

関西大学審査学位論文

新しいヒューマンマシンインターフェースの創出を  
目指した圧電性 L 型ポリ乳酸の工業的利用に関する研究

2014 年 3 月 22 日

安藤正道

# 目次

## 第1章 序論

1.1 背景	
1.1.1 ユーザーインターフェースの進化と今後の展開	1
1.1.2 圧電性ポリマーとそのセンサ応用	4
1.1.3 生分解性プラスチックとしての PLA	6
1.1.4 PLLA の結晶構造と圧電性	11
1.2 本研究の目的	18
1.3 本論文の構成と概要	19

## 第2章 圧電性 PLLA フィルムの工業化に関する検討

2.1 はじめに	21
2.2 PLLA の示差走査熱量測定とその考察	
2.2.1 延伸、熱処理後の示差走査熱量測定	21
2.2.2 延伸処理後(アニール前)の DSC 分析結果に対する考察	23
2.2.3 アニール処理後の DSC 分析結果に対する考察	24
2.2.4 PLLA フィルムの延伸処理の方針	24
2.3 工業化に向けた管理パラメータと処方	
2.3.1 圧電性 PLLA フィルムの目標特性	25
2.3.2 圧電性を決定づける特性要因	26
2.3.3 圧電性 PLLA フィルムの工業化パラメータの検討	27
2.4 圧電定数測定方法に関する検討	
2.4.1 応力電荷法測定による測定ばらつきの要因	31
2.4.2 目標測定精度と測定システムの実力	33
2.5 本章のまとめ	35



4.5	押圧力検知タッチパネル（3次元タッチパネル）	
4.5.1	応用デバイス	107
4.5.2	デバイス（タッチスクリーンセンサ）の基本構造	108
4.5.3	カバーガラス4辺固定時の押圧検知感度改善	116
4.5.4	押圧レベル検知積分回路とその問題点	121
4.5.5	押圧力検知タッチパネル	123
4.6	フレキシブルデバイス向けタッチパネル	
4.6.1	応用デバイス	127
4.6.2	曲げ・ねじり動作の検知と電極設計	128
4.6.3	曲げ・ねじり検知タッチパネル	135
4.7	本章のまとめ	138
<b>第5章 今後の展望</b>		
5.1	はじめに	139
5.2	ずり変形を直接利用したラビングセンサ	139
5.3	PLLAのアクチュエーター利用	142
5.4	PLAの巨大圧電定数発現の可能性	
5.4.1	巨大圧電定数発現の原理	143
5.4.2	圧電定数の見積もり	144
5.4.3	マイクロ波を用いた分子の配向制御	146
5.4.4	実験結果	148
5.5	本章のまとめ	150
<b>第6章 結論</b>		151
付録		155
参考文献		175

## 第1章 序論

### 1.1 背景

#### 1.1.1 ユーザーインターフェースの進化と今後の展開

2001年にスクロールホイールを搭載した携帯型デジタルオーディオプレーヤーが登場した(図1-1)。ハードディスクドライブを搭載し、1000曲以上の音楽を持ち運べることを謳い文句にして売り出され、市場では大ヒットとなった。その後、音楽をインターネットからダウンロードできるシステムとの融合により、さらにユーザーの支持を集め、一層急速な勢いで広く普及するに至った。やがてハードディスクドライブはフラッシュメモリに置き換わり、装置はさらに小型化された。大量の音楽のリストを小さな携帯型オーディオプレーヤーで扱うには使い易いユーザーインターフェイス: User Interface, (UI) が必須である。

スクロールホイールとこれに連動して動くソフトウェアはこれまでのUIとは異なりユーザーに直感的な操作感覚をもたらした。また同時にユーザーに対



(Apple Inc.製 初代 iPod®)

図1-1. スクロールホイール搭載携帯型デジタルオーディオプレーヤー

し大量の音楽を持ち運べる便利さと機器を操る楽しさを同時に与えた。この機器の登場は、各メーカーに対してヒューマンマシンインターフェイス：Human-Machine Interface, (HMI) の再考を迫るきっかけとなった。さらに2007年には、オーディオプレーヤーの操作面全面をタッチパネルとし、電話、インターネット、電子メールが扱える携帯型情報端末が誕生した。現在ではスマートフォンと呼ばれるこの機器は、スクロールホイールの操作感覚をそのまま引き継ぎ、タッチパネルで同様の操作を行えるようにしただけではなく、フリック操作やピンチング操作等の新しい操作法を誕生させ、これまでにはない楽しく便利な操作感覚をユーザーに与えた。

