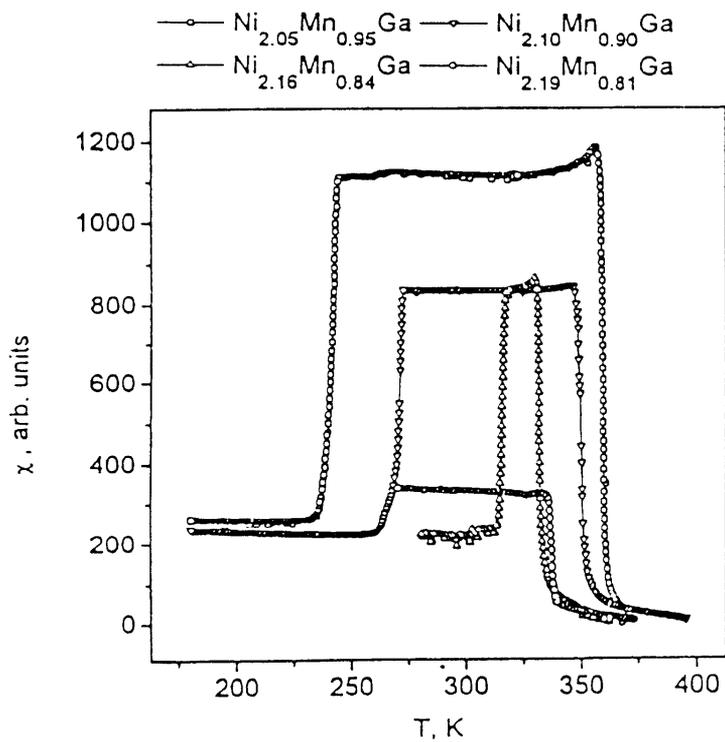


図 (3-3).8 : 帯磁率の温度変化の組成依存性 ($\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$)

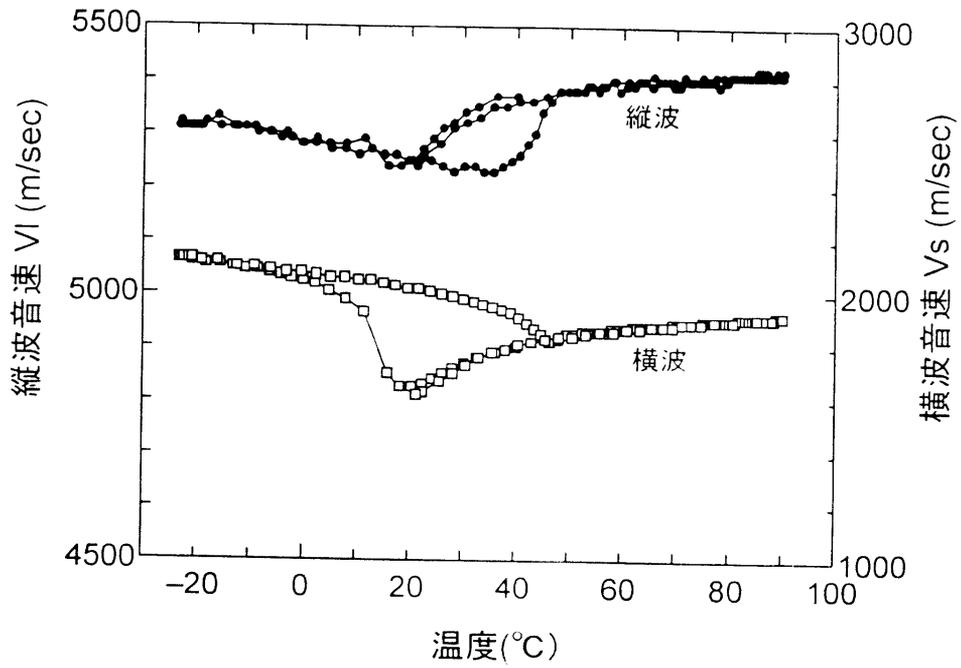


図 (3-3).9 音速の温度依存性 (TiNi)

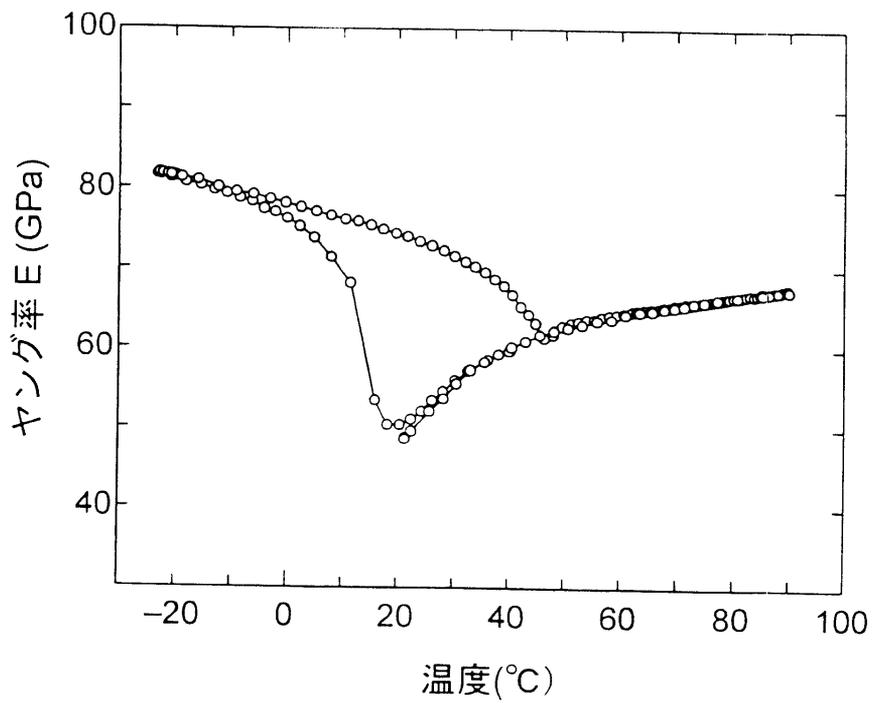


図 (3-3).10 ヤング率の温度依存性 (TiNi)

表 (3-3).1 EPMA による組成分析結果

組成	Ni(at%)	Mn(at%)	Ga(at%)
$\text{Ni}_{2.00}\text{Mn}_{1.00}\text{Ga}$	52.06	25.7	22.25
$\text{Ni}_{2.05}\text{Mn}_{0.95}\text{Ga}$	54.46	23.96	21.59
$\text{Ni}_{2.10}\text{Mn}_{0.90}\text{Ga}$	54.46	22.34	22.20
$\text{Ni}_{2.13}\text{Mn}_{0.87}\text{Ga}$	56.17	22.05	21.78
$\text{Ni}_{2.14}\text{Mn}_{0.86}\text{Ga}$	53.22	24.56	22.22
$\text{Ni}_{2.16}\text{Mn}_{0.84}\text{Ga}$	53.47	24.12	22.41
$\text{Ni}_{2.18}\text{Mn}_{0.82}\text{Ga}$	53.94	23.67	22.39
$\text{Ni}_{2.20}\text{Mn}_{0.80}\text{Ga}$	55.73	22.61	21.66

表 (3-3).2 ターゲットの組成と生成薄膜の組成

薄膜の組成	ターゲットの化学組成		
	Ni(at%)	Mn(at%)	Ga(at%)
$\text{Ni}_{2.17}\text{Mn}_{1.00}\text{Ga}$	52.0	24.0	24.0
$\text{Ni}_{2.00}\text{Mn}_{1.00}\text{Ga}$	50.0	25.0	25.0
$\text{Ni}_{1.85}\text{Mn}_{1.00}\text{Ga}$	48.0	26.0	26.0

1.2 達成状況

1.2.1 セラミックスアクチュエータ

高誘電材料と圧電材料を傾斜機能化することで、形状効果を含むが圧電定数は $d_{33}=3400 \sim 5260 \times 10^{-12}$ (m/V) となり、大きな変位が得られた。継続して、シート化技術を用いて同組成物の 20~100 μm のグリーンシートを作製し、矩形形状のモデル傾斜構造素子の試作中である。

マイクロ波焼結法が高誘電率物質に適用できることは確認できた。今後は、PNN-PZT 系組成物のマイクロ波焼結条件を検討し、高性能化を目指す。特性状態図より傾斜構造作製用組成種を選び、マイクロ波焼結を利用し傾斜構造素子への応用を検討する。

厚さ 20~100 μm のグリーンシートを作製することは出来たが、厚さを 20 μm 以下にするには新しいバインダー技術を取り入れたスラリー調整が必要である。20~100 μm シートを焼成するため従来焼成法のほかにマイクロ波焼結法による検討を計画している。

パイロクロア相の析出を抑制することが問題となるが、基礎段階での PZT 膜の作製技術は確立できた。さらに材料、基板、環境、作製条件等の再現性を向上させることで安定した成膜の作製が可能と考える。PZT 前駆体溶液技術を基に新たに PNN-PZT 系材料の溶液作製を検討する。PZT 前駆体溶液をコア線材へ塗布することを検討中である。

現段階では、省エネルギーの目的で、マイクロ波焼結法を用いて、圧電セラミックスアクチュエータの焼結時間を通常焼結法の焼結時間の半分以下に短縮することができた。一方、傾斜型圧電アクチュエータは同じ駆動電圧で、積層型圧電アクチュエータの数倍の変位を得ることができた。

1.2.2 形状記憶合金型アクチュエータ

平成 10 年度は、電磁浮遊急冷凝固法を開発するとともに、強磁性形状記憶合金の作製を中心として良質の合金を作製する。具体的には、

(1) 感温型形状記憶材料の開発

電磁浮遊ノズルレス急冷凝固法の開発への基礎的実験を行う。特に、浮遊溶解温度、溶解量と通電量、高周波コイル形状の相関性、浮遊溶湯連続滴下量制御への基礎的研究を行う。

急冷凝固特有な材料組織制御（結晶粒度とその方位制御、結晶界面性格分布）の可能性とその特性向上効果の定量的相互関係を明らかにする。

細線、薄膜形状記憶合金での形状記憶効果の耐久性試験・評価装置組立とデータ採取を行い、耐久性評価方法を確立する。

(2) 磁性形状記憶合金材料の開発

「合金組成制御技術開発」では、化学量論組成及び非化学量論組成の均一な合金作製が可能であることを確認した。「薄膜製造技術開発」では、スパッタリング法によってマルテンサイト変態を起こす Ni-Mn-Ga 薄膜の作製が可能になった。

「合金の組成と特性の関係研究」では、変態温度と磁気転移温度の合金組成依存性を示した。「磁気特性・材料特性向上」では、加熱による形状記憶効果と磁場による同効果の合金成分依存性を示した。

1.3 結論

平成10年度に下記の研究成果が得られた。

(1) セラミックスアクチュエータ

傾斜機能化することで大きな変位が得られることを確認した。マイクロ波焼結法による高性能化については、マイクロ波による既存組成物での焼結を試みた。シート化について、シート成型装置導入により20~100 μ mのグリーンシートの作製ができた。線材料について、PZT前駆体の作製技術トレースを完了し、その調整方法の条件確立が出来た。

(2) 形状記憶合金型アクチュエータ

(2-1) 感温型形状記憶合金アクチュエータ

より従来材よりも低エネルギー粒界の頻度が高い材料を製造できる急冷凝固法が形状記憶機能の観点からも大変有効であることも実証された。これにより疲労試験とOIM解析結果から耐久性評価方法の指針は得ることができた。

(2-2) 磁性記憶合金アクチュエータ

Ni₂MnGaの磁氣的・機械的特性が制御可能であることを実証した。また、マルテンサイト変態を起こす薄膜合金を作製し、組成制御の指針を得た。

マイクロ波焼結法を用いて、圧電セラミックスアクチュエータの焼結時間を通常焼結法の焼結時間の半分以下に短縮することができた。一方、傾斜型圧電アクチュエータは同じ駆動電圧で、積層型圧電アクチュエータの数倍の変位を得ることができた。これらの結果から、従来のアクチュエータ素子より省エネルギーが期待できる。

2. 研究発表・講演、特許等の状況

2.1 研究発表・講演

- 1) 王 征, 裘 進浩, 谷 順二, 森田哲平, 阿部利彦, 飯島高志, 孫 正明, 放電プラズマ法で作製したPZTの特性, D&D '99, (1999.3), 500 - 501 頁.
- 2) 松本 實, 高木敏行, 村松夏弘, 谷 順二, 強磁性形状記憶合金の機械的特性, 日本機械学会, 第76期全国大会講演会, O.S.58 知的な構造の機構(10.10.4)
- 3) 高木敏行, 松本 實, 機能性材料の展望 ―形状記憶合金―, 第48回理論応用力学講演会, (11.1.27)
- 4) Zheng Wang, Minoru Matsumoto, Toshihiko Abe, Katsunari Oikawa, Jinhao Qiu, Toshiyuki Takagi and Junji Tani, Characterization of Ni₂MnGa Made by the Plasma Sintering Method, The 4th International Conference on Intelligent Materials, Makuhari, Japan(10.10.5).

- 5) A.N. Vasil'ev, A.D. Bozhko, V.V. Khovailo, I.E. Dikshtein, V.G. Shavrov, V.D. Buchelnikov, M. Matsumoto, S. Suzuki, T. Takagi and J. Tani, Structural and Magnetic Phase Transitions in Shape Memory Alloys $Ni_{2-x}Mn_{1-x}Ga$, The 2nd International Workshop on Intelligent Fluid and Material Systems, Sendai, Japan(10.10.8)
- 6) Zheng Wang, Minoru Matsumoto, Toshihiko Abe, Katsunari Oikawa, Jinhao Qiu, Toshiyuki Takagi and Junji Tani, Developing $Ni_{2-x}Mn_{1-x}Ga$ Shape Memory Alloys for Smart Materials, The 2nd International Workshop on Intelligent Fluid and Material Systems, Sendai, Japan(10.10.8)
- 7) Minoru Matsumoto, Toshiyuki Takagi, Junji Tani, Takeshi Kanomata, Natsuhiko Muramatsu and Alexander N. Vasil'ev, Phase Transformation of Heusler Type $Ni_{2-x}Mn_{1-x}Ga$ ($x = 0 \sim 0.19$), International Conference on Martensitic Transformations (ICOMAT'98), San Carlos de Bariloche, Argentina(10.12.7).
- 8) Minoru Matsumoto, Shape Memory Alloy, Seminar of Department of Materials Engineering, University of Campinas, Campinas, Brazil(10.12.14).
- 9) Minoru Matsumoto, Shape Memory Alloy and Its Application, Seminar of Department of Mechanical Engineering, University of San Paulo, San Paulo, Brazil(10.12.17)

2.2 文献

- 1) D. J. Warkentin and J. Tani, RAINBOW Actuators for Acoustic Control: The Active Wall Concept, Proc. of the 8th Int. Conf. On Adapt. Struct. And Tech., (1999), Technomic Publishing Company, pp. 195 - 203.
- 2) G. R. Liu, Y. Zhou, K. Y. Lam, X. Q. Peng and J. Tani, Finite Element Modeling of Piezoelectric Sensors and Actuators Bonded in Thick Composite Laminates, Proc. of the 8th Int. Conf. On Adapt. Struct. And Tech., (1999), Technomic Publishing Company, pp. 195 - 203.
- 3) 高木敏行, 谷 順二, 鈴木俊次, 松本 實, 全方位形状記憶合金板の電磁・熱・機械的特性の評価, 日本機械学会論文集 (C編), 64 (1998), 2966-2973.
- 4) Wang Zheng, Minoru Matsumoto, Toshihiko Abe, Katsunari Oikawa, Jinhao Qiu, Toshiyuki Takagi and Junji Tani, Characterization of Ni_2MnGa Made by the Plasma Sintering Method, Proc. Fourth Inter. Conf. Intelligent Materials, Makuhari, (1998), 84-85.
- 5) M. Matsumoto, T. Kanomata, T. Kaneko, T. Takagi and J. Tani, Magnetic Property of Ni_2MnGa , J. Magn. Soc. Japan, 23 (1999) 415-417.
- 6) N. Perov, A. Vasil'ev, M. Matsumoto, T. Takagi and Junji Tani, Magnetic Properties of $Ni_{2-x}Mn_{1-x}Ga$ (shape memory alloys), J. Magn. Soc. Japan, 23 (1999) 626-627.
- 7) A.N. Vasil'ev, A.D. Bozhko, V.Khovailo, I.E. Dikshtein, V.G. Shavrov, V.D. Buchelnikov, M.