タッチパネルは誕生してから既に長い年月が経っている。操作面がタッチパネルのみで形成されている携帯電話は1990年代に既に日本のメーカーから発売されている。しかしながらこれは広く普及するには到らなかった。その原因は、単にこれまでのボタンがタッチパネル操作に置き換わっているだけであり、確実にクリック感覚が得られる実際のボタンと比較して、操作感のない欠点だけが強調されたという点が考えられる。ここで言えることは、ユーザーに対して新しい感覚、楽しい感覚をもたらす便利なHMIが非常に重要であるという点である。もちろんこれらの技術の進歩においては、ディスプレイ技術の進化、CPUの進化、電池の進化、通信技術の進化、OS、ソフトウェアの進化が必要であることは言うまでもない。いずれの技術の進化もそのスピードは目覚ましいものがあり、特にディスプレイに関しては、高精細化、薄型化、低消費電力化、低コスト化が進んだ。これらの技術によりテレビ(TV)やパーソナルコンピュータ：Personal Computer, (PC)の様相は一変し、2010年にはスマートフォンのヒットに触発されたタブレット型PCが誕生した。タブレット型のPCもしくは操作端末もタッチパネル搭載携帯電話と同様に過去に既に登場していた物であるが、操作感覚が全く異なるため同じ物として認識されていない。現在のスマートフォン、タブレット型PC等のタッチパネル搭載機器の人気の原因の一つは、タッチパネルによる操作が極めて直観的であるという点である。

スマートフォンにせよ、タブレット型PCにせよ、その爆発的な普及によっ

て機器自体の個性は失われつつあり、各メーカーとも新しい HMI の開発にしのぎを削っている。これらの機器の普及に影響を受け、多くの機器の操作スイッチにおいて、ディスプレイ装置とタッチ式操作装置とが対となって搭載される例が極めて多くなってきている。今の流れからみて当面タッチパネルが HMI の主流であることは揺るぎない。しかしながら意図しない操作に反応してしまうという煩わしさもあり、より確実性の高い入力の実現が求められている。或いは全く逆のアプローチとして非接触による入力等も求められ始めている。

ディスプレイ装置はガラスを基体とする液晶ディスプレイ : Liquid Crystal Display, (LCD) が主流であるが、ディスプレイ装置そのものがフレキシブルである有機 EL ディスプレイ : Organic Electro-Luminescence Display, (OELD) {または Organic Light-Emitting Diode Display, (OLED)、最近では OLED という呼称が一般的であるため本論文ではこれ以降 OLED と記す。} もどんどん進化を遂げている。近い将来プリンテッドエレクトロニクス技術と統合され、デバイス自体がフレキシブルであるような物も検討され始めている。今後の機器開発において「フレキシビリティ」は非常に重要な意味を持つキーワードの一つである。このような機器に対する有効な HMI の開発も切望されている。

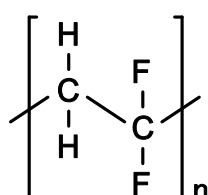
以上のような背景から、これからの HMI 開発にとって重要なキーワードをまとめると以下のようなになる。

- (1) 直観的な操作感覚 (新しい、楽しい、使い易い、解り易い)
- (2) 確実な操作認識 (直観的な操作を補助するセンシング)
- (3) フレキシビリティ (デバイスそのものの方向性)

このような HMI の開発の方向性に対して、柔軟で加工が容易な有機圧電フィルムはその有用性が非常に注目されつつある。

### 1.1.2 圧電性ポリマーとそのセンサ応用

圧電性高分子（圧電性ポリマー）はフィルムに加工することが可能で、その誕生以来様々な用途が模索されてきた。圧電性ポリマーとして最もよく知られているものはポリフッ化ビニリデン：poly(vinylidene difluoride), (PVDF) である。PVDF は元来大きな誘電率を持つポリマーとして長年知られていたが、1969 年に河合によりその一軸延伸フィルムが大きな圧電性を示す圧電性ポリマーであることが明らかにされ、その後多数の詳しい検討が加えられた [1~10] 。



PVDF

図 1-2. ポリフッ化ビニリデン

PVDF の用途として最も活発に考慮されてきたのがアクチュエーター、超音波トランスデューサー等の用途に関するものである [11~14]。PVDF の結晶は極性のある斜方晶を表す点群  $C_{2v}$  に属する。その圧電テンソルは式(1-1)のように表される。

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{25} & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix} \quad (1-1)$$

PVDF フィルムに圧電性を発現させるためには、試料を一軸延伸して分子を配向させ、ポーリング処理を行う必要がある。PVDF フィルムの対称性を表す点群も  $C_{2v}$  となり PVDF 結晶の点群と等しい [15]。極性結晶は焦電性を有する、



即ち PVDF は圧電性と焦電性を有するポリマーである。PVDF の圧電歪定数として主として機能するものは  $d_{33}$  であり、 $d_{31}$ ,  $d_{32}$  はポアソン比に応じて発現する。PVDF の  $d_{31}$  は約 20~30pC/N もの値となることが知られており、数百 V~数 kV の電圧を印加すれば、アクチュエーターや超音波トランスデューサーとして十分な機能を果たす。また可聴域のスピーカーに用いられることもある[16~22]。これらの用途は PVDF の逆圧電効果を用いたものであるが、圧電効果を利用したセンサへの応用も検討されてきた。ポリマーの特徴はその加工性と柔軟性である。薄くしなやかであるため力覚センサや変位センサに有望な材料として考えられてきた。また、タッチパネルを含むポインティングデバイスの押圧力検知等の用途に向けてこれまで検討がなされてきたが、現在市場において実用化されたものはほとんどない[23~27]。圧電効果を利用したセンサ利用における最大のネックは焦電性である。PVDF を力覚センサ、変位センサとして HMI に利用した場合、操作者の手の温度によりセンサが反応する、また内部のアクティブ系の電子部品から発生する熱、或いは外部から到来する赤外線により信号が出力されるために出力信号が安定しない。

圧電性ポリマーとして知られているものには PVDF の他に、

ポリ- $\gamma$ -メチル-L-グルタメート : poly( $\gamma$ -methyl-L-glutamate), (PMLG)

ポリ- $\gamma$ -ベンジル-L-グルタメート : poly( $\gamma$ -benzyl-L-glutamate), (PBLG)

セルロース : cellulose

コラーゲン : collagen

ポリプロピレンオキシド : poly(propylene oxide), (PPO)

ポリ乳酸 : poly(lactic-acid), (PLA)

ナイロン 11 : poly(amide)11, (PA11)

ポリフッ化ビニル : poly(vinyl fluoride), (PVF)

ポリ塩化ビニル : poly(vinyl chloride), (PVC)

ポリ尿素 : poly(urea), (PU)

等がある[28~41]。PA11、PVF、PVC、PU はいずれもポーリング型高分子であり、焦電性を示す。一方キラル高分子である PMLG, PBLG, cellulose,

collagen, PPO, PLA には焦電性がない。この中でも PLA は大きな圧電率を持ち、圧電性を発現させることも比較的容易である。またこの他に透明度が高い等の優れた特徴を示す[42]。しかしながら PLA はこのように優れた特徴を持つにもかかわらず長い間大きく注目されることがなかった。PLA が大きく注目されるきっかけになったのは、全世界的な環境意識の高まりから生分解性プラスチックへの注目が高まったことによる。

### 1.1.3 生分解性プラスチックとしての PLA

一般にプラスチックと言えればほとんどの場合石油化学により生み出されたポリマーを用いて作られた製品を指す。その一般的なイメージは軽い、安い、成形し易いというものである。もちろんポリマーには数多くの種類と機能があり、光学特性に優れたもの、機械特性に優れたもの、電気特性に優れたもの等、個々のポリマーの持つ特徴は枚挙に暇がない。それゆえその用途も多岐に亘り、もはや我々の生活には無くてはならない物質となっている。しかしながら、昨今の全世界的な環境意識の高まりにおいて、ポリマーは厄介者扱いされる場合が多くなっている。つまり利用後の廃棄物処理において大きな問題があると認識されている[43~47]。その主たる理由としてあげられるものは以下のとおりである。

- (1) 埋め立てても長期にわたって分解されない。
- (2) 焼却により塩化水素、ダイオキシン等の有害物質や地球温暖化の原因となる二酸化炭素が排出される。
- (3) 再利用において分子量が低下する等の理由により物性が変化しリサイクルが行いにくい。
- (4) 焼却時に発生する熱量が大きく、焼却炉の内壁を傷める。

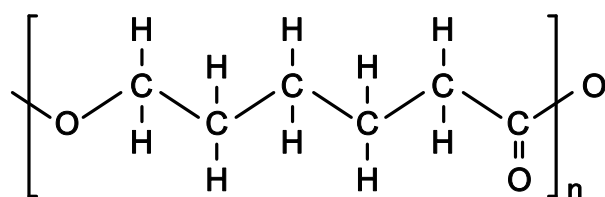
一般的にこのような問題の対象とされるポリマーは、ポリエチレン：poly(ethylene), (PE)、ポリプロピレン：poly(propylene), (PP)、ポリスチレン：

poly(styrene), (PS)、PVC 等の大量に使用されているポリマーである。最近では、ペットボトルとして大量に用いられているポリエチレンテレフタレート：poly(ethylene terephthalate), (PET) の廃棄物処理が大きな問題となっている。このような環境問題を解決するために、一躍脚光を浴びたのが生分解性ポリマーである。生分解性ポリマーは 1989 年頃からその開発が注目されてきた。生分解性ポリマーの長所としては以下のような点が挙げられる。