- Matsumoto, S. Suzuki, T. Takagi and J. Tani, Structural and Magnetic Phase Transitions in Shape-memory Alloys $Ni_{2+x}Mn_{1-x}Ga$, Physical Review B, 59 (1999) 1113-1120.
- 8) Yasubumi Furuya, Akiora Shimamoto and Minoru Taya, "Design and Fabrication of Intelligent Shape Memory Composites --Reduction of Stress Intensity KI in TiNi Fiber Reinforced Epoxy Matrix Composite---", Proceedings of the fourth International Conference on Intelligent Materials (ICIM'98), ed. Toshinori Takagi, Masuo Aizawa, Teruo Okano and Norio Shinya, (1998) 56-57.
- 9) Yasubumi Furuya, "New Types of Shape Memory Alloys Developed by Electromagnetic Nozzleless Melt-spinning Method", Proceedings of the fourth International Conference on Intelligent Materials (ICIM'98), ed. Toshinori Takagi, Masuo Aizawa, Teruo Okano and Norio Shinya, (1998) 98-99.
- 10) Yasubumi Furuya, Tadao Watanabe, Nesbitt W. Hagood, Hisamichi Kimura and Junji Tani, "Giant Magnetostriction of Ferromagnetic Shape Memory Fe-Pd Alloy Produced by Electromagnetic Nozzleless Melt-Spinning Method ", Ninth International Conference on Adaptive Structures and Technologies, ed. Nesbitt W. Hagood IV and Mauro J. Atalla, (1998) 271-280.

2.3 特許等

該当なし

2.4 その他の公表（プレス発表等）

該当なし

(3-4) 新アクチュエータ材料の研究開発

(再委託先：ワシントン大学)

1.序

ワシントン大学は複合材料あるいは複合材料の構造物に、リアルタイムで騒音・振動制御等の機能を付与するための新アクチュエータ材料の研究開発を行う事が目的であるが、第1年度の成果は以下に述べる通りである。

2.研究開発の成果

(1)傾斜圧電素子

階層モデルはマイクロレベルとマクロレベルの2つがあり、これらを用いて与えられた印加電圧(V)に対して最大の曲げ変位(δ)を得るようにFGMの各層マイクロ構造(圧電セラミック、ポリマーの分率など)を決定する。マイクロモデルは1993年にDunnとTayaが提案したEshelbyモデルを用いてFGM各層の弾性(c_{ij})、圧電定数(d_{ij} 又は e_{ij})そして誘電定数(ϵ_{ij})を計算する。初年度はまずマイクロモデルを用いて各FGM層の物性値を求める。一方、実験に関しては、初年度は主に圧電セラミック/ポリマーコンポジット用の装置の購入(脱脂炉、焼結炉)とその購入後の調整を行う。未だ炉が納入されていないので、プロセスの実験は行っていない。

理論モデル(単純ラミネートモデル)

単純ラミネートモデルを傾斜圧電素子に適用すると考える、Fig.1(a)。ここでは一応圧電係数(e)と弾性係数(c)を線型に板厚方向へ変化すると仮定する、Fig1(b)。

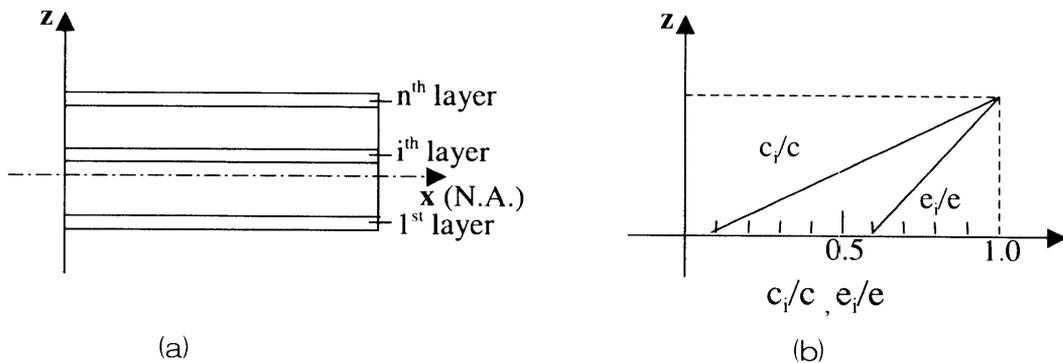


Fig.1 ラミネートモデル (a)傾斜圧電板 (b)線型傾斜

i番目のFGM層の圧電/弾性構成方程式は

$$\underline{\sigma} = \underline{c} \cdot \underline{S} - \underline{e} \cdot \underline{E} \quad (1)$$

ここで、 $\underline{\sigma}$ 、 \underline{S} 、 \underline{E} は、それぞれ応力、歪、電界とする。

$$\underline{\underline{\sigma}} = \begin{Bmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \sigma_z \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{xz} \\ \sigma_{xy} \end{Bmatrix}, \quad \underline{\underline{S}} = \begin{Bmatrix} S_x \\ S_y \\ S_z \\ 2S_{yz} \\ 2S_{xz} \\ 2S_{xy} \end{Bmatrix}, \quad \underline{\underline{E}} = \begin{Bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{Bmatrix} \quad (2)$$

$$\underline{\underline{c}} = [c] = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & & & \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & & & \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & & & \\ & & & C_{44} & & \\ & & & & C_{44} & \\ & & & & & C_{66} \end{bmatrix} \quad (3a)$$

$$\text{ここで、} C_{66} = \frac{1}{2}(C_{11} - C_{12}) \quad (3b)$$

$$\underline{\underline{e}} = [e] = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (4)$$

変位場を x 方向、y 方向、z 方向にそれぞれ u、v、w として次式で与えるとする。

$$u(x,y) = u_0(x,y) + z \zeta(x,y)$$

$$v(x,y) = v_0(x,y) + z \eta(x,y) \quad (5)$$

$$w(x,y) = w(x,y)$$

これより極率 k (k_x , k_y , k_{xy}) は次式で与えられる。

$$S_x = S_x^0 + z k_x$$

$$S_y = S_y^0 + z k_y$$

$$2S_{xy} = 2S_{xy}^0 + z 2k_{xy} \quad (6)$$

ここで “ 0 ” は板中央部での値とする。

面内の構成方程式は次式で与えられる。

$$\begin{Bmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \sigma_{xy} \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & 0 \\ C_{12} & C_{11} & 0 \\ 0 & 0 & C_{66} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} S_x - \alpha_{11} \Delta T \\ S_y - \alpha_{11} \Delta T \\ 2S_{xy} \end{Bmatrix} - \begin{bmatrix} 0 & 0 & e_{31} \\ 0 & 0 & e_{31} \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{Bmatrix} \quad (7)$$

面内力と (N_x, N_y, N_{xy}) 面内曲げモーメント (M_x, M_y, M_{xy}) は次式で定義される。

$$\{N\} = \begin{Bmatrix} N_x \\ N_y \\ N_{xy} \end{Bmatrix} = \sum_{i=1}^n \int_{h_{i-1}}^{h_i} \begin{Bmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \sigma_{xy} \end{Bmatrix} dz \quad (8a)$$

$$\{M\} = \begin{Bmatrix} M_x \\ M_y \\ M_{xy} \end{Bmatrix} = \sum_{i=1}^n \int_{h_{i-1}}^{h_i} \begin{Bmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \sigma_{xy} \end{Bmatrix} z dz \quad (8b)$$

ここで h_i は i 番目の層の板厚とする。

(1)、(2)式を(8)式に代入して、板としての構成式が与えられる。

$$\{N\} = [A]\{S^0\} + [B]\{k\} - [N]^T\theta - [N]^E\{E\} \quad (9a)$$

$$\{M\} = [B]\{S^0\} + [D]\{k\} - [M]^T\theta - [M]^E\{E\} \quad (9b)$$

従って、(9)式を板中央の歪 $\{S^0\}$ と極率 $\{k\}$ で求めると

$$\{S^0\} = [[B]^{-1}[A] - [D]^{-1}[B]]^{-1} \cdot [[B]^{-1}[N]^E - [D]^{-1}[M]^E] \cdot \{E\} \quad (10)$$

$$\{k\} = [[A]^{-1}[B] - [B]^{-1}[D]]^{-1} \cdot [[A]^{-1}[N]^E - [B]^{-1}[M]^E] \cdot \{E\} \quad (11)$$

(2-a) 磁性 SMA

磁場をかけ、又は外してマルテンサイト (M) ⇄ オーステナイト (A) 相変態を誘起するのが重要な研究目的であり、初年度は一定応力 (σ) 下で決まった磁場 (H) を磁性 SMA に与えた時その場観察で M あるいは A 相が分かるように装置を設計した。Fig.2 はその装置の写真である。初年度はまずアーク溶解炉を NEDO 研究費で購入している最中である。

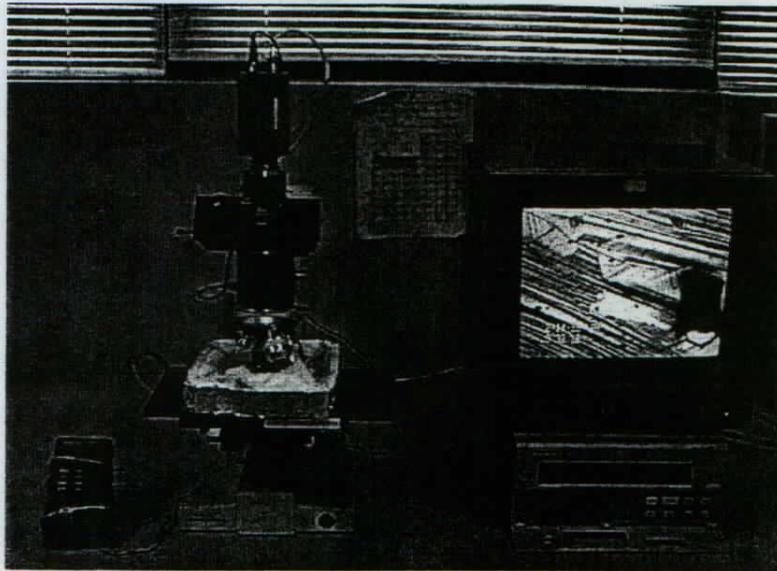


Fig.2 磁性 SMA のその場観察用の装置

(2-b) 高温域 SMA の文献調査

NRL と我々の研究の他、数少ない文献ではあるが、これらをもう一度検討中である。結局、一番有望なものは高温(600~1000°C)の変態温度を持つ R u T a 系のものである。従ってワシントン大学は今後この系を中心に、高温 SMA の研究に関しては井上教授を中心に行う。

(3) 電界応答ポリマーゲル

固定解離基を持つゲルは電界下で変形を起こす事が知られており、一般にアクチュエータ材料としての応用を念頭に置いた正電荷あるいは負電荷どちらか一方の電荷をもつゲルの研究が行われている。しかし、その変形は非対称的であるためワシントン大学では正負両方の電荷を持ったゲル(両性ゲル)を用いる事で電界下における対称変形を示すゲルアクチュエータの開発研究を行った。

階層モデルはミクロレベルとマクロレベルの二つとからなり、ミクロレベルのモデルはさらに二つに細分される。初年度は、円柱状の両性ゲルを想定してまず、Poisson-Boltzmann 方程式を近似的に解く方法を与える。円柱状ゲルの軸方向の電気ポテンシャル $\phi(z)$ は次の Poisson-Boltzmann の式を満たさねばならない。

$$\frac{d^2\phi(z)}{dz^2} = -\frac{\rho(z)}{\epsilon} \quad (1)$$

ここで $\rho(z)$ は電荷密度分布で、両性ゲルの場合は次式で与えられる。 ϵ は水の誘電率($80 \times 8.85 \times 10^{-12} \text{ F m}^{-1}$)である。

$$\rho(z) = q\{[MC](z) - [MA](z) + [IC](z) - [IA](z)\} \quad (2)$$

ここで $q=1.6022 \times 10^{-19} \text{ C}$ 、 $[MC]$ 、 $[MA]$ 、 $[IC]$ 、 $[IA]$ はそれぞれ可動陽イオン、可動陰イオン、固定陽イオン、固定陰イオンの濃度である。これら $[MC]$ 、 $[MA]$ 、 $[IC]$ 、 $[IA]$ はそれぞれ以下の式によって表される。

$$[MC](z) = [S]_w \frac{\exp\left[-\frac{q\phi+L/2}{kT}\right]}{\exp\left[-\frac{q\phi+L/2}{kT}\right] + \exp\left[\frac{q\phi+L/2}{kT}\right]} \exp\left[-\frac{q(\phi(z)-\phi+L/2)}{kT}\right] \quad (3)$$

$$[MA](z) = [S]_w \frac{\exp\left[\frac{q\phi+L/2}{kT}\right]}{\exp\left[-\frac{q\phi+L/2}{kT}\right] + \exp\left[\frac{q\phi+L/2}{kT}\right]} \exp\left[\frac{q(\phi(z)-\phi+L/2)}{kT}\right] \quad (4)$$

$$[IC](z) = \frac{K[FG]}{K+[S]_w \frac{\exp\left[\frac{q\phi+L/2}{kT}\right]}{\exp\left[-\frac{q\phi+L/2}{kT}\right] + \exp\left[\frac{q\phi+L/2}{kT}\right]} \exp\left[\frac{q(\phi(z)-\phi+L/2)}{kT}\right] \quad (5)$$

$$[IA](z) = \frac{K[FG]}{K+[S]_w \frac{\exp\left[-\frac{q\phi+L/2}{kT}\right]}{\exp\left[-\frac{q\phi+L/2}{kT}\right] + \exp\left[\frac{q\phi+L/2}{kT}\right]} \exp\left[\frac{q(\phi(z)-\phi+L/2)}{kT}\right] \quad (6)$$

ここで $[S]_w$ は $z=+L/2$ での全イオン濃度。 k は Boltzmann 定数。 T は絶対温度。 K は固定解離基の解離定数(解離基の種類によらず K の値を取ると仮定)。 $[FG]$ は全固定解離基濃度。これらの式を解く事によりゲル中のイオン分布が分かる。なおゲルと電極に対して定義された座標系は Fig.3 に示す通りである。

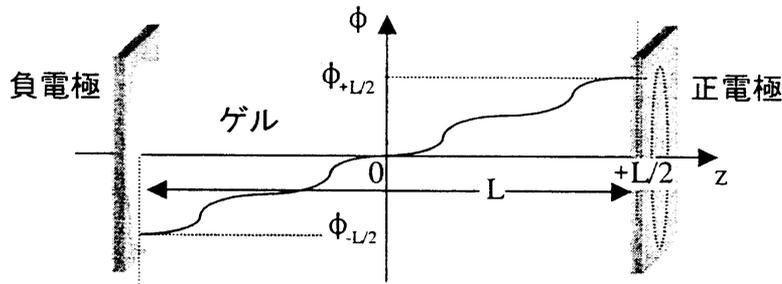
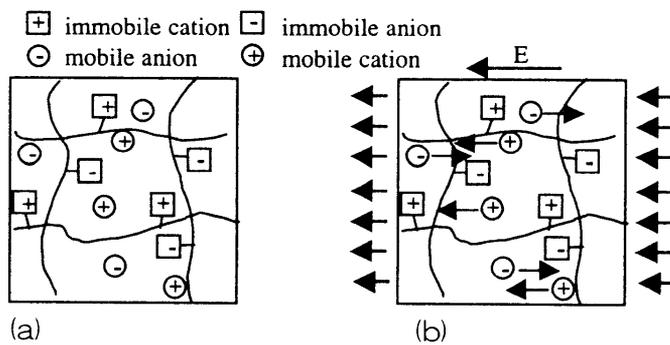


Fig.3 電極に挟まれた円柱状ゲルと座標系

両性ゲル中のこれらのイオンが、電界が掛かった時どのように挙動するかは、Fig.4 に示されている。



(a) (b)
Fig.4 両性ゲル中のイオン群 (a) 電界がかかる前 (b) 掛かった時

ポリマー鎖に固定されている、固定解離基の位置は三次元の円柱型正方晶モデルで近似して計算を進めた。主な計算結果は、イオン濃度は可動イオンの場合、陽イオンは負極付近、陰イオンは正極付近で急激に上昇する事が分かった。固定解離基に関しては、陽イオンを放出する陰イオン性固定基の解離は負極付近で、陰イオンを放出する陽イオン性固定基の解離は正極付近で急激に抑制される事が分かった。これはすなわち可動陽イオンには正極近傍で、可動陰イオンには負極近傍で強く排除される作用が働く事を意味している。これら可動イオンの両電極近傍での排除に伴い、ゲル中に含まれる水分子も強く排除され、電極近傍においてゲルの大きな収縮が誘発される事になると考えられる。つまり、ゲルの大きな歪変化は主に電極付近に生ずる。これより両電極間の距離を短くする事により、アクチュエータのスピードを増す事が出来る。上記の理論モデルの結果に基づいて $\text{CH}_2=\text{CH}-[\text{CA}]$ モノマー ([CA]は可動陰イオンを放出する固定解離基) と $\text{CH}_2=\text{CH}-[\text{AN}]$ モノマー ([AN]は可動陽イオンを放出する固定解離基) を混合して陽・陰両イオン(固定、可動両方)を持つ軸方向変形モードの両性ゲルを初年度はプロセスした。何回かの実験のうち正、負極側それぞれの変化が中心を対称点としてほぼ同じになる、いわゆる”両性ゲル”の作成に一応成功した。しかし $10\text{V}/\text{cm}$ の電界下での変位速度は 10 秒から数分と未だ遅いので、薄い両性ゲルの作成により、変位速度を今後は上昇するようにゲルをプロセスする。