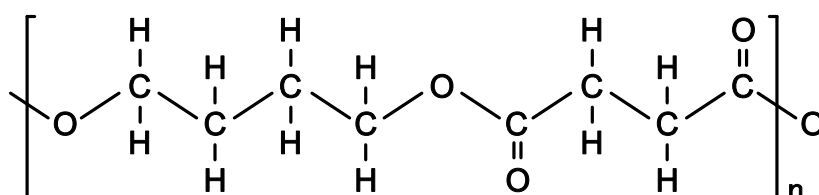
- (1) 使用後に水と二酸化炭素に分解されるため人体に有害な物質が出ない。
- (2) 生ゴミとともにコンポスト化され堆肥や土壌改良材として大地に還元することができる。
- (3) 農林水産資材や建築資材として使用後回収の必要がなく省力化に貢献できる。
- (4) 埋め立て後の分解による体積減少により埋め立て処理場の延命が図られる。

一般的によく誤解される点であるが、石油等の化石燃料を使用しないものを生分解性ポリマーというわけではない。石油を原料とする生分解性ポリマーとしてポリ- $\epsilon$ -カプロラクトン：poly( $\epsilon$ -caprolactone), (PCL)、ポリブチレンサクシネート：poly(butylene succinate), (PBS) とその共重合体等が挙げられる。これらの分子構造を図 1-3 に示す[48, 49]。

石油を原料とせず、カーボンニュートラルな生分解性ポリマーとして特に注目され、1995 年頃から盛んに研究が進められたものが PLA である。乳酸は 1 つの不斉炭素を持ち、光学異性体である L 体と D 体の 2 種が存在する。L 体のみを重合させたものは、ポリ-L-乳酸：Poly(L-lactic acid), (PLLA)、D 体のみを重合させたものは、ポリ-D-乳酸：Poly(D-lactic acid), (PDLA) と呼ばれる。これらはその立体配置により、互いに逆回りのらせん構造をとることが知られており、PLLA は左巻きのらせん構造、PDLA は右巻きのらせん構造となる。PLA の分子構造を図 1-4 に示す。

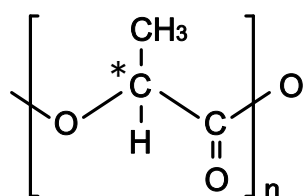


PCL



PBS

図 1-3. 石油を原料とする生分解性ポリマー



PLA

図 1-4. ポリ乳酸

PLA の合成手段としては直接重合する方法と、乳酸の環状二量体であるラクチドを経由する方法が知られている（図 1-5）。市場に供給される PLA の多くはラクチドを経由する方法がとられている。乳酸を加熱脱水重合すると低分子量の乳酸オリゴマーが得られる。このオリゴマーをさらに減圧下加熱分解することにより、ラクチドが得られる。ラクチドは金属塩の触媒存在下で容易に重合し、ポリマーとして利用可能な PLA ができる。PLA の原料となる乳酸は、

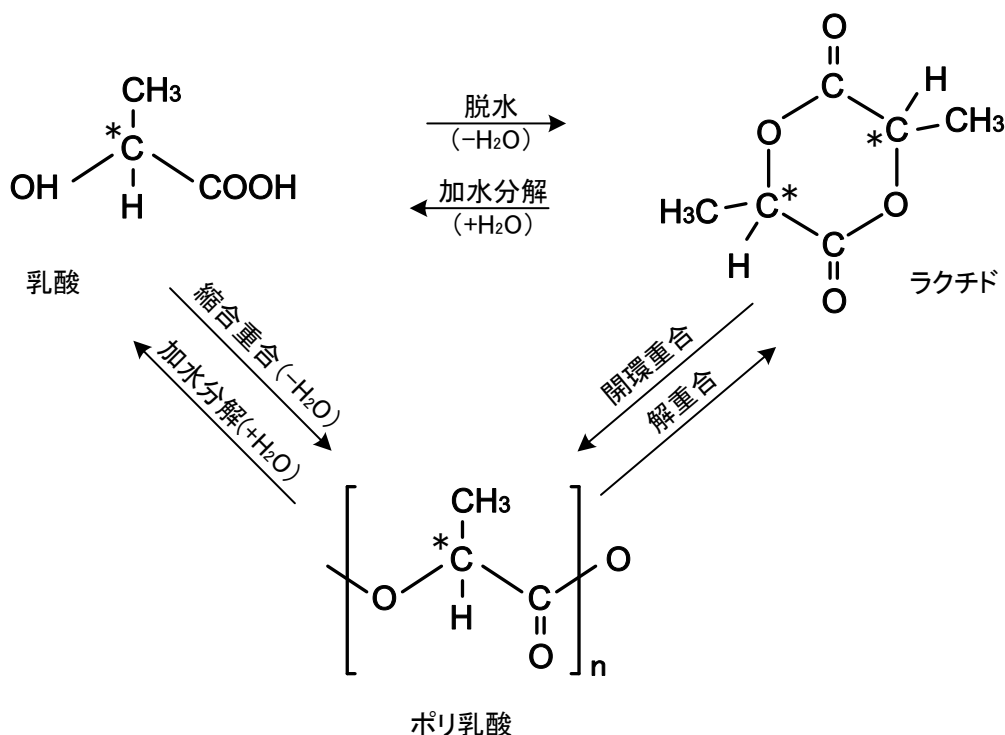


図 1-5. PLA の合成経路

トウモロコシ等から得られる澱粉を乳酸菌により乳酸発酵させることにより製造される。澱粉は植物の光合成により得られる、即ち大気中の CO<sub>2</sub> および水分から合成される。PLA はその澱粉を原料としているため、製造から廃棄、分解に至るまでのライフサイクルにおいて、製造工程で使用されるエネルギーを除けば大気中の CO<sub>2</sub> を増加させることはない。これがカーボンニュートラルと言われる所以である。また PLA はベンゼン環や塩素、フッ素を含まないため、焼却したとしても有害物質を生じる可能性が低い。微生物の力を借りて作製した乳酸はそのほとんどが L 乳酸となるため、一般的には PLLA が流通している。ただし、精製の程度により通常は若干量の D 乳酸単位が含まれている。特別な場合を除き、これ以降 PLLA を主体として記述を進める。

PLLA は加水分解により分解され、最終的には水と CO<sub>2</sub> に分解される。PLLA は、高温高湿下にさらすか、堆肥等の加水分解を促進する微生物がいる環境に置かれることにより容易に分解する。これが生分解性プラスチックと言われる

所以である[50~60]。PLLA は生分解性プラスチックとして有名になったため、一般的に分解し易いというイメージが付きまとうが、通常的环境下においては極めて安定なポリマーである。しかしながら、工業製品として一般によく利用される、ポリカーボネイト：polycarbonate, (PC) → {パーソナルコンピューター(PC)と区別するためにアンダーバーを付加して表記する}、アクリル：poly(methyl methacrylate), (PMMA)、アクリロニトリルブタジエンスチレン：acrylonitrile-butadiene-styrene, (ABS)、PET、PS、PP 等に比べて高温高湿耐性は劣る。例えば 60°C93%といった環境下では短時間で分解が進んでしまう。実際に家庭用電化製品、電子工学機器、或いは自動車への利用において、PLLA そのままではそれらに要求される高温耐性または高温高湿耐性の水準を満たすことはかなり難しい。そのため、これらを克服するための様々な手法が検討されてきた。主なものとして、放射線架橋、ステレオコンプレックス化、造核材による結晶化促進、アロイ化等である[61]。これまでの検討は機構構造体或いは繊維向けのエンジニアリングプラスチックとしての PLLA の耐久性の向上であり、その電気特性や光学特性を考慮した検討はほとんど行われてこなかった[62, 63]。PLLA の圧電性、透明性を活かした電子工学的用途に関してはその電気特性、光学特性をも考慮した耐久性の向上の研究が必要である。これに関しては第2章で述べる。

#### 1.1.4 PLLA の結晶構造と圧電性

PLLA は結晶性高分子である。延伸により分子を配向させ熱処理を施した PLLA には分子が折りたたまれたラメラ結晶と、ラメラ結晶同士をつなぐタイ分子鎖が近接して結晶化した伸び切り鎖結晶が形成されている。圧電性 PLLA の結晶化度は約 40~50%程度である。ラメラ結晶も伸び切り鎖結晶もマクロ的な圧電特性を発現するためのミクロ的な基本素子として機能する。ただし、PLLA に対し未延伸での熱処理、或いは過剰な熱処理を行った場合、球晶が成長する。球晶は無配向であるため圧電性を示さない。PLLA ラせん分子は 10 モノマーで 3 周期を形成する  $10/3$  構造となっている。 $10/3$  の結晶構造を図 1-6 に示す[64, 65]。