Ⅲ. 総合調査研究

1. 要約

総合調査研究は、運営体に属する4集中研の研究開発におけるそれぞれの独自性を尊重しつつ、活性化をはかりながら、それぞれの成果を運営体全体として方向に収斂させることを狙いとする。まずプロジェクトリーダーとサブリーダーの連携を密にするため、研究の進め方および成果、内外の重要技術情報の共有をはかるための検討の場を設け、自由、闊達な議論を通じて行うことにした。当研究開発センターはプロジェクトリーダー、サブリーダーとの中間にたって積極的な連絡の下に推進した。これと併せて具体的な研究開発の実施状況の把握のため各集中研を訪問し、サブリーダー以下研究員との直接討論、さらに従たる研の訪問も行い現場感覚での研究開発成果の把握に努め、全体の研究開発の統括と方向付けの仲介役を果たすべく努力をした。さらに集中研に研究員を派遣しているメンバー企業とも現地訪問を含めて関係者とのコミュニケーションをはかり、既存の技術状況および今後の課題についての把握につとめた。

上記の研究開発の全体としての成果総括と方向付けと並んで、各分野に共通および包括する技術調査を自らも行うとともに、集中研による研究開発に補完的に加えるべき基礎的あるいは特殊なテーマについて特定の大学に研究を再委託し、関連技術情報の創出につとめた。

尚、機械技術研究所、物質工学工業技術研究所、名古屋工業技術研究所の国研3研究所との密接な連携が技術委員会等で図れたことにより、本研究推進における重要な技術情報の入手と研究成果の内容充実に反映できたことをここでは是非加えておきたい。

— Summary —

Comprehensive Investigation and Research

The comprehensive investigation and research aims to unify and direct research and development toward the originally designated objective of the project as a whole, respecting and activating the independent way of research of the related university research centers. What has been first put importance on, was to set occasions for free and active discussions on the research works among all members of the project, in order to let them have common perceptions and understanding and to hold in common various kinds of important information inside and outside this country. The center also paid a continual effort to maintain dense and tight liaisons among the professors who play roles as project or sub-project leaders. Furthermore, to have direct contact with researchers and to understand the results on field, visits have been made by the staffs of the center to the related universities and companies. It has also kept tight

communication with representing company staffs to make them know the situation of the project as a whole. In addition, it has made by itself investigations on the trend of the related fields and also entrusted a complementary research on a specified theme to another university.

Finally, it should be referred to it that governmental institutes such as National Mechanical Engineering Laboratory, National Institute of Materials and Chemical Research and National Industrial Research Institute of Nagoya have much contributed to the progress of the project by introducing their results of research and development at the technical committees and visits.

2. 本文

(1) 目的

本年度の総合調査研究は次の項目について実施し、プロジェクト全体の進捗に対して、それぞれの SL 担当グループの連携、協力が円滑に行われることを目的とした。

- (a) 技術委員会等の推進によるプロジェクトの研究成果総合と技術情報交流およびそれを通しての研究開発方向の共通認識の形成
- (b) プロジェクト総合推進のため、関連分野の内外の技術情報収集による本プロジェクトのレベル、方向性についての共通認識の形成
- (c) 研究再委託による補完的特定テーマに関する研究の推進
- (d) 国研の知的材料・構造システム研究との技術交流の推進

(2) 全体計画

本プロジェクトの総合調査研究の全体計画は、次の通り実施することにした。

表(2).1 総合調査研究全体計画

	平成 10 年				平成 11 年		
	9 月	10 月	11 月	12 月	1 月	2 月	3 月
(a) プロジェクト研究総合 フォロー			▲幹事会	▲デモ準備部会		技術委員会▼ 幹事会▲	→
(b) 調査		▲インテリジェント 材料国際会議	▲海外調査等				→ 成果総め▲
(c) 再委託研究 ワシントン大学							→

(3) 成果報告

(3-1) 技術委員会

技術委員会は、諸要素研究および次年度から実施スタートするデモンストレータへの関連について、省エネルギーの意識を踏えて、岸 PL 以下 SL さらに再委託先のワシントン大学、都立科学技術大学、加えて、工業技術院岡崎研究官はじめ物質工学工業技術研究所、名古屋工業技術研究所の3国研の参画を得て開催した。

まず次世代金属・複合材料研究開発協会から平成10年度実施状況について研究開発および総務関係について報告、次いで11年度の概算要求の件について計画および予算の各メンバーへの配分を説明し、承認を得た。

次いで研究開発の成果報告と今後の予定について各グループ SL が報告、PL をはじめとして活発な質疑討論が交わされた。続いて、3国研即ち物工研から樹脂物性モニタリング、名工研からペロブスカイト系電歪セラミックス材料・機技研より振動制御について成果報告があった。さらに、新アクチュエータ材料・素子の分野での研究開発再委託先のワシントン大学田谷稔教授による研究開発の進捗および米国における研究動向について報告があり、討論が交わされた。これを通じて同大学が米国流の長所を導入していく上で貴重なメンバーとなり得るとの感触を得た。

岸プロジェクトリーダから基本方針として以下のような総めがあった。

- (a) 要素研究とデモンストレータ試験を並行して進めることで、プロジェクト目標の達成を目指す。
- (b) デモンストレータ試験は、航空胴体全体を中心に、これに加えてジェットエンジン静翼、宇宙構造体の基本設計を11年度よりスタートし、実施にはデモンストレータ部会を設け、岸 PL 自身が指導する。幹事には、目下 MHI, KHI, FHI の3社のメンバーの就任を考えている。
- (c) プロジェクト全体計画における予算配分の考え方は、当初は3年度目からデモンストレータに試験への配分を相当大きくしようと考えていたが、他方重要な基礎的要素技術で革新的な技術の可能性にも配慮して、4年度、5年度にもある程度の配分をするよう考え直したい。
- (d) 広く国内、国外の情報収集、意見交換をはかるよう努力したい。特に昨秋（平成10年10月）に日本（日光）で行った日本ワークショップでスマート材料・構造システムについて、米国側から米国で開催したい旨、岸 PL のところへ申し入れがあり、これにも前向きに対応して行きたい。

また工業技術院岡崎開発官からは、次のような激励の言葉がありメンバー一同これを受けて更に努力することで意を一にした。

- ① 大学連携型プロジェクトは、はじめてなのでいろいろ試行錯誤的に行かざる

を得ない面があるが、工技院としてはこれが円滑に進めるようにしたい。

② チャレンジングなテーマについてしぶとく取組んで欲しい。

(3-2) 幹事会

岸プロジェクトリーダーにスマートマニュファクチャリングの福田サブリーダー（以下 SL と称す、大阪市立大）アクチュエータの谷 SL（東北大）、それにヘルスマニタリングの武田 SL（東大）、松崎 SL（東北大）のメンバーで幹事会を平成 10 年 11 月 17 日（火）に開催した。とくに大学で実施される要素研究とデモンストレータ試験との連携および大学との連携で新しい技術の創出を明確にすることを重視してプロジェクトに取組むことで一致した。続いて、平成 11 年 2 月 25 日（火）に、10 年度研究実施結果を踏えて、経過進捗の紹介と 10 年度の報告骨子、11 年度計画方針について検討した。とくに、予算的に 11 年度に基本設計を始めるデモンストレータについては、航空胴体構造、エンジン静翼構造と宇宙用アンテナ構造を対象とすることで合意した。

(3-3) デモンストレータ準備部会

岸 PL 以下 SL、関連企業メンバーおよびオブザーバとして工業技術院と NEDO からの参画を得て、検討会を行った。企業メンバーおよび SL より提案テーマ説明の後、内容について質疑、討論を中心に検討を行った。PL から、5 年間のプロジェクト期間を通じての要素研究とデモンストレータのバランスは、中間の 3 年度をポイントにして後半はデモンストレータ重点指向する旨の総括があった。さらに、デモ試験として要素統合性の強いものと特定の要素技術関連の強いものとの特徴付け、予算枠との関係でつめを行うことを申合せた。

(3-4) 調査

(a) 第 4 回インテリジェント材料国際会議

本国際会議は、1989 年筑波で国際インテリジェント材料のワークショップが皮切りになって 1992 年オスロで第 1 回が開催されて、1998 年で 4 回に至っている。

今回の組織委員会には、当プロジェクト SL の松崎雄嗣名古屋大学教授、エグゼクティブ委員会には、やはり SL の谷順二東北大学教授が参加、知的材料・構造システムの基礎から応用に亘る研究、開発の成果発表の場として貴重な会議であるので参加した。

基調講演、特別講演を含めて全 149 件の講演があり、内約 1/3 の 44 件が海外からの発表と盛況であった。分野として、インテリジェント材料の基礎から、構造シス

テム、バイオ、プロセッシングに亘る 14 分野が取り上げられており、今後の新しい技術、産業の創出のために知的材料・構造システム関連技術の進展に対して世界的に注視と関心が集まっていることが窺われる。

我々のプロジェクトが、世界的な研究開発動向に目を配りつつ世界に先駆けるためにも、今後ともこの種のシンポジウムの場合もフォローする必要があると考えられる。

(b) 海外技術調査

本プロジェクトの成果は、当然のことながら、その先端性が世界的にみてもトップに抜きん出ていることが必須である。したがって、国内の専門分野内での比較に止まることなく、グローバルに且つ客観的に自らの研究成果のレベルとその方向性を絶えずチェックアンドレビューをせねばならない。かかる観点から、本プロジェクトでは、広く世界の学協会の会議、シンポジウムおよび有力な企業、大学の研究開発活動を積極的に利用して情報を調査することになっている。とくに産業技術で先端的なものについては、企業独自では得にくい機会が、学との連携に加わることでより、得やすくなることもあり、適切な機械があれば出きる限り活用することとした。表(3-4).1 に今年度各 SL グループの担当にて行った海外技術調査の一覧を担当分野別に、調査機会の種類、実施年月日、実施者、調査の狙いをまとめてかかげた。本調査で、スマート材料・構造システムの現時点での基礎研究および応用の動向をそれぞれの担当テーマの立場からかなりの程度まで把握できたものとする。

表(3-4) .1 海外調査研究活動一覧

HM:ヘルスメタリング ,SM:スマートマニュファクチャリング ,AA:アクティブ・アダプティブ ,AC:アクチュエータ

実施者	分野	年月日	実施先	所在国	狙い	報告 No.
1.高橋 (富士セラミックス)	AC	1998.10.12 ～22	ICAST98 国際会議	アメリカ	スマート構造応用の研究開発調査	FRE-1
			ACX 社	アメリカ	圧電アクチュエータによる振動制御調査	FRE-1
			MIT	アメリカ	・圧電セラミックスによる振動制御研究調査見学 ・アクチュエータの応用研究見学	FRE-1
			ワシントン大学	アメリカ	田谷研究室見学	FRE-1
2.松本 (東北大)	AC	1999.03.07 ～14	カールスルーエ中央研究所-	ドイツ	形状記憶合金のマイクロアクチュエータ応用研究調査	FRE-2
3.古屋 (東北大)	AC	1999.02.27 ～03.06	SPIE 国際シンポジウム	アメリカ	・スマートシステムに関する世界的な研究開発の現状調査 ・形状記憶合金の応用研究調査	FRE-3
			ワシントン大学	アメリカ	インテリジェント材料・素子研究開発調査	FRE-3
4.元木 (大阪市立大)	SM	1999.02.28 ～03.05	SPIE 国際シンポジウム	アメリカ	スマートマニュファクチャリング技術の開発に関する調査	FRE-4

海外調査報告

1. 調査目的

「インテリジェント材料・構造の技術の現状」に関する海外情報の収集，及び国際会議“9th International Conference on Adaptive Structures and Technologies (ICAST'98)”において論文の発表と技術情報の交換

2. 調査員

(株)富士セラミックス 開発部係長 高橋 弘文

3. 調査期間

平成10年10月12日(月)～22日(木)

4. 調査場所とスケジュール：

10月12日	成田空港より出発
10月13日～10月17日	ボストン 国際会議の出席 マサチューセッツ工科大学(MIT)の見学 ACX社の見学
10月18日	移動
10月19日～10月20日	シアトル ワシントン大学の見学
10月21日	シアトルより帰国
10月22日	成田空港到着

5. 調査報告内容

5.1 ICAST'98 について

参加人数：約80人(ほとんど航空宇宙関係)

日時：平成10年10月14, 15, 16日

・平成10年10月14日(水) 7:30～17:15

特別講演：N. W. Hagood 教授 MIT 大学

・平成10年10月15日(木) 8:00～17:10

特別講演：I. Chopra 教授 MARYLAND 大学(今回の報告書には記述していない。)

・平成10年10月16日(金)8:00～15:40

特別講演：E. V. White 氏 BOEING 社

・ 国際会議内容

- (1) Active Devices Technologies
- (2) Sensors
- (3) Vibrations and Control 1
- (4) Composites
- (5) Rotocraft
- (6) Shape Memory Materials
- (7) Vibrations and Control 2
- (8) Modeling and Accoustics
- (9) Microsystems
- (10) Variable Geometry Structures
- (11) Fault Diagnosis and Health Monitoring
- (12) Vibrasion and Control 3

5.2 ICAST'98 特別講演の内容

5.2.1 From material to microsystem: An integrative survey of MIT activities in solid state actuation, N. W. Hagood 教授 (MIT)

Hagood 教授はかなり多くのプロジェクトを抱えており，研究室は各団体の基金により積極的な研究が行われていると感じた．アメリカの場合，大学教授はいかに多くの資金を集めるかが大きな仕事になる．また学生は教授から給料が支払われるため，資金に余裕のある研究室にはより優秀な学生が集まり結果として，すばらし研究成果を上げることになる．非常に良いシステムにより運営されている事を感じた．

今回の講演では PZT ファイバセラミックスを使った振動制御が中心であった．Hagood 教授は材料開発にも力を入れていて PZT ファイバセラミックスに $(\text{NaBiTi})\text{O}_3$ (NBT) をドーピングした材料の紹介も行っていた．PZT ファイバセラミックスは，ペンステイト大学が創設したセラノバ社によって開発され，ボーイング社，ACX 社と共にその応用開発が行われてきた．実際に PZT ファイバセラミックスを飛行機の主翼に貼り付け，振動を制御できることは実験室でのデモンストレーションで確認できている．

PZT ファイバセラミックスは従来の PZT 系セラミックスに比べ約 2 倍の変位量を発生させることができ，弾性係数は 30GPa，密度は $4.7\text{g}/\text{cm}^3$ ，エネルギー密度は PZT の約 3 倍であり，バンド幅は PZT の $1/10 (>10\text{kHz})$ である．また PZT ファイバセラミックスを積層することで，かなり高い性能を期待できるようである．

振動制御の研究についてはその他にヘリコプタのローターブレード, 飛行機の胴体, ロケットの発射台の説明があった。原理は同じで振動部分に圧電アクチュエータ (PZT ファイバ, PZT 板) を貼り付け制御するものである。その他に積層アクチュエータを使った X-フレームアクチュエータやマイクロバルブ等の発表があった。X-フレームアクチュエータは飛行機のフラップの可変機構に使う (変位拡大機構)。高速時の早い動きに対して有効的であることと, X-フレームとアクチュエータの機械的機構のマッチングがすばらしかった。マイクロバルブは高速応答性が良く使用用途を選べば実用レベルにあると感じた。現在 ACX 社では, この技術を利用し自動車向けに開発し, ピーアールしていた。

5.2.2 Smart structures transition to aerospace applications: Boeing Information Space and Defense Systems Group, Edward V. White 氏 (Boeing 社)

現在の航空機, ヘリコプタ, ロケットをはじめ, 航空宇宙分野に関わるものにはあらゆる機能を持った材料, それを使った応用があり, 次の様に考えることができる。

- (1) 材料と構造の健全性監視: 構造物を使用過程で監視を行うことを前提に安全率を限界まで下げる限界設計を行い軽量化を図る。
- (2) 構造の制御: 振動制御, 振動騒音の抑制, 疲労を防ぐ。
- (3) 構造の利用: 構造物の表面を電波の送受信面として用いる。また, 電磁波や音波の吸収面として利用する。