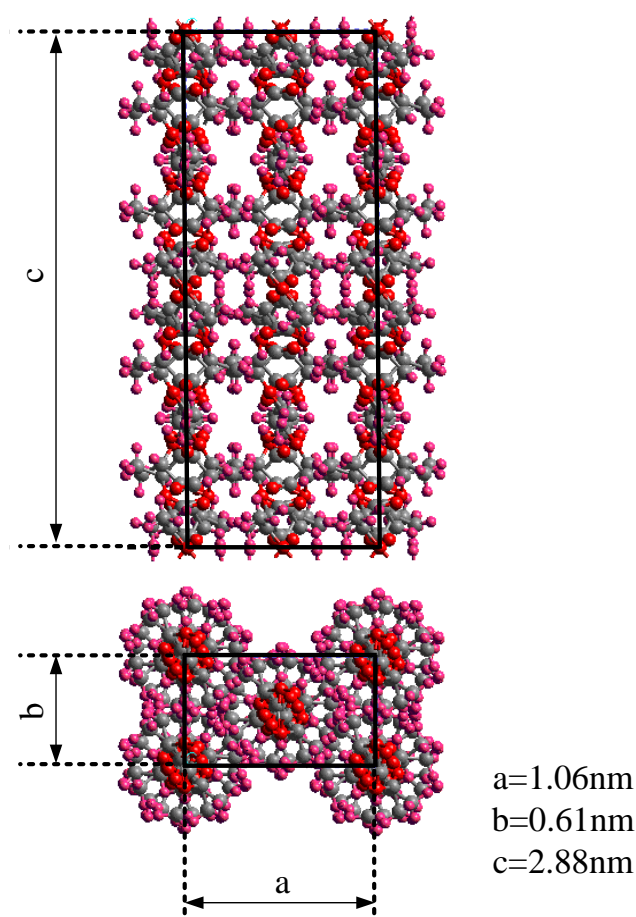
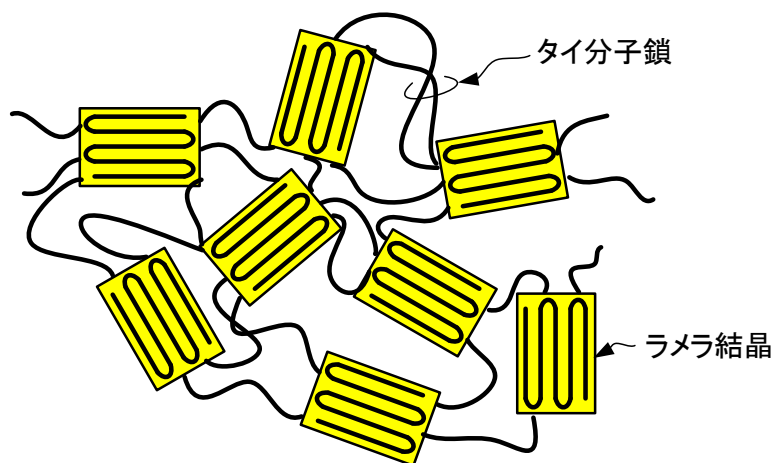
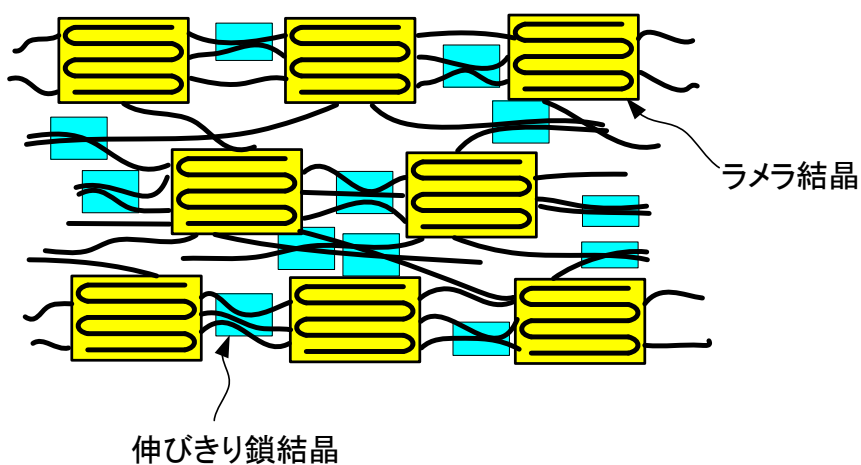


図 1-6. PLLA の  $10/3$  結晶構造

図 1-7 は未延伸 PLLA フィルムの結晶構造(a)および、圧電性を発現するための理想的な結晶構造(b)を模式化したものである。図 1-7.(a)ではラメラ結晶、タイ分子鎖とも向きはランダムになっており、マクロ的に圧電性を示さない。これに対し、図 1-7.(b)ではラメラ結晶の向きが揃い、それらを結合するタイ分子鎖も配向し、タイ分子鎖が近接した部分では伸びきり鎖結晶が形成されている。



(a) 未延伸状態



(b) 理想状態

図 1-7. PLLA の結晶高次構造モデル



図 1-7.(b)に示すような理想状態では、ラメラ結晶で発現する圧電性と伸びきり鎖結晶で発現する圧電性の向きと位相が揃い、マクロ的に大きな圧電性が発現すると考えられる。しかしながら実際の延伸フィルムでは図 1-7.(b)の様に各結晶をきれいに揃えることは不可能で、図 1-8 の様な状態になっていると考えられる。

ラメラ結晶は延伸方向に向かってある程度の配向が進むと考えられるが、完全に配向した状態にはならない。これに対しタイ分子鎖は延伸方向にほぼ配向して近接部分で伸びきり鎖を形成し配向した結晶が形成される。実際の PLLA 延伸フィルムでは圧電性を発現するのに大きく寄与しているのは伸びきり鎖結晶であると推察される。実際にフィルムを延伸しただけでは圧電性はほとんど発現しない。この後熱処理を行い結晶を成長させることにより圧電率が大きく上昇する現象を鑑みれば、このような推察が正しいと考えることができる[66]。

図 1-9 は実際の延伸 PLLA フィルムの破断面の原子間力顕微鏡: Atomic Force Microscope, (AFM) 像である。図 1-9.(a)は無処理の破断面を示し、図 1-9.(b)は破断面を長時間エタノールに浸漬した後の破断面を示している。PLLA はわずかにエタノールに溶解する。結晶部分は溶けにくく、非晶部分は溶けやすいと

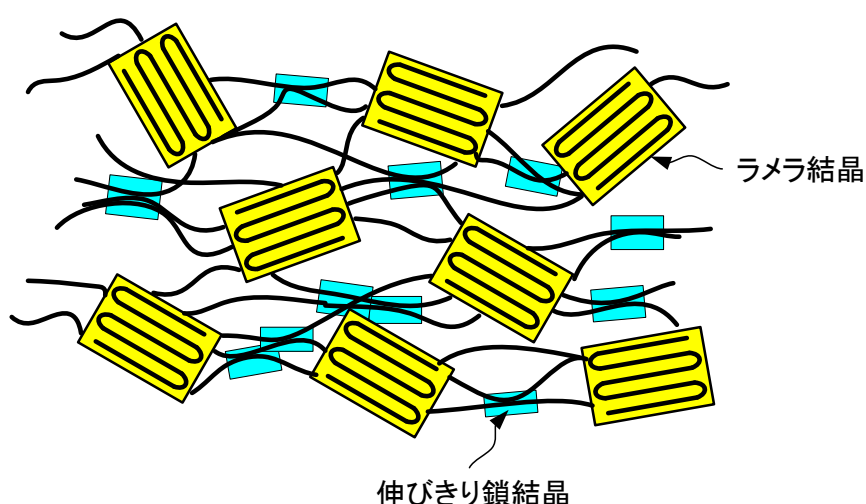


図 1-8. 実際の延伸フィルムの結晶高次構造の推測モデル

考えられる。図 1-9.(b)では非晶部分が溶けだし、主にラメラ結晶の部分のみが残っている像が表れていると推察される。図 1-9.(b)では、図 1-8 の推測モデルに近い構造が確認されていることが分かる。図 1-10 に観察面断面図の模式図を示す。図 1-10.(a)はエタノール処理前、図 1-10.(b)はエタノール処理後を示している。

PLLA の圧電性は分子構造がらせん構造となることに由来する。PLLA の圧電性に関しては深田により発見され、その後、田實等により詳細な検討が加えられている[33, 66~72]。PLLA のカルボニル基 (CO) の部分には特に大きな