一般に航空分野で最も振動騒音が問題となっているのは, 現状ではヘリコプタで, インテリジェント材料システムの応用が考えられている。ヘリコプタのブレードは繊維強化複合材料でできているため光ファイバや圧電ファイバの利用が行われている。ヘリコプタのブレードの振動を制御することができれば振動騒音の抑制ができ, ヘリコプタの飛行性も向上する。

また, 宇宙空間では微少重力であり, 地上のように自重を支える必要がないので, 宇宙構造物は軽量化できる。一方, 打ち上げの際にロケットに加わる荷重を低減させるために, 宇宙構造物の軽量化が必要である。軽量化による剛性低下のため, 宇宙構造物は振動しやすい。そのために, 振動制御機能を持つインテリジェント材料が必要であると述べていた。インテリジェント材料システムは, 材料工学, 電気工学, 機械工学, 情報工学などの分野をまたいで互いに協調した研究が不可欠であるとも述べていた。

5.3 ICAST'98 一般セッションの内容

5.3.1 Active Devices Technologies

積層圧電アクチュエータを用いた研究発表であった。PMN 電歪材料で積層アクチュエータを作製し, 実際にいろいろな条件下 (電圧-電流-変位, 変位-発生力など) で圧電

性と電歪性を比較したものであった。積層圧電アクチュエータを利用し、400Hz の機械的振幅を作り出す装置の開発、積層圧電アクチュエータの動特性を測定するための装置の発表があった。

5.3.2 Sensors

センサシステム技術の開発は、ヘルスマニタリングシステムに於いて重要な役割を示す。複屈折光ファイバセンサやプラスチック光ファイバセンサは、航空宇宙用材料として開発が進められている。光ファイバに例えば横方向荷重が加わる場合は、モード結合に影響を与えるパラメータが多い。実用的なセンサモジュールの設計コンセプトを実験で確かめるためにセンサモジュールの考案、例えばプラスチック光ファイバが埋め込み型センサモジュール（FRP 複合材料）の損傷検知には必要などの発表があった。その他に、PVDF を利用して指の動きに近い動作をするタッチセンサ等の発表があり興味深かった。

5.3.3 Composites

温度や力の影響を受けやすい圧電セラミックスや形状記憶素子を数々の材料とコンポジットすることで特性の向上が期待できる。今回の報告の場合、機能素子は主にファイバであった。ファイバ金属（形状記憶素子）をホットプレスを用いてジルコニアに埋め込む方法、プラスチックに埋め込む方法などのプロセス技術が広く研究されていて、近い将来、実用化できる技術力を感じた。

5.3.4 Rotorcraft

航空宇宙分野のヘリコプタに関するデバイスの報告が中心であった。超磁歪素子を使ってヘリコプタのブレードを動かし制御することや、圧電体の曲げを利用してフラップを動かすことである。この場合は、バイモルフを使用する。また積層にした圧電体ファイバコンポジットをブレードに貼り振動制御を行う。ヘリコプタのブレードや飛行機のフラップに超磁歪や圧電体を利用し動作させることで、高性能なアダプティブ構造が作られる。NASA をはじめとする研究機関では、既に実用化に向けて実験が行われていて、その性能は確認されている。

5.3.5 Shape Memory Materials

形状記憶材料では NiTi が代表的であるが、それ以外の材料の開発を新しいアイデアと特別装置を用いて従来の 10 倍の変位量を確認した報告、その他 Ni₂MnGa, FeNiCoTi 系材料など新しい形状記憶材料の特性についての報告があった。特に変位量が従来の 10 倍を確認した材料はまだ試作レベルにも関わらず、既に NASA, ボーイング社等からのアプローチがあるようだ。また、形状記憶素子を使った変位拡大機構の試作や、圧電体と一緒に使ったダンパ機構等の報告があった。

5.3.6 Modeling and Acoustics

材料としては主に圧電体(PZT, PVDF)を利用して、振動をコントロールする。また振動を制御して音を低減させる。PVDFの板を振動体に張って振動を制御するシステムの報告、ロケットの噴射口の音を低減させるシステムの報告があった。振動制御、騒音低減などの技術は、航空宇宙の分野でなくても、比較的身近なものへの応用が考えられそうである。

5.3.7 Microsystems

圧電アクチュエータ(PZT系, PVDF材料)を利用したマイクロロボット、移動システム、動作原理の解明が主な内容である。足が4~6本あるマイクロロボット(昆虫)を圧電アクチュエータ(PZT, PVDF系材料を用いたバイモルフ)で作製して、本物のように動く様子をビデオで紹介していた。力は小さいが、応答速度が早いためにできる応用であり、将来的には新交通機関への応用につながるシステムである。最も注目されていたのが、ニューメキシコ大学で行っている人工筋肉の開発である。高分子ポリマーに金属イオンを入れコンポジットを作製し、電圧印加で動かすと言うものであった。骸骨の模型の足にこのフィルムを付けて自転車のペダルを動かす姿には目を見はった。また、トンボの模型を作り、羽の部分にこのフィルムを付け、トンボの羽の動きをシミュレーションしていた。トンボの羽と同じように動く姿はすごかった。

周波数は非常に低く0.1Hz以下である。40×5×0.2mmのフィルム(重さは0.2g)で1.5V印加して20mm程度の変位が出る。しかし力は非常に小さく10g程度と弱いため、現状では模型の一部に利用するにすぎないが、人間の筋肉に使用する日も近いと感じた。

5.3.8 Variable Geometry Structures

全員が日本人の研究者であった。形状記憶合金の変化を幾何学的構造の見地より解明するものである。形状記憶合金を用いて宇宙構造物に関する研究が多く行なわれているが、その状況下に於ける形状記憶合金の特性は未知数である。シミュレーションと実験値の確認により理論方程式を算出する。実際に使用する形状記憶合金は、理論方程式により求められた数値で設計される。そのような方程式を算出することは非常に重要な仕事であると思うが、世界的には研究者の数は少ないようである。

5.3.9 Fault Diagnosis and Health Monitorig

航空宇宙分野では、構造物が過酷な環境下で使用されるため、複合材料の構造健全性、耐久性を評価することで信頼性を確保し、修理までのサイクルコストを低減すること求められている。ヘルスマニタリングに使われるセンサのほとんどは光ファイバであるが、コンポジットにすることが多いため、特徴である光の強度、位相、偏光などの測定方法が難しいようである。

5.3.10 Vibrations and Control 1, 2, 3

今回の国際会議の中で最も発表が多かったのがこの Vibrations and Control であった。特定の構造体の振動制御の方法及びその解析と実験結果である。構造物の振動コントロールをするために張力とすべり方向の動きによる制御方法，接着界面の振動制御方法，自動車のハンドルの振動コントロール，圧電体の動きによる振動抑制評価，電磁場を使用した新しい振動コントロール(超磁歪)，振動コントロールする材料としては圧電セラミックス，PVDF，超磁歪材料がある。それぞれの材料の特徴を使った振動制御を行っている。今後，アクチュエータ材料特性の信頼性が確保されるにより，振動制御技術の応用は航空機，自動車，建物などの構造物へ広がると期待できる。

5.4 論文の発表

今回は Vibrations and Control (II)のセッションにおいて，“Vibration Control of Ring Structure Using Piezoelectric Actuators”の論文を発表した。本論文は東北大学と本田技研の共同研究であるステアリングホイールの振動制御の研究成果である。具体的には，ステアリングホイールの4本のスポークの両側に圧電アクチュエータを貼り付け，その力を用いてリングの振動を制御する。同一スポークの両側のアクチュエータには逆位相の電圧を加えるため，合力としてモーメントが発生する。制御理論としては μ シンセシス法を用い，センサとしてはホトニクセンサを用いた。実験とシミュレーションの両方で，二つのメインモードに対し，ステアリングホイールのリング部の振動を1/10以下に減らすことができた。制御性の悪いモードに対しても，振動を1/5以下に減らすことができ，よい制御効果が得られた。しかし，初期振動の振幅の減衰が遅く，実験とシミュレーションの結果を考察した上で，その原因がアクチュエータの出力の不足ためであることが分かった。今後の実用化に向けて，アクチュエータの性能の向上が必要とともに，最も重要なのは制御システムのロバスト性の向上である。ステアリングホイールのリング部は運転手が手で握るところであり，その握り方，かける力などによってリングの特性が大きく変わるため，どんな場合でも対応できるコントローラを設計する必要がある。また，実用化するためには，センサをステアリングホイールと一体化する必要がある。

5.5 ACX社について

ACX社は，マサチューセッツ工科大学(MIT)航空宇宙研究センター所長のCrawley教授とDr. Lazarus氏によって設立された企業である。現在では，航空宇宙工学の権威で，Crawley氏の部下であり今回のICAST'98の運営責任者でもあるMIT大学のHagood教授と密接な関係で運営されている。

ACX社の従業員は約80人程度と推測される。内60人がエンジニアであり，ほとんどがMIT大学の出身者である。エンジンの内訳は機械が40%，電気が35%，材料が15%，

化学が10%、である。機械、電気のエンジニアはほとんどが Crawley 教授と Hagood 教授の研究室出身である。

Hagood 教授の研究室は (MIT 研究室見学についてで詳細に報告する) 現在の航空宇宙工学の最先端であり、その駆動材料としては主に圧電材料を使用している。

ACX は設立された当時から現在のビルの 2 階の一部を使用している。営業、設計、開発、簡単な組立、管理にそのスペースを使用していた。しかし、ACX 社の売上と従業員数はともに年間倍の速度で増え、スペースが足りなくなった。それで、1 年前、同ビル 3 階の全フロアを借り、スペースを約 5 倍に広げた。

ACX 社自身は圧電材料素子を作っていない。圧電材料素子はペンシルバニア州立大学 (ペンステイト) が出資して設立した企業である Cera Nova (セラノバ) 社により供給を受けている。ペンステイトは圧電体材料の研究において最も進んでおり、日本からも数多くの研究者が留学している。また、最近では富士セラミックスを含めた多くの圧電セラミックス材料素子メーカーからサンプルを集め、評価を行なっている。社内の研究室では 10 数社から集めたと思われるアクチュエータが並べられ耐久試験が行われていた。

ACX 社の圧電材料の製造においては、ほとんど技術を持っていないが、振動制御に於いては相当な技術を持っている。そのため、第 3 社から供給された圧電材料特性に多少の問題があっても、回路及び制御で克服できる。

ACX の目玉商品はユニパックと呼ばれている圧電アクチュエータのパッケージである。それは第 3 社から供給された圧電材料素子を使いやすいアクチュエータのパッケージにしたものである。数年前、ACX はユニパックに分岐回路を加えたものをスキー板に埋め込んで、スマートスキーを開発した。スキー板の振動による圧電アクチュエータが発生する電気エネルギーを分岐回路で消費することによって、機械減衰を増やし、板の振動を止める原理を使った。実際に、板の減衰係数は 0.035 から 0.07 に変わるが、工学の観点からは大きくない。しかし、スマートスキーがアメリカのスキーメーカー K2 により商品化され、ヒット商品になった。その一つの原因としては、分岐回路に発光ダイオードを付け、板が振動するたびに、ダイオードが光る。最近では、スマートスキーの技術は K2 の半分以上の製品に応用されていて、ACX にとっては大きな利益が得られている。デモンストレータの紹介としては、スキー、スノーボード板の振動制御、野球のバットの振動制御 (スマートバットと呼んでる)、マウンテンバイクのサスペンション、アクチュエータを利用した音叉の消音機、アクチュエータバルブ、振動制御回路ユニット等があった。

ACX 社の振動制御の技術はかなり高い。エンジニアのレベルはトップクラスで機械、電気に於いては MIT 卒の Dr が 5 人いる。また圧電材料に関してはペンステイトよりかなり多くの情報があり、同時に技術サポートも受けられる位置にあると推測される。

今回出席した ACX 社の Dr. デビット・ウォーキンティン氏は '95~'97 の 2 年間、東北大学 谷教授のもとに 2 年間、ポスドクとして勤務していた経緯があり、今回の訪問はウォーキンティン氏の協力のもとに行われた。ウォーキンティン氏は MIT 卒で Crawley 教授の研究室出身である。

5.6 マサチューセッツ工科大(MIT)見学について

見学したのは Hagoods 教授の研究室で、ほとんどが圧電セラミックスを利用した振動制御をテーマとしていた。

5.6.1 アクティブ・ファイバコンポジットと材料特性評価

今回の国際会議に於いてもかなり高い関心を集めていたのは、PZT 圧電セラミックスをファイバ状にし、高分子ポリマーの中に埋め込んでフィルムにしたコンポジットであった。作製方法は圧電セラミックスを微細にし高分子ポリマーに混ぜゲル状にする。それを押しだし成型で繊維にする。この繊維を並べて、両側にすだれ電極を付けることで長手方向に電界を印加できるというもの。積層型と同様の特性が期待でき、曲げて使うことができる。PZT ファイバは、ペンステイトが考案し、セラノバ社が作製し供給したものであった。開発には約 5 年の年月を費やし、今回の発表に至ったものであった。PZT ファイバは直径が約 0.12mm で、長さは最大 200mm であり円柱形をしている。PZT ファイバコンポジットの構造は下記に図で示す。

ファイバコンポジットを飛行機の主翼に張り付け、主翼を変形させ、振動制御を図る事が目的である。実験室には小型のデモンストレータがあり、実際に駆動させていた。このファイバコンポジットを用いることで約 2 倍の変位が得られる。実験室では、そのファイバに電極を付け、圧電ファイバコンポジットを作製していた。またそれを評価するシステムも確立されていた。

5.6.2 圧電超音波モータ

φ70 程度の超音波モータによる研究が行われていた。月探査ロケットの着陸時に使

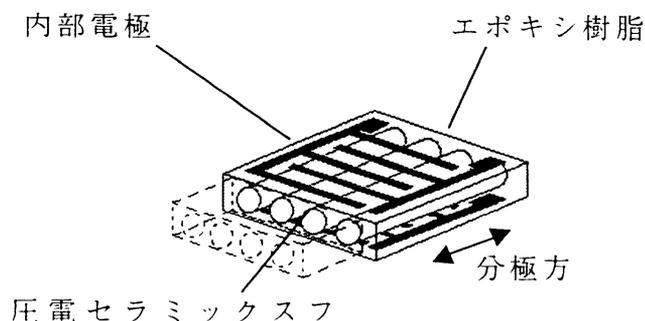


図 アクティブ・ファイバコンポジットの

うアームの回転モータまた飛行機のフラップの可変軸の駆動モータ等で、航空宇宙工学の分野に於いてはかなりの数のデバイスが考えられると言っていた。高いトルクが発生する事、ノイズが無いことが最大のメリットである。

5.6.3 マイクロ水圧バルブ

超小型の水圧変換バルブの研究が行われていた。駆動モータとしてはバイモルフアクチュエータが用いられていた。小型にするには圧電体が良いが応答速度、力の問題があり課題は大きい。水、ガソリン等の液体を可変するバルブの応用は多く、その発展は期待できる。

5.6.4 MIT 考案の飛行機のテスト台

飛行機の垂直翼、主翼の骨組みで作られた模型が有り、各部分の歪み、応力を測定し、シミュレーションする。その結果をもとにインテリジェント材料の応用を考える。圧電セラミックスファイバはこの様な実験室から生まれた。実際に空気流体力を用いて行っていないが、そのような生のデータは、ボーイング社より提供されている。

5.6.5 アクティブ音響で負荷を緩和させたロケット発射台、音響工学

ロケットの発射の際にはかなりの爆音ができる、その音をアクチュエータを用いて低減させる実験である。原理としては、 $3 \times 3 \times 5$ (m)の箱の中にドラムを入れ音を出す。箱の中の壁にアクチュエータが張ってありその振動制御により消音効果をテストする。また、無音室にエンジンのタービンがあり、それにアクチュエータを貼って消音制御を行っていた。まだ実験レベルであるが、ロケットの発射台に使用する前段階での利用が期待できそうである。

5.6.6 ヘリコプタのローターブレード作製とアクチュエータ

本物のヘリコプタのローターブレードがあり、実際に動かし実験していた。ブレードに飛行機の主翼と同じように圧電ファイバを張りつけブレードを変形させ振動制御を行うものであった。

5.6.7 マサチューセッツ工科大学(MIT)研究室を見学しての所感

とにかく規模が大きくて驚いた。さすがに年間数十億の予算の中で実験しているレベルは違うと感じた。さらに驚いたのは学生のレベルの高さである。技術力、学力にも驚いたが、それ以上にこの学生が自分の研究テーマに自信を持っていることである。各研究テーマの説明は全て担当の学生が行っていた。見学社のほとんどがこの分野の専門家であるにも関わらず、自分の考え、研究の可能性について堂々と述べていた。

5.7 ワシントン大学

見学日時：平成 10 年 10 月 19 日(月), 20 日(火)

見学場所：田谷稔教授， 井上漢龍教授研究室

ワシントン大学は創立 100 年以上の長い歴史のある大学である。大学は総合大学で特に医学部は全米ランキングで 2 位である。全大学生徒数は約 4 万人で，学部生が 3 万人，修士が 5 千人，その他である。

5.7.1 田谷教授

田谷教授は東京大学卒業後 1971 年にアメリカに渡り，以後複合材料の研究を行っている。1989～1991 年の 3 年間，東北大学で教授として材料の研究を行った経緯があり，それ以後，谷教授との関係が深い。

田谷教授は現在，アメリカ国防省，ボーイング社とのプロジェクトの代表であり，年間数億のプロジェクトを行っている。大学ではテレビを使い，ボーイング社とインテリジェント材料についての授業を行っていた。元々，田谷教授は機械工学出身で，インテリジェント材料を用いたデバイスの設計が主流であり，多くのアイデアを持っていて，特許の数も非常に多いと聞いている。またアメリカでは特許の考え方が日本と違うため，今後，同じプロジェクトでやっていくためには多くの問題を抱えることになると話していた。

どんなに良い材料でも，どの様なデバイスに使っていくかというアイデアが一番大事で，価値があると話していた。アメリカではアイデアが最も大事であることを強く協調していた。年間 100 万社以上の企業(ほとんどがベンチャー企業)が設立するアメリカ社会も納得できる。

しかし，アイデアを出すためにはそれ以上に材料の特質を理解しなければならず，そのためには材料の専門家と手を組む必要があること，(田谷教授は井上教授と共同研究を行っている)自分の仕事を成功させるためには，最小単位のプロジェクトを自分の回りに作ることが大事であると述べていた。アメリカの考えが全て良いとは思わないが，今後仕事を進めていく上で非常に参考になった。

5.7.2 井上漢龍教授

井上教授は，大阪大学金属工学出身で 1979 年にアメリカに渡米して以来，機能性材料（特に形状記憶合金：Ni₃Ti 系）の研究を行ってきた。井上教授も東北大学 谷教授と何度も同じプロジェクトを経験している。現在は，同大学のプロジェクトリーダーである田谷教授とともにインテリジェント材料の開発及びそのデバイスの設計を行っている。

研究室の学生数は 17 人，(田谷研究室と合わせて)で，学生に払う金額は，年間 3 万ドル/人と聞いた。研究室では材料の製造は行わず，アメリカの企業に製造を依頼しているようであった。最近では田谷教授と共同で，ゲル材料を用いてスマートスキーンの研究を行っているようである。詳しくは聞けなかったが，ボーイング社とのプロ

ジェットで、航空機の翼に取り付け、飛行中に起こる乱流を回避するアクチュエータにするらしい。

6. まとめ

航空宇宙の分野は確かに最先端技術の上に成り立っている。しかしその過程には歴史があり、当然、現在の技術の進歩を支えてきた技術がまたあったのだということを再認識できた。最初は鉄のような材料を使う単一技術であったものが社会の要求に対応できなくなり複合技術が必要になった経緯を学んだ。

代表的な複合材料に FRP(繊維強化プラスチック)があるが、軽くて丈夫という特性から複合材料は航空宇宙分野、自動車、建築物などあらゆる分野に拡大している。そして最近、化学的、電磁氣的機能を持つ機能複合材料が開発されデバイスとして使用されていて、ロボットや機械、構造物、材料などが環境の変化に知的に対応することが試みられ、それにはインテリジェント、スマートという言葉が付けられている。

複合材料を知的化するのに用いるセンサは、歪みを測定するもの(歪みゲージ)、光の強度、位相、偏光などを測定するもの(光ファイバ)、弾性的で衝撃に強く形状の自由度があるもの(PVDF:触覚センサ)あがる。複合材料を知的化するのに用いるアクチュエータは、形状記憶合金、圧電セラミックス、超磁歪材料がある。形状記憶合金は金属物理特性が変化するため情報として取り出せばセンサにも利用できる。また単位体積当たりの出力が大きいので大きな変形を生むことができる。しかし効率の向上、応答性の改善が望まれる。

圧電セラミックスは、今回の発表でも注目されていた。圧電ファイバのように曲面構造も適用できる知的複合材料が今後更に期待されると思う。超磁歪材料は電場でなく磁場に応答する以外は圧電材料に似ている。また国際会議でも話題を呼んだ高分子ゲルには電場、光、pHの変化により伸縮する性質があるためアクチュエータとして用い発生力は小さいが柔軟な材料である人工筋肉として利用が考えられている。

インテリジェント材料を用いて構造を制御するという概念は、航空宇宙分野では例えば航空機のフラップの可変や宇宙空間で折り畳んでロケットに収納していたものを取り出す必要が考えられてきたため、実用化されてきた。今回の会議はその構造と材料を一体にすることで生まれるスマート材料である形状記憶合金、超磁歪材料、圧電セラミックスなどのアクチュエータにより、構造を変化させ、空力形状の最適化、振動、音響制御を実用化させるものである。

今、もっとも注目されているのは振動騒音が問題になっているヘリコプタへの応用である。ヘリコプタのブレードは柔らかい繊維強化複合材料でできているためその繊維にインテリジェント材料に置き換えることが試みられている。ブレードのねじれ変形を制御できれば振動騒音の抑制とともに飛行性も向上する。

また自動車も高性能化を目指すには、自動車を軽くしてエレクトロニクスを付加しなければならず、このためにインテリジェント材料との複合化が必要となる。快適面では振動、騒音制御、安全面では衝突時のエネルギー吸収制御機能を持ったインテリジェント車体構造が期待されている。同様に高速化、快適、安全性を達成するにはヘルスマニタリング化のためのインテリジェント材料の応用も必要であると感じた。我々も圧電セラミックスだけの性能に頼るのではなく、複合化について前向きに考える必要があると思う。そうすることにより、材料主体の応用を含めた新しい展開が考えられる。複合化技術により、航空宇宙の分野でまだ実用化されていない応用であっても、その技術を使った商品展開は可能であると思う。例えば振動、消音制御などの技術はこれから取り入れて行くべきであると感じた。

また、圧電セラミックスに対しての本質的性能を今以上に理解する事の必要性を感じた。本報告書にも記述したが、短所である特性も応用次第で優れた特性を得ることが出来る。圧電セラミックスの性能を理解することがその応用に結びつく近道であると言っても良いと思う。

海外調査報告

1. 調査目的

「インテリジェント材料を用いたアクチュエータの開発」に関する海外情報の収集および技術情報の交換を行う。

2. 調査員

東北大学素材工学研究所 講師 松本 實

3. 調査期間

平成 11 年 3 月 7 日 (日) ~ 3 月 14 日 (日)

4. 調査場所とスケジュール

3 月 7 日 (日)	成田空港より出発
3 月 8 日 (月) ~ 3 月 12 日 (金)	ドイツ・カールスルーエ カールスルーエ中央研究所マイクロ構造技術研究所
3 月 13 日 (土)	フランクフルトより帰国
3 月 14 日 (日)	成田空港到着

5. 調査報告内容

カールスルーエ中央研究所はドイツの南西部のフランス国境に近い都市カールスルーエの北部に位置する研究所である。この研究所はこれまで主に原子力に関する研究を行ってきたが、現在は環境、エネルギー（核分裂、核融合、高温超伝導など）、マイクロシステム、医療、基礎物理（ニュートリノなど）の研究分野をもち、民間会社との共同研究や技術移転さらには製品化による産業界との結びつきを重視している。

この中のマイクロシステム分野に属するマイクロ構造技術研究所では先端材料である機能性材料のマイクロ加工やマイクロマシン作製などのマイクロ技術およびデバイスへの応用開発研究が行われている。この分野では世界の最先端の研究を行っている研究所の一つである。

本調査の目的はカールスルーエ中央研究所マイクロ構造技術研究所を訪問し、形状記憶合金などの機能性材料をマイクロマシンのマイクロアクチュエータへと応用する問題について見学、討論およびセミナーを行うことである。

5. 1 見学

カールスルーエ中央研究所マイクロ構造技術研究所 Manfred Kohl 博士の案内で所内を見学した。リソグラフィの手法を用いた微細加工を行うクリーンルームとその加工技術、形状記憶合金箔を用いたマイクロポンプの作製、マイクロ状態における応力-ひずみ曲線の測定などの装置の説明を受けた。

5. 2 討論

マイクロ構造技術研究所 Manfred Kohl 博士および博士が指導しているカールスルーエ大学大学院生と次のような討論を行った。

- (1) 材料作製の問題：形状記憶合金などの材料における変態温度の制御方法、脆性の改善方法、厚さ $5\mu\text{m}$ クラスの機能性材料薄膜作製と物性測定における問題点、熱処理における酸化物の生成と材料特性への影響。
- (2) 機械的特性の問題：形状記憶合金薄膜における回復力の測定、薄膜材料を用いた応力-ひずみ曲線の測定。

5. 3 セミナー

3月9日（火）午後3時～4時、マイクロ構造技術研究所3階セミナールームで「強磁性形状記憶合金 Ni_2MnGa 」のテーマでセミナーを行った。マイクロシステムおよび材料の研究者・大学院生約20人が参加した。講演の内容は次の通りである。

- (1) 化学量論 Ni_2MnGa と非化学量論 $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$ のアーク熔解法による試料作製、熱処理による試料均一化と規則格子原子配列化、X線回折による結晶構造の確認。
- (2) キュリー温度と変態温度に組成依存性、 $x=0.16$ 付近の組成領域におけるこれらの温度の一致。

また、主な質疑とそれに対する応答は以下の通りである。

質疑

- (1) キュリー温度と変態温度がある組成で一致することの物理的原因は何か？
- (2) 強磁性形状記憶合金 $\text{Ni}_{2+x}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}$ は現在どのような応用がなされているか？

応答

- (1) キュリー温度はこの物質の場合は主として Mn-Mn 原子間の磁氣的相互作用、変態温度は構成原子による凝集力による。組成の変化により相互作用に変化が生じた。
- (2) 組成 x の増加に伴い、キュリー温度が低下し、変態温度が増加することは興味ある現象であり、これをデバイスに利用することを考えている。

6. まとめ

3月8日（月）～3月12日（金）ドイツ・カールスルーエ中央研究所マイクロ構造技術研究所を訪問し、主として機能性材料形状記憶合金のマイクロアクチュエータへの応用について見学、討論およびセミナーを行った。

この結果、今回の調査は今後の研究と応用開発に役立つものと考えられる。さらに、この方面との交流を通じて我々の研究開発の発展を計りたい。

海外調査報告

1. 調査目的

「知的材料・構造研究」に関する米国内研究状況に関する情報収集

調査対象：国際会議 “第6回 SPIE ‘99” での発表論文と技術情報の交換
およびワシントン大学（シアトル市）との研究討論・情報交換

2. 調査員

東北大学大学院・工学研究科 助教授 古屋泰文

3. 調査期間

平成 11 年 2 月 27 日(土)～3 月 6 日(土)

4. 調査場所とスケジュール：

2 月 27 日	成田空港より出発
2 月 28 日～3 月 4 日午前	ニューポートビーチ市（カリフォルニア州） 「知的構造・材料研究」に関する “第6回 SPIE ‘99” 国際会議の出席 会場：(Newport Beach Marriot Hotel& Tennis Club)
3 月 4 日午後	移動
3 月 5 日午前	シアトル ワシントン大学での研究討論・情報交換
3 月 5 日午後	シアトルより帰国
3 月 6 日	成田空港到着

5. 調査報告内容

SPIE'99 参加人数：約 800 人程度，特徴：今回の会議は，主題の（1）“知的構造・材料（Smart Structures and Materials）”と併設して，（2）建設物や製造工程での非破壊評価技術（Non-destructive Evaluation Technique）分野も開催されて，航空宇宙関係，建設構造物，制御システム，電子デバイス，材料，さらには非破壊評価・計測など，21世紀への知的材料構造技術の発展に関わる多くの分野からの出席者が内外から多数出席している様子で，本年度から当該分野では，名実ともに世界最大規模の国際会議に発展していることがわかった。例年とおなじく，実験力学学会（SEM），米国機械学会（ASME），DARPA《防衛先進研究プロジェクト機構》，陸軍などがサポートしてい

る。その中での各分野における代表的な基調講演（Plenary Lecture）を当該分野の最新の趨勢・発展を知り得ることもできるので、以下に列記する。

5.1 特別講演

- ・平成 11 年 3 月 1 日(月)8:00～8:45
特別講演：C.L.Tien 教授 California 大学/Berkeley 校
講演題目：“Microscale Thermophysical Engineering”
(ミクロな熱物理学：熱移動，伝熱工学，ミクロ伝熱現象などを電子機器や流体力学分野と関係付けて概説)
- ・平成 11 年 3 月 1 日(月)18:00～19:00
特別講演：A.P.Pisano 教授 DARPA & California 大学/Berkeley 校
講演題目：“MEMS 2003 and Beyond:A DARPA Vision of the Future of MEMS”
(ミクロ電子機械の 2003 年 DARPA 計画とそれ以降：発展するマイクロマシン,マイクロデバイス研究開発への米国 DARPA プロジェクト支援計画などの概要紹介)
- ・平成 11 年 3 月 2 日(火)8:00～8:45
特別講演：K.Chong 教授 ,NSF/USA
講演題目：“Intelligence and Durability of Civil Structures”
(建築・土木分野などでの大型構造物の耐久性や知的システム化に関する北米研究開発状況を紹介,併せて米国基礎科学局 (NSF) 支援の関連プロジェクトを紹介.)
- ・平成 11 年 3 月 3 日(水)8:00～8:45
特別講演：Y.Miyazaki 教授, Nagoya University (Japan)
講演題目：“Smart Structures and Materials in Japan”
(日本国内での知的構造・材料に関する研究開発状況を紹介.
特に, 科学技術庁,通産省 (MITI) など国家プロジェクト支援体制やその中での代表的な研究例を紹介.)
- ・平成 11 年 3 月 4 日(木)8:00～8:45
特別講演：J.McMichel 博士 ,DARPA
講演題目：“Micro-Air Vehicle”
(敵地偵察《ビデオ撮影機能》や戦場での戦車移動指揮, または

地上波通信状態悪い近未来の高層ビル群内での通信確保のために、15cm程度の超小型飛行体研究開発 DARPA プロジェクトを紹介。バッテリーは MIT 開発のマイクロガスタービンエンジンなどを採用予定。安定飛行への乱流対策やシュミレーション、初歩的実験ビデオを紹介。）

非破壊評価部門(Non-destructive Evaluation Technique for Aging Infrastructure & Manufacturing, 3月3日～5日,併設)からの基調講演《Plenary Lectures》題目を紹介する。

- ・ 平成 11 年 3 月 3 日(水)8:00～8:45
特別講演：J.P.Gallagher 博士 ， Dayton 大学教授，
講演題目：“Maintaining Older Aircraft:The Pivotal Role for Nondestructive Evaluation and Inspection”
(Dayton 大学・経年劣化疲労航空機非破壊評価研究部門での航空機での高サイクル疲労劣化計測，寿命予測，耐久性向上などの重要性とそれらへの対策・取り組みを紹介.)
- ・ 平成 11 年 3 月 4 日(水)8:00～8:45
特別講演：L.J.Bond 博士 ， 太平洋北西部国立研究所,上級研究員
講演題目：“Predictive Engineering for Aging Infrastructure”
(ロンドン大学での超音波非破壊評価研究経験を基に，航空機，船舶，海洋構造物,橋梁，発電所などへの劣化・欠陥・強度,余寿命の非破壊計測・評価例を紹介.)
- ・ 平成 11 年 3 月 5 日(水)8:00～8:45
特別講演：C.J.Hellier 博士 ， Rockwood Service《株》副社長
講演題目：“The Role of Nondestructive Evaluation in Our Infrastructure”
(北米30社を誇る Rockwood Service《株》の非破壊計測・評価部門を指揮。各種非破壊評価手法の多重的適用による信頼性向上の必要性などを紹介.)

5.2 一般セッション

今回は，非破壊評価分野との連携で会議は企画された。以下には，“知的構造・材料”分野でのセッション項目を示す。当該分野を基礎から応用まで組み立てて推進するためには，物理化学的な材料《素材》，計測工学から電子制御,材料力学，構造設計な

ど学際横断的な研究推進システム構築が重要になること分かる。

- (1) Mathematical and Control in Smart Structures (Conf.3667)
- (2) Smart Structures & Integrated Systems (Conf.3668)
- (3) Electro-Active Polymer Actuators and Devices(Conf.3669)
- (4) Sensory Phenomena and Measurement Instrumentation for Smart Structures and Materials (Conf.3670)
- (5) Smart Systems for Bridges, Structures and Highways8conf.3671)
- (6) Passive Damping and Isolation8conf.3672)
- (7) Smart Electronics and MEMS(Conf.3673)
- (8) Industrial and Commercial Applications of Smart Technologies(Conf.3674)
- (9) Smart Materials Technologies(Conf.3675)

会議中にプログラム以外の資料が渡されていなかったため、会議の内容を正確にまとめることは困難であるが、記憶に頼って下記のように九つの分会について報告する。

・ Conference 3667: Mathematics and Control in Smart Structure

本分会では 10 セッションに分けて主にスマート構造物における理論解析手法に関する研究発表を行った。例えば、有限要素法を用いたスマート構造物の解析およびシミュレーション用ソフトウェアの開発、圧電センサ・アクチュエータを用いた構造物（飛行機の翼やフレキシブルマニピュレータ等）の最適化と制御技術、磁性材料のダイナミックス、形状記憶合金の解析モデリングと温度特性解析、振動と騒音制御等。

・ Conference 3668: Smart Structure & Integrated System

本分会は 9つのセッションで構成され、主に統合されたスマート構造システムのモデリングおよび応用に関するものでした。具体的には、圧電アクチュエータ等のヘリコプターやロボットへの応用、ER 流体や磁性流体を用いたダンパーの開発および振動制御への応用、圧電ひずみセンサや圧電 THUNDER アクチュエータ等の特性解明、構造物のヘルスマニタリング等があった。報告者も本セッションにて、圧電素子を構造物に貼り付け、縦波を発生ならびに計測することで、構造物の損傷場所の同定と集中応力の微小変化を定量かつ有効的に評価する手法について発表した。

・ Conference 3669: Electro-Active Polymer Actuators and Devices

本分会では、最近注目されている新しいタイプのアクチュエータが数多く発表された。例えば、電感プリマアクチュエータ(Electro-Active Polymers)、形状記憶ゲル、磁性ゲル、Active Polyacrylonitrile Gel, Bilayer Hydrogels, Polypyrrole-based Electrome-

chanical Actuator 等がある。本分会はかなり人気で、講演室がほぼ満室であった。また、これらの研究の大半は昨年千葉の幕張で開かれた"Fourth International Conference on Intelligent Materials"国際会議に関連発表もあったと記憶している。

・ Conference 3670: Sensory Phenomena and Measurement Instrument Instrumentation for Smart Structures and Materials

本分会では、光ファイバーセンサおよびセンサシステムに関連する発表がかなり割合を占めていた。その他に、生物センサや化学センサ、圧電センサ、AE センサなどに関するものもあり、バラエティーに富んだ分会であった。また、これらのセンサを埋め込んだ構造システムの最適設計、音響、波動などに対する信号計測技術、ウェブレットなどによるデータ処理技法、亀裂や欠陥の特徴の抽出と評価法、さらに土木構造などへの応用について発表があった。

・ Conference 3671: Smart Systems for Bridges, Structures, and Highways

本分会では、発表件数が比較的少ないため2日間だけであったが、橋や建物、高速道路などへのスマートシステムの導入、それに伴うスマートセンサの開発、制御用デバイスの開発、損傷の計測評価ならびに修復に関する技術開発について報告された。その中にひとつ印象的なのは、圧電(PVDF)フィルムを用いたひずみゲージの開発に関する発表でした。内容的にはPVDFをひずみゲージとして使用した場合、通常のひずみゲージに比べてどういう特徴があるかにポイントを当てていた。PVDFに関する基本特性に対して会場からたくさんの質問が出たことを印象に残った。

・ Conference 3672: Passive Damping and Isolation

本分会も、最初の2日間であったが、主にダンピング材料やデバイスの開発研究やそれを用いた防振技術の開発に関するものであった。例えば、ダンピングシステムのモデリングや、磁性流体・ER流体によるダンパー、受動型圧電セラミック減衰システム、受動と能動の結合による構造減衰法等。

・ Conference 3673: Smart Electronics and MEMS

本分会は表題の通りMEMSに関連するものであった。その中にはマイクロ加工より電子鼻の開発に関する研究発表があった。これはLove Waveを発生ならびに受信するデバイスをマイクロ加工により製作し、食べ物に含まれる水分の周波数を計測することで食べ物の新鮮さや味の識別を行うものでした。その他に化学センサによる空気や水の汚染状態の計測やにおいの識別などについても報告された。また、ワイアレス信号転送デバイスの開発やスマートアンテナなど興味深い発表があった。

・ Conference 3674: Industrial and Commercial Applications of Smart Structures and Technologies

本分会は報告者の研究興味に関連する研究発表がいくつかあった。特に、米国政府主導のプロジェクト型研究研コンソーシアムからの途中成果発表が注目を浴びた。

主にはインテリジェント材料の飛行機(Airvehicle, Spacevehicle)への応用などに関するものであった。

・ Conference 3675: Smart Materials Technologies

本分会では圧電アクチュエータやセンサ用材料ならびにデバイスの開発や、形状記憶合金、自己組み立てならびに自己修復材料などに関するものでした。また、圧電ファイバー、磁性記憶合金、超磁歪、薄膜化に関する報告もあった。

6. SPIE '99での研究発表(講演)について:

今回の会議で注目していた(1)米国内での知的材料・構造研究開発に関する産学プロジェクト《コンソーシアム》進展と報告者《古屋》の専門《固体スマート・アクチュエータ材料》に関するいくつかの講演に関する内容紹介と感想を以下に述べる。

6.1 知的材料・構造研究開発に関する米国産学プロジェクト《コンソーシアム》進展

3月3日《水》午後(13:30~14:50)の session-5"Smart Wing Program"で DARPA 支援の航空機スマート翼《可変翼など》研究開発プロジェクトの中間的成果発表が集中してなされた。

ここでの関連講演題目は以下の通り。

- ・ Overview of the DARPA/AFRL/NASA Smart Wing Program
- ・ Design and fabrication of Smart Wing models and SMA control surfaces
- ・ DARPA/ARFL/NASA Smart Wing second wind tunnel test results
- ・ Improved design and performance of the SMA torque tube for the DARPA/AFRL/NASA Smart Wing Program

先ず、最初に、上記 DARPA/AFRL/NASA Smart Wing Program の生まれた経緯の紹介があった。米国でも1987年頃から、構造物のスマート化《適応設計、知的設計》概念の討論が起こり、特に、軍事研究レベル(DARPA)での航空宇宙工学分野での研究開発の必要性討論が米国内での出発点だったことを示していた。1991年から国家(軍関係)支援で、DARPA(先進防衛研究プロジェクト支援機関)/AFRL《空軍研究所》/NASA《宇宙航空研究所》連携の飛行中の空力抵抗を減らす可変翼"Smart Wing

Program”プログラムがスタートした。この米国版産学官プロジェクトは5年間を区切りとしており、その期間内3年目に審査があり、参画機関《大学委託研究主体》の評価でふるいわけがなされるそうである。研究開発内容は、代表的な3種類の固体アクチュエータ《圧電、磁歪、形状記憶合金》を、可変翼制御に適用しておのおのでの可変度合い《変形量》、応答性、耐久性などを計算《シミュレーション》および実験で確認しながら進めている模様である。

参画大学としては、MIT, Maryland, Penn State, Washinton 大学などが主体で、各大学で航空機製造会社、材料・部品提供ベンチャー企業、大学研究センターからなるコンソーシアム《共同研究体》を形成しながら進めていることが紹介された。会場には参画企業グラマン社（NorthropGrumann 社）からの10分の1程度の空軍機用スマート翼モデルが提出・展示された。それは、光ファイバを翼表面(平面)内に埋め込み、かつ、フラップにはポリマー基形状記憶合金（SMA）ファイバファイバ埋め込み複合材板が使用されており、さらに翼付け根部分には SMA パイプ《20mm内径、30mm外径程度》が電気ヒータ巻きつけでセットされていた。光ファイバセンサからの数多くのセンサ導線のみならず、SMA《ファイバ、パイプ》両方に通電する電極、電線が数多く付属されており、これらセンサ・アクチュエータ駆動関係の電線電極だけでも相当な重さに達しており、本計画（スマート翼）の実現にはセンサ導線、駆動用電力の軽減化が不可欠になることが実感された。

なお、可変翼根元の SMA パイプは巻きつけ電熱ヒータで駆動させるが、その回転角度は2～3度程度であるという。それでも高速ジェット戦闘機の空力抵抗軽減化に効果はあると述べていた。

いずれにしてもお、米国内 DARPA 主体のコンソーシアムで提案され、試作されたスマート翼は、上記のような設計案によって、まだ出来たばかりの様子であった。それに組込んだスマート材料《センサ・アクチュエータ》も既存《米国内製造》の性能レベルのものの子で、我が国の通産省・NEDO プロジェクト参画企業から提供出来る素材メーカーと重工関係の企業の技術力レベルからすると、少なくともハード面では1～2年以内に同レベルもしくは性能精度では米国コンソーシアムを超えられるレベルに達することが出来ると感じた次第である。ただし、実際的な空軍機レベルを対象対にして、スマート翼の設計や空力抵抗低減効果を計算シミュレーションを行っている運用ソフトに関しては5年程度先行実績があり、その点を考慮すると日米間の本分野《スマート航空機、可変翼》における実績に基付く技術差は歴然としており、同レベルまで我が国の重工関係会社機関が追いつくには少なくとも3年程度必要であり、その間の米国 DARPA 側の当該テーマ研究の進展を考慮に入れると、同じスマート翼コンセプトでは追従不可能かもしれないという危惧も少なからず感じた次第である。

6.2 形状記憶合金 (SMA) 関係の研究開発状況とスマート機械・構造への適応研究

SMA に関しては、熱弾性マルテンサイト変態効果による大きな変形能と回復力、さらには超弾性（応力誘起型変態）による大きなトルク伝達力を有する特徴から、スマート機械構造に適用できる有力なアクチュエータとして注目を浴びており、SMA session も 4 回ほど設けられていた。

代表的な発表論文を以下に列記する。

3月3日午前

- ・ Shape Memory Alloy Consortium and Actuators., A.D. Jacono (Boeing 社)

3月4日午後

- ・ Field-induced strain in NiMnGa (Invited, M. Wuttig, Maryland Univ.)
- ・ Modeling field-induced strain in magnetic shape memory materials (O'Handley, MIT)
- ・ Thin film NiTi shape memory alloy (J.E. Favalukas, Univ. California)

最上の講演では、現在米国 DARPA 支援・ボーイング社主導で進めている SMA を組んだスマート航空機（飛行機、ヘリコプタ含む）の産学コンソーシアム研究成果と技術的問題点を紹介した。

空軍戦闘機翼付け根に回転トルク発生用の SMA-TiNi パイプを加熱して翼傾斜度を変える設計案、ヘリコプター回転翼芯棒に SMA を用いて、その大きな反力トルク伝達性を利用してヘリコプター上下運動を高効率で行おうとする設計案などが提示されている。しかし、加熱冷却時の応答性悪い点、さらには繰り返し使用時の疲労劣化（記憶ぼけ）問題がほとんど議論されていない点が問題と指摘しており、その対策として SMA 熱処理効果と使用前のトレーニング効果の有効性を述べていた。次に、磁性 SMA での最新の研究成果がその次に発表された。この分野は現在、Maryland Univ. (Wuttig 教授), MIT (O'Handley 教授), それにワシントン大学 (Inoue 教授) らが米国内ではプロジェクト研究で行っている。感熱 ΔT^* よりも早い応答性が期待でき、また、理論予測によると 10% 以上の変形が得られることを MIT 側は述べており、2000 年にはそれらが実証されてくると予測チャートを示した。Wuttig 教授によると、NiMnGa, Fe-Pd 系などでは、導入されるマルテンサイト双結晶構造《 ΔT^* 》と磁区構造の相互関係を適切に保つのが重要で、それには結晶方位制御（結晶磁気異方性）を考慮した材料開発が不可欠であると結論していた。

いずれにしても、磁性形状記憶合金 (MSMA) は現在のもっともホットなトピックスとなっており、DARPA 側も注目していた。なお、薄膜 SMA (TiNi) はその早い応答性《10 Hz 程度可能、比表面積大》がメリットでマイクロ流量制御バルブなどへの適用が期待されているが、その作製プロセス（蒸着法）などが発表されていた。

いずれにしても、SMA 開発に関しては、我が国と同レベルに有るが、米国側の方が新合金探索では先行している。わが国では製造プロセス技術・品質管理、民生部品応用例《実績》では先行している。スマート応用面では SMA 力学データ採取と航空機可変翼プロジェクトでは米国側が先行している。

6.3 その他

その他、注目すべきは、我が国でも東北大学・流体科学研究所で提案されているテーマであるが、最近の DARPA プロジェクトで SMA の応答性悪さの改善対策として、熱電変換素子 (Bi-Te) と SMA (Ti-Ni) 一体化技術テーマが採用されていた。(3月3日午前 Shape Memory Alloy Consortium and Actuators., A.D.Jaqcot(Boeing 社))

また、圧電ファイバーを用いた可変翼製作に取り組んでいる MIT, 航空宇宙工学科, Activematerials and Structures 研究センター長, J Hagood 教授グループからは、磁性粒子をポリマー内で外部磁場中で電極部に配列させて、圧電ファイバー通電電圧を低減化できる、電磁気解析と実証実験を組み合わせた、いかにも若手研究者やベンチャー企業との討論で進むアメリカ的独創型の研究成果発表があった。(3月3日、午前, Magnetic particle doping for anisotropic matrix materials inactive fiber composite, Janos&hagood, MIT)) しかし、発表はしっかり構成されており、自分の研究成果を論文を手渡しながらかき込んでくる若手研究者の熱意にはいつもながら米国の大学・研究センターで必死に上位職を狙う研究風土に感心した次第である。

さらに、併設の非破壊評価にも関連するが、圧電材料をマイクロ加工技術で 10 ミクロン以下厚さ x 400 ミクロン四方のパッチ状小片にフォトエッチ加工して、ポリマー基積層型複合材料 (CFRP パネル) 内部に埋め込み In-Situ 型スマートセンサーとして応力・損傷検出に適用した報告などが報告された。《3月3日、午後, Micro-machine Ultrasonic transducer for damage detection of CFRP composite》このことからマイクロマシン加工技術《フォトエッチプロセス》などはスマート材料デバイス・機械部品開発には欠かせないことがわかった。

7. ワシントン大学

見学日時：平成 11 年 3 月 5 日(金)

見学場所：田谷稔教授研究室 (井上漢龍教授同伴)

ワシントン大学は創立 100 年以上の長い歴史のある大学である。大学は総合大学で特に医学部は全米ランキングで 2 位である。全大学生徒数は約 4 万人で、学部生が 3 万人、修士が 5 千人、その他である。

田谷教授は東京大学卒業後 1971 年にアメリカに渡り、以後、ノースウェスタン大学、デラウェア大学で、主として、複合材料の研究を行っている。1989~1991 年の 3 年間、

東北大学で教授として材料の研究を行った経緯があり、それ以後、谷教授との関係が深い。田谷教授は現在、アメリカ国防省、ボーイング社とのプロジェクトの代表であり、年間数億のプロジェクトを行っている。田谷教授は機械工学出身で、インテリジェント材料を用いた複合材料、デバイスの設計が主流であり、多くのアイデアを持っているが、アメリカでは特許の考え方が日本と違うため、本プロジェクトでの特許権問題があると聞いた。

どんなに良い材料でも、付加価値をつけて実用化させるには、これからの時代は、どのようなデバイスに使っていくかというアイデアが一番大事であり、がそのためには材料の専門家と手を組む必要があること、(田谷教授は井上教授と共同研究を行っている)自分の仕事を成功させるためには、最小単位のプロジェクトを自分の回りに作ることが大事であると述べていた。

井上教授は、大阪大学金属工学出身で1979年にアメリカに渡米して以来、機能性材料(特に形状記憶合金：Ni₃Ti系)の研究を行ってきた。井上教授も東北大学 谷教授と何度も同じプロジェクトを経験している。現在は、同大学のプロジェクトリーダーである田谷教授とともにインテリジェント材料の開発及びそのデバイスの設計を行っている。この度のNEDO支援により、アーク溶解炉が搬入されて磁性記憶合金などの新たな材料開発を予定していた。

ワシントン大学・田谷グループは、現在でもDARPA・ボーイング社を主体とした米国でのスマート材料・構造に関するプロジェクトを行っており、研究室陣容《研究者、装置》も産学研究センターを中心にそろってきている。我が国からのNEDOプロジェクトでは、スマートアクチュエータ・素子を東北大グループと分担しており、米国側窓口として重要であり、今後の発展が期待される。

海外調査報告

1. 調査目的

「スマートマニファクチャリング技術の開発」に関する海外情報の収集を行う。

2. 調査員

大阪市立大学工学部機械工学科 助教授 元木信弥

3. 調査期間

平成11年2月28日(日)～3月5日(金)

4. 調査場所とスケジュール

2月28日(日)	関西空港より出発
2月28日(日)～3月4日(木)	アメリカ合衆国, Marriot Hotel, Newport Beach, California
3月4日(木)	ロサンジェルス空港より帰国
3月5日(金)	関西空港到着

5. 調査報告内容

アメリカ合衆国、カリフォルニア州、NewPort Beach で開催された、SPIE 1s 6th Annual International Symposium on Smart Structures and Materials に出席し、スマート材料・構造に関する最新の情報収集および出席した研究者との技術情報交換を行った。

SPIE は International Society for Optical Engineering の略号であるが、以前からスマート材料・構造への応用を目指した国際会議を開催しており、この分野では定評のある国際会議である。毎年開かれており、各国から最先端の研究、情報が集められる。

報告者は、主に光ファイバセンサ応用、数学的モデリング、 piezo および磁歪センサに関する発表を聴講した。知的材料・構造システムプロジェクトに関係の深い多くの最新研究成果、あるいは問題点などを知ることができ、大きな収穫であった。また、スマートマニファクチャリングに関しては、樹脂の硬化状態を化学的にセンシングする手法に関する発表が数件あり、特に当グループの樹脂硬化状態モニタリング手法との違いがこれからの技術開発の方向を考えるうえで大変参考になった。

6. まとめ

2月28日(日)～3月5日(金)アメリカ、Newport Beach で開催された SPIE 1s 6th Annual International Symposium on Smart Structures and Materials に出席し、情報収集を行った。この結果、今回の調査は今後の研究と応用開発に役立つものと考えられる。

国立研究所

I. 工業技術院 物質工学工業技術研究所

II. 工業技術院 名古屋工業技術研究所

(研究項目名)

大項目名 知的材料・構造システム

中項目名 スマートマニュファクチャリング技術の開発

小項目名 母構造のライフサイクル情報高度モニタリング技術とセンサ融合化技術の研究開発

(平成10年度～平成10年度)

(研究所名) 物質工学工業技術研究所

(所属名) 複合材料部

(参画研究者名) 剣持深, 高橋淳, 卜部啓, 津田浩

1. はじめに

成形中の樹脂の硬化の進展をモニタしてそれをもとに成形装置の圧力や温度の制御を行うことは、成形材の安定性・信頼性の向上とともに成形工程の効率化のために重要であり、そのためのセンシング法として電気物性を使う方法、圧電素子を利用する方法、光ファイバを利用する方法等が研究開発されている。

大型の構造物の成形やRTM(Resin Transfer Molding)では樹脂の物性変化だけでなく、硬化進展の不均一や樹脂の流動状況をモニタすることが重要となるが、硬化モニタに最もよく利用される電気物性を使う方法では一般に低周波信号が利用されているため、物性分布を知るには多数のセンサを使用する必要がある。一方、波長が成形物の寸法と同程度となる高周波(数百 MHz程度以上)の電磁波を使用すると、信号には全体的な物性だけでなく分布や局所的な変化に関する情報が含まれる。したがって、材料・構造体の表面あるいは内部に高周波電磁波の伝搬線路を構成すると、その伝搬特性から線路に沿った部分での物性変化や不連続点の存在を検出でき、成形過程のモニタのみならず成形後の健全性モニタにも利用できる可能性があるが、このような考え方に基づく成形モニタの研究開発例は、これまでに見られない。

そこで本研究では、電磁波伝搬線路による物性モニタの可能性を検討するためにモデル伝搬線路を構成し、樹脂を硬化させた際の反射波強度の周波数特性について調べるとともに、線路に局部的に樹脂を充填した際の特性的についても実験を行った。

また、光ファイバセンサは、成形工程中の応力・ひずみを検知するとともに、成形後の構造の健全性モニタにも利用可能なものとして有力である。構造体におけるセンサとしての性能には、ファイバ表面の被覆が重要な意味を持つ。これまでに、光ファイバの表面被覆を剥ぐことにより検出性能が向上する一方で、取り扱いの困難さやセンサとしての信号再現性及び強度的信頼性の低さが問題となることが明らかになっている。

そこで本研究では、光ファイバの表面被覆を剥がずに使用することにより、取り扱いの容易化とセンサとしての信頼性確保を実現する方法として、ループ型の光ファイバにおける曲げ損失を利用してモニタリングする技術について、CFRPのピン引張り試験における面

圧破壊過程をモデルとして実験的に検討した。

2. 研究内容及び成果

(a) 電磁波伝搬線路による樹脂物性変化検出

図1に示すように平行線路とマイクロストリップ線路を構成し、両端を反射・透過測定機能及び信号発生器付のスペクトラムアナライザに接続し、反射波強度の周波数特性を1.8GHzまでの範囲で測定した。平行線路は導体(真鍮)径2mm、中心間隔10mm、線路長34cmとし、これをテフロン板上に配置した。マイクロストリップ線路は、径2mmの導体とアルミシャーシの底板とで構成し、導体間隔5mm、線路長30cmとした。いずれも線路両端でインピーダンス不整合により電磁波の反射が生じ、これら反射波の干渉により線路長が半波長の整数倍となる周波数で反射波強度が極小となる。今回は、これらの線路内で樹脂を硬化させ、硬化反応の進展に伴う誘電率及び誘電損失の変化により起こる反射特性の変化から硬化進展のモニタを試みるとともに、樹脂を部分的に充填させたときの特性も測定した。試料としてはエポキシ樹脂(Epikote 828)を用い、室温において実験を行った。

図2に、マイクロストリップ線路における硬化進展に伴う反射特性の変化を示す。硬化の進展とともに極小を示す周波数が高くなるとともに極大と極小の差が大きくなっている。これは、誘電率及び誘電損失が、硬化の進展に伴う双極子の動きに対する抵抗増大により減少していることを反映していると考えられ、反応熱による温度変化と良好な対応が見られた。この図は硬化反応がゆっくりと進展した場合のものであるが、試料が厚く反応熱により硬化反応が急激に進展した場合にも、同様に硬化の進展や樹脂の流動性変化のモニタが可能であった。図3は、マイクロストリップ線路において、未硬化の樹脂を部分的に充填した時の反射特性を示す。このように充填部の長さや位置により反射特性が大きく異なり、樹脂の流れ等、局所的な状態変化の検出可能性があることが明らかとなった。

(b) ループ型光ファイバについての検討

図4右側に示すような円孔付きの平織りCFRPにシングルモードの光ファイバを歪ゲージ用の接着剤でループ状に貼り付けたものを試験片とした。センサ部の光ファイバの曲率半径は2.0~8.0mmの範囲で7種とし、それぞれ円孔縁から0.5mm離れたところに貼り付けた。治具等はJIS-7080に準拠したものをを用い、締結圧を加えずにクロスヘッドスピード0.5mm/minの変位制御でピン引張り試験を行った。そして図4の測定系により荷重、光ファイバの試験開始時点を基準とした相対的透過光強度(RPT; Relative Power Transmission)及びピン変位を測定した。

図5に光の強度が低下し始める時のピンの食い込み量と曲率半径との関係を示す。全ての場合について複数回の実験を行ったが、再現性は非常に良かった。曲率半径が小さくなるに従い感度が良好となり、最大荷重以前に破壊を検出するためには、最大荷重時のピン変位の平均値との比較から、曲率半径が2.5mm以下である必要があることが分かった。ただし実際には、面圧破壊は安定な破壊であるので必ずしも最大荷重以前に破壊を検出する必要はないと考えられる。また、曲率半径2mm近くでのセンサの信頼性や出力も実用上問

題ないことが確認された。図6に面圧破壊時の荷重、RPTとピン変位の関係を示す。最大荷重以前ではRPTの変化は見られず、最大荷重の直後からピン変位の増加に伴いRPTが減少を示した。また、RPT曲線が二段階を示しているのは、面圧破壊の複雑な変形(板面方向と板厚方向)を反映しているものと考えられる。

3. まとめ

波長が材料・構造体の寸法と同程度となる高周波伝搬線路の反射特性から、硬化時の樹脂物性モニタが可能であることが確認できた。また、線路の一部に樹脂を充填した時の測定結果からは、この方法により樹脂の流れ等局所的な状態変化の検出可能性があることが分かった。この成果をもとに、平成11年度からは「知的材料・構造システム技術開発評価」の中で、線路の伝搬特性と樹脂物性及びその分布との関係や信号処理による必要な情報の抽出法について評価・解析を行っていくとともに、構造を線路として利用する技術についても評価を進めていく。

また、光ファイバのセンサとしての信頼性及び信号再現性を向上するため、表面被覆を剥がずにループ型とした光ファイバセンサを利用したひずみのモニタリングについて、CFRPのピン引張り試験時における面圧破壊過程モニタをモデルにして検討した。その結果、ループ型にすることにより表面被覆を剥がなくても光ファイバがセンサとして十分に使用可能であることが明らかとなった。今後は、同様に上記開発評価の中で、表面被覆と強度特性の関係を中心に更に評価・解析を行っていく。

研究発表

論文

- (1)津田浩,池口貴信,高橋淳,永井英幹,剣持深:日本複合材料学会誌,24(1998)96
- (2)高橋淳,野村正人,津田浩,剣持深,福田博:日本機械学会論文集(A編),65(1999)106
- (3)H. Tsuda, T. Ikeguchi, J. Takahashi, K. Urabe: J. Mater. Sci., (投稿中,掲載決定)

口頭

- (1)津田浩,高橋淳,卜部啓,剣持深:工業技術院平成10年度機械・航空・宇宙総合推進会議総会(1998.9,つくば)
- (2)K. Urabe, J. Takahashi, H. Tsuda, K. Kemmochi: US/JAPAN Workshop on Collaborations in Materials Research(1998.10,日光)
- (3)高橋淳,武田真一,大岩功佳,津田浩,剣持深,福田博:日本機械学会第75期通常総会講演会(1998.11,熊本)
- (4)高橋淳,武田真一,大岩功佳,津田浩,剣持深,福田博:日本機械学会第75期通常総会講演会(1998.11,熊本)(注(3)とは別件)
- (5)卜部啓,高橋淳,津田浩,剣持深:第28回FRPシンポジウム(1999.3,京田辺)

特許

(なし)

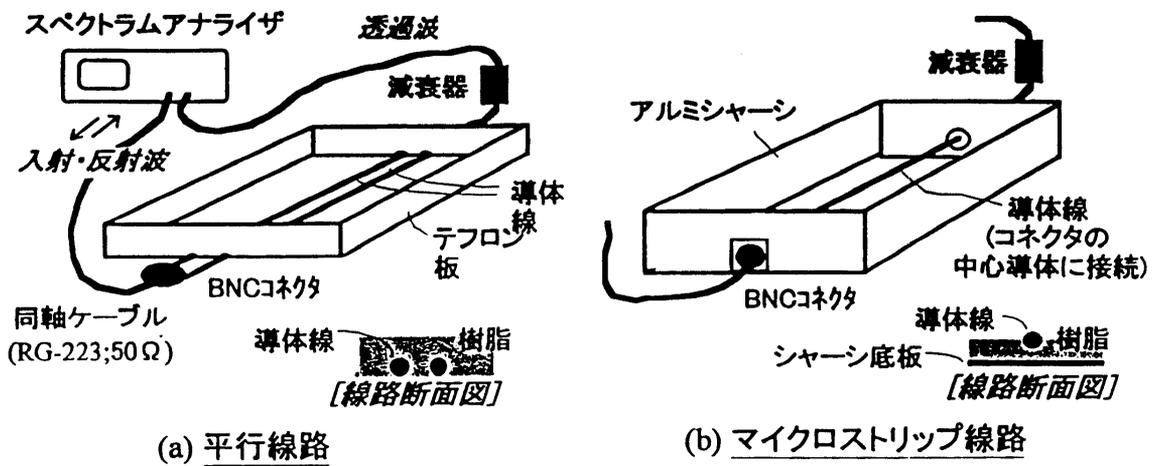


図1 高周波電磁波伝搬特性による樹脂物性変化検出 実験装置概要

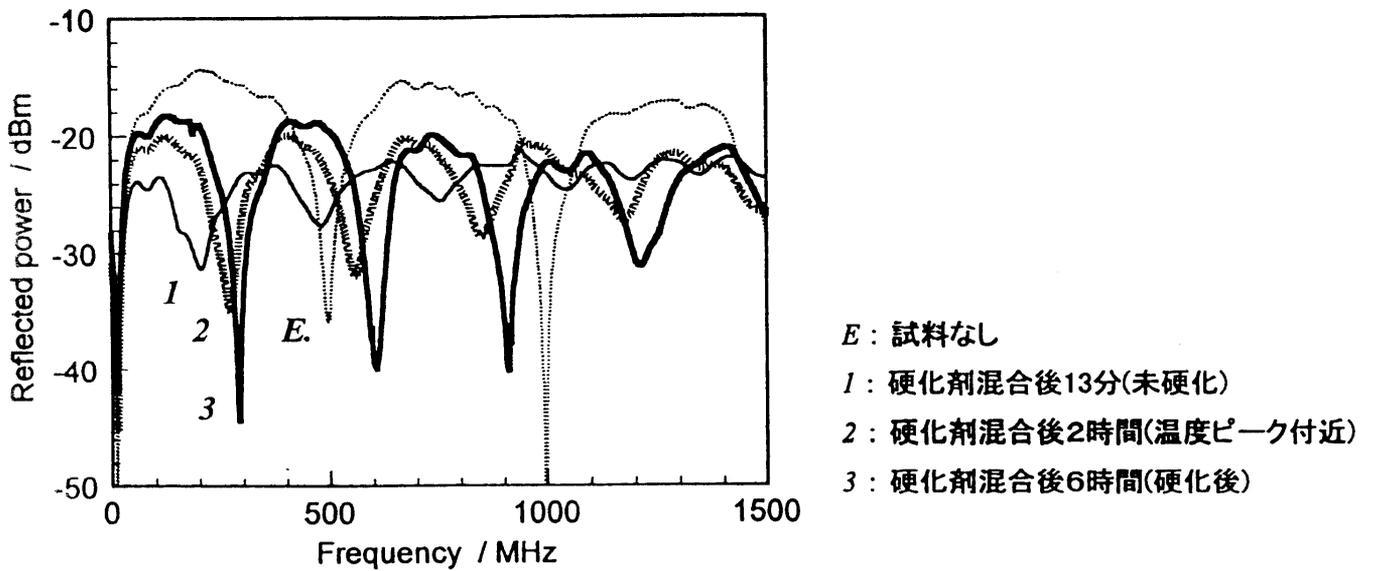


図2 樹脂の硬化進展に伴う反射強度の周波数特性変化 (マイクロストリップライン; 試料厚さ6 mm)

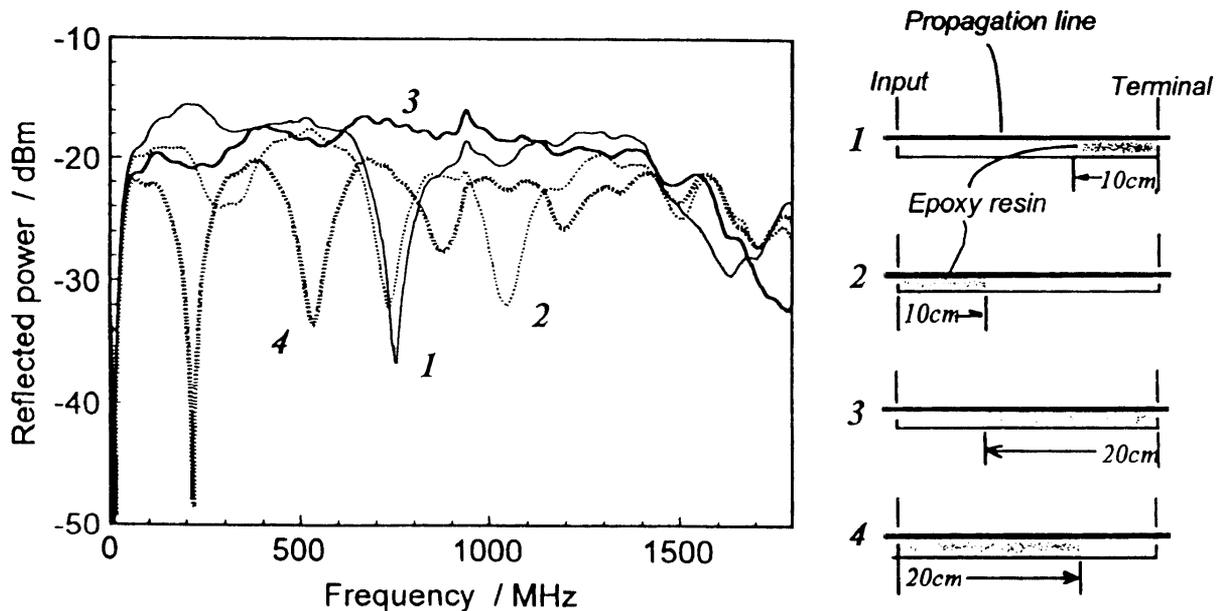


図3 樹脂(未硬化)を部分的に充填した時の、電磁波伝搬線路からの反射特性 (マイクロストリップライン; 試料厚さ6 mm)

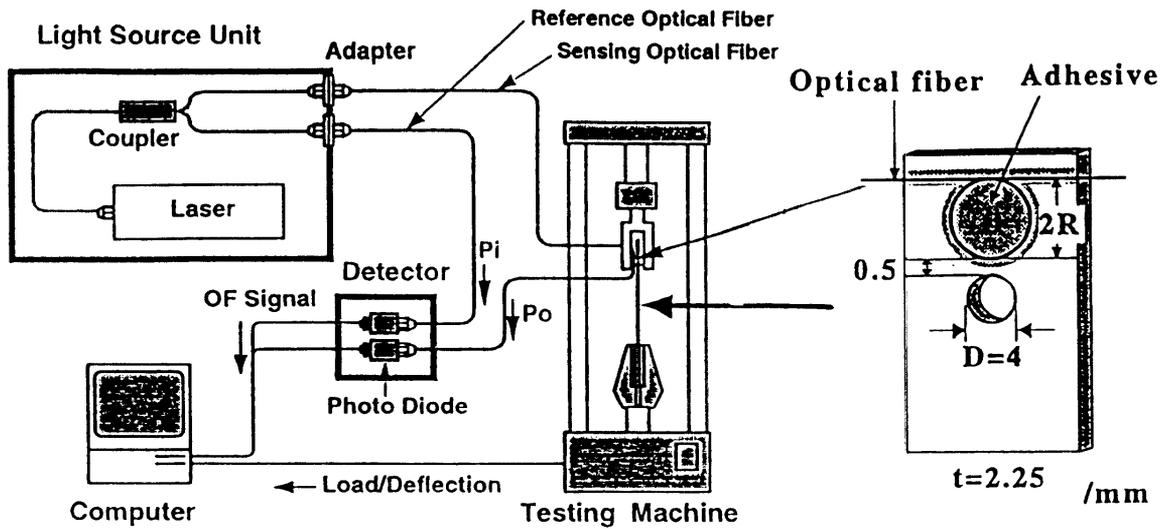


図4 ループ型光ファイバによるピン引張り試験の面圧破壊モニタ 実験装置構成

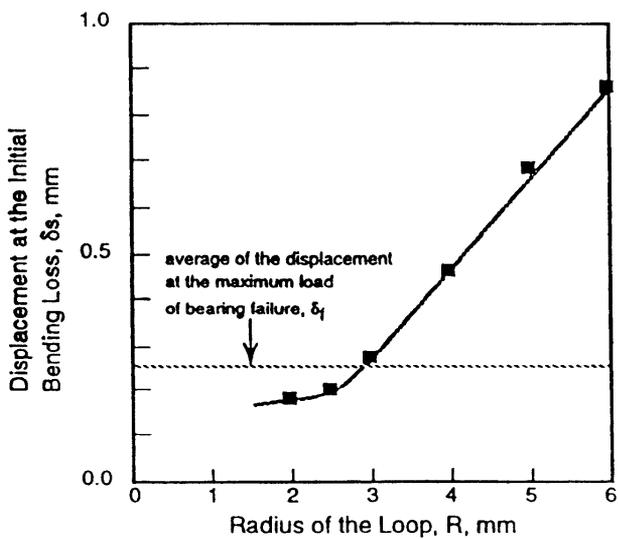


図5 光ファイバの曲率半径と面圧破壊検出感度の関係

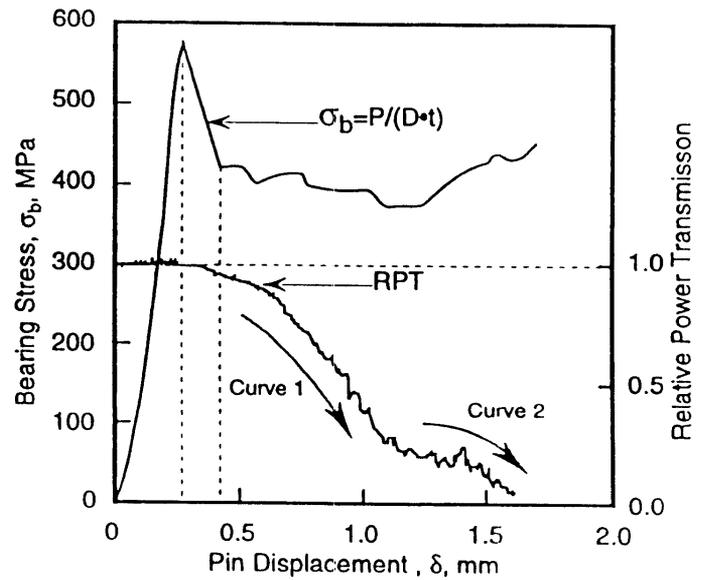


図6 面圧破壊時の荷重及びRPTとピン変位の関係

(研究項目名) 大項目：大学連携（知的材料・構造システムの研究開発）
中項目：アクチュエータ材料・素子の開発
小項目：セラミックアクチュエータのスマート化技術の研究開発
(研究期間) 平成10年度～14年度

(研究所名) 名古屋工業技術研究所
(所属名) セラミックス基礎部 電子セラミックス研究室¹⁾
セラミックス基礎部 構造セラミックス研究室²⁾
セラミックス基礎部 セラミックス素材研究室³⁾
構造プロセス部 超変形機能研究室⁴⁾
(参画研究者氏名) 1) 関谷 忠、楠本慶二、加藤一実、
都築明博、申 宇ソク、村山宣光
2) 黄 海鎮
3) 砥綿篤哉、山東睦夫
4) 小畑良洋

1. はじめに

セラミックアクチュエータは、「知的材料・構造システム」における損傷制御、振動・騒音制御、形状制御等のヘルスケアを行うための構造要素として重要な役割を担う。「知的材料・構造システム」用のセラミックアクチュエータとしては、従来以上に高出力、高変位、高機械的強度、低ヒステリシスといった特性が要求され、また、そのようなアクチュエータ材料が得られたとしても、シートや繊維のようにコンポジット化に適した形状のものに作り替える必要がある。本研究は、「知的材料・構造システム」への適用に適う性能及び形状を有するセラミックアクチュエータの開発を目的とする。

2. 研究内容及び成果

2. 1 高性能電歪セラミックスの開発

セラミックアクチュエータとは、電圧をかけると伸び縮みする特性を利用した素子であり、現在汎用されている製品はペロブスカイト構造を有するPZT系圧電体を主体として作られたもので、約1000V/mmで0.数%の歪みが得られる。このPZT系圧電セラミックスを知的材料・構造システムに適用しようとした場合、機械的強度が十分ではない、電界誘起歪みのヒステリシスが大きすぎる等、信頼性の高いシステムとする上で問題があり、それを改善したセラミックアクチュエータの開発が望まれていた。一方、こうした電気機械特性を示すセラミックスとして、他に電歪セラミックスがある。電歪性は、リラクサ型誘電体と呼ばれる $\text{Pb}(\text{B}'\text{B}'')\text{O}_3$ で表される一連の鉛-ニオブ基複合ペロブスカイト化合物に見られ、現在 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-\text{PbTiO}_3$ (PMN-PT)系ペロブスカイトがアクチュエータとして実用化されつつある。電歪セラミックスは、その歪み量がPZT系圧電セラミックスと比べて幾分小

さいこととその合成が非常に難しいことが問題であるが、焼結性が良い、機械的強度が高い、電界誘起歪みのヒステリシスが小さい等の特徴もあるため、もし、その簡便な合成法が確立でき、歪み量の問題が解決できれば、知的材料・構造システム用のアクチュエータ材料としての利用価値はむしろ高いといえる。

そこで、本年度は、高性能セラミックアクチュエータを電歪セラミックスに求めることを考え、高電歪性を示すペロブスカイト組成の探索を目標とし、得られた組成物の電歪性を評価した。まず、ペロブスカイト化合物として、PMNのMgをNiで置き換えた $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ (PNN)に注目し、その合成法を検討した。一般に、鉛-ニオブ基複合ペロブスカイトの合成においては、反応の初期にパイロクロア相が生成しやすく、これが最後まで残留するため純粋なペロブスカイト相とすることが困難であり、いかにしてパイロクロア相を生成させない合成法を考えるかが重要な課題であった。特にPNNの合成は困難で、これまで純粋なペロブスカイト相を得るのに成功していなかったものである。パイロクロア相が生成しないPNNの合成法について鋭意検討した結果、ペロブスカイト組成にさらに過剰のPbOを添加した混合物を1000℃で1時間程度加熱した後、酢酸溶液で余分のPbOを溶かし出すという方法で、PNNの単一相が得られることがわかった。これは、過剰分のPbOによって生成した液相がペロブスカイトの生成反応を促進する効果によるものと思われる。次に、 PNN-PbTiO_3 (PT) 固溶体の合成を行い、PNN-PT系状態図を作成し、種々の組成物の誘電特性を評価した。その結果、PNN-PT系では、約30%PT付近にペロブスカイト構造が菱面体から正方晶構造に変化する相境界が存在し、誘電率もそこで異常増加することが明らかとなった。相境界付近では、ペロブスカイト構造が不安定化するため、より変位しやすくなり、高い歪みが期待される。種々の組成のセラミックの電界誘起歪み($\Delta L/L$)を測定した結果、予想したとおり、30%PT付近で高い電歪性が観察された。中でも最も高い歪みを示したのは29%及び30%PT組成のもので、1500V/mmで約0.25%の歪みが観察された。この歪み量は、PMN-PT系セラミックよりも遙かに大きく、PZT系圧電セラミックに匹敵するものであった。また、ヒステリシスがPZTと比べて格段に小さく、印加電圧をゼロにしたとき歪みもゼロに戻ることが認められ、制御性の良いセラミックアクチュエータが実現できることが示唆された。PNN-PTセラミックがこれほど優れた電歪特性を示すことはこれまで気づかれていなかった事実であり、知的材料・構造システム用の高性能セラミックアクチュエータ材料の開発という当初の目標は達成されたといえる。

2. 2フレキシブルアクチュエータシートの開発

PZTセラミックの破壊強度は100MPa前後であり、知的材料・構造システム用としては十分とはいえない。アクチュエータをセラミックの形で用いる場合、セラミックが剛性であるために、かえって、繰り返し使用する間に応力に耐えきれなくなると亀裂を生ずることになる。セラミックでは粒子の方が強靱で、亀裂は粒界に沿って発生する場合が多い。もし、粒界層が柔軟な材料から成っていれば、そこで破壊応力が緩和され、亀裂は抑制されるはずである。すなわち、PZT単結晶粒子を作成し、それを一粒ずつ一層に並べ、高分子バインダで結合したフレキシブルアクチュエータシートの考えである。ここで、単結晶粒子は、アクチュエータ機能を効率的に発揮できるように、100 μm 前後のa面とc面からなるキューブ型に作成し、これを分極軸がシート面に垂直になるようにするためキュー

ブ面をシート面に平行に並べる。こうしたフレキシブルアクチュエータシートが実現すれば、構造体表面に張り付けての騒音・振動制御用アクチュエータとしての利用が考えられる。

本年度は、フレキシブルアクチュエータシートの開発の一環として、PZT単結晶粒子の合成と粒径制御法の検討を行った。採用したPZT組成は、キューブ状の単結晶粒子とするために、MPB組成よりもわずかにPT側にずらした正方晶領域の $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ である。これに、ペロブスカイト： $\text{PbO}=1:4$ となるように過剰の PbO を添加した混合物を $1100\sim 1200^\circ\text{C}$ で3時間加熱した後、 $5\sim 10^\circ\text{C}/\text{h}$ の速度で徐冷した。次に、加熱物を酢酸溶液で処理し、余分の PbO を溶かしたし、PZT単結晶粒子のみを取り出した。結果として、得られたPZT粒子は、キューブ状の明らかに単結晶の様相を呈しており、a面とc面から成るものであることがわかった。単結晶粒子は、加熱温度が高く、冷却速度が遅いほど大きくなる傾向があったが、それらを調節することによって $50\sim 100\mu\text{m}$ の間でサイズを任意に制御できることがわかった。今後は、どのようにしてPZT単結晶粒子を一粒ずつ一層に並べ、どのような高分子で結合するか等の検討を行い、騒音・振動制御用アクチュエータとしての特性評価を行う計画である。

3. まとめ

平成10年度は、信頼性の高い知的材料・構造システムを構築する上で、セラミックアクチュエータとしては従来のPZT系セラミックスではその期待に十分応えられないとの考えから、さらに高性能なセラミックアクチュエータの開発を目指し、素材開発を中心に研究を進めた。目標通り、ペロブスカイト構造を有する電歪セラミックスの中に、PZTよりも優れたアクチュエータ特性を示す素材を見いだすことができた。これと同じ方法論を用いることによってさらに他の高電歪性ペロブスカイト組成の探索ができる見通しが得られており、今後は、高性能電歪ペロブスカイトを用いてのシート化や繊維化等、形状付与技術の開発を行う予定である。

研究発表

1. 新聞発表

- 1) 高純度電歪セラ開発、日刊工業新聞、1998、8月。
- 2) 伸び調整 電圧処理不要 一名工研 セラミックス開発一、日経産業新聞、1999、1月。
- 3) 新しい電歪セラミックスを開発 一名工研、簡便な合成法も一、化学工業時報、1999、1月。

2. 特許出願

- 1) 高性能電歪セラミックス、楠本慶二、関谷 忠、平10特願第176590号。
- 2) 高性能圧電セラミックス及びその製造方法、楠本慶二、関谷 忠、平10特願第377329号。
- 3) 高性能電歪セラミックス、楠本慶二、関谷 忠、米国出願中、平成11年2月。
- 4) 高性能圧電セラミックスとその製造方法、楠本慶二、関谷 忠、平10特願第87817号。

3. 論文発表

- 1) Preparation and Electrostrictive Properties of PMN-PT Solid Solutions by Excess PbO Addition.
K. Kusumoto and T. Sekiya, J. Korean Phys. Soc., 32, S1190-1191(1998).
- 2) Flux Growth and Properties of $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbTiO_3 Single Crystals.
T. Sekiya, K. Kusumoto, H. J. Hwang, J. P. Reyes, J. P. Chaminade and J. Ravez, J. Korean Phys. Soc., 32, S1201-1203(1998).
- 3) Preparation and Electrostrictive Properties of $\text{Pb}(\text{M}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ -based Ceramics (M = Mg, Ni, Zn).
K. Kusumoto and T. Sekiya, Proc. 2nd Japan-France Seminar on Intelligent Materials and Structures, pp.49-52, 1998, Strasbourg, France.
- 4) Processing and Properties of $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $x\text{PbTiO}_3$ Solid Solutions from MgO-excess Compositions.
K. Kusumoto and T. Sekiya, Mat. Res. Bull., 33, 1367-1375(1998).

4. 口頭発表

- 1) Preparation and Electrostrictive Properties of $\text{Pb}(\text{M}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ -based Ceramics (M = Mg, Ni, Zn).
T. Sekiya, Seminaire a Institut de Chimie de Matiere Condensee de Bordeaux, 1998, 7月, Bordeaux, France.
- 2) Preparation and Electrostrictive Properties of PMN-PT and PNN-PT Ceramics in a New Process.
関谷 忠, 楠本慶二, 第55回電子セラミックスプロセス研究会, 1998, 7月, 静岡.
- 3) Development of $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $x\text{PbTiO}_3$ Electrostrictive Ceramics for High Displacement Use.
K. Kusumoto and T. Sekiya, 4th International Conference on Intelligent Materials., pp. 74-75, 1998, 10月、幕張.
- 4) $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $x\text{PbTiO}_3$ -固溶体の合成と電歪特性.
関谷 忠, 楠本慶二, 第18回電子材料研究討論会, 1998, 10月, 川崎.
- 5) PNN-PT単結晶のフラックス育成と誘電・電歪特性.
関谷 忠, 楠本慶二, 平成10年度日本セラミックス協会東海支部学術研究発表会, pp. 9, 1998, 12月, 名古屋.
- 6) セラミックアクチュエータ材料の最近の研究開発動向.
関谷 忠, 中部知的材料システム研究会, 1999, 3月.

5. その他

- 1) 電圧をかけると伸び縮みするセラミックスー新しい電歪セラミックスの開発に成功ー.
関谷 忠, 工業技術, 40(2), 10(1999).

本報告書の内容を公表する際はあらかじめ、
新エネルギー・産業技術総合開発機構基盤技術
研究開発室の許可をうけて下さい。

電話 03 - 3987 - 9389 (直通)