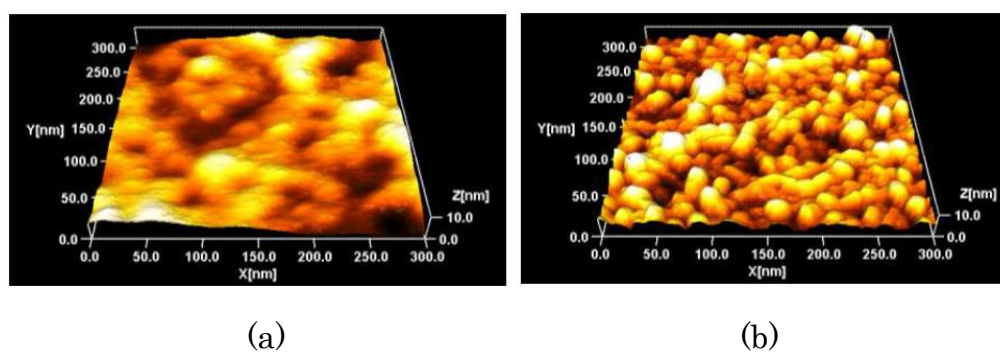


図 1-9. PLLA フィルム破断面の AFM 像

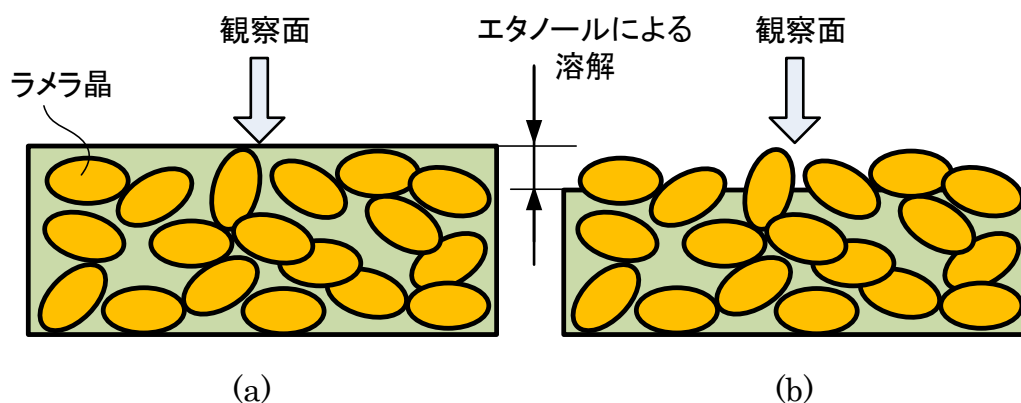


図 1-10. PLLA 破断面の断面模式図

電気双極子が存在し、これがらせん分子中において、らせん軸の方向に沿う成分を持ちつつ分布的に存在する。PLLA のらせん分子中の電気双極子の方向と大きさを図 1-11 に示す。

PLLA の圧電性はこの双極子が外部からの応力によってわずかに位置を変える、或いは外部から加えられた電場により双極子の位置がわずかにずれることにより発現する。PLLA の結晶は極性のない斜方晶を表す点群  $D_2$  に属する。PLLA 結晶は自発分極を持たないため焦電性を有さない。点群  $D_2$  の圧電テンソルは式(1-2)のように表される。

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix} \quad (1-2)$$

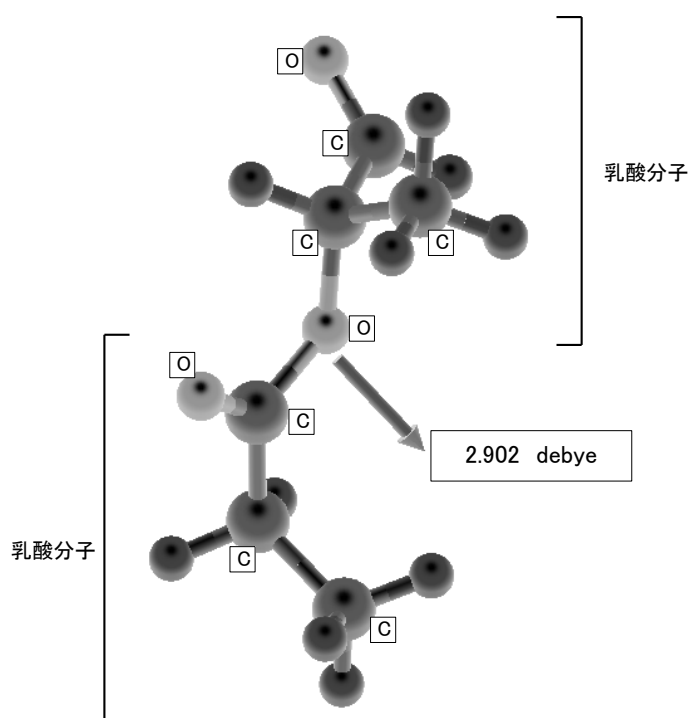


図 1-11. PLLA (2 分子) の電気双極子

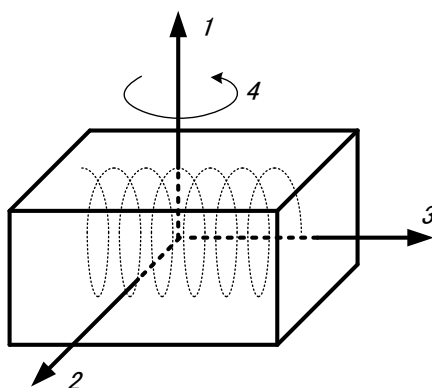


図 1-12. PLLA 結晶に対する軸の設定

このとき PLLA 結晶に対する各軸の取り方は、図 1-12 のようになる。通常は無機結晶と軸の取り方が異なるが、これはポリマーフィルムとポリマー結晶と無機結晶との間において、点群の扱いを矛盾のないようにするための方法であり、深田等により提案された[68]。分極型の PVDF と PLLA では座標軸の取り方が異なっている。PVDF では図 1-12 の 1 軸が 3 軸、延伸方向に当たる 3 軸が 1 軸に割り当てられる。

PLLA のフィルムを一軸延伸して分子を配向させ、熱処理を加えることによりマクロ的に圧電性が発現する。PLLA の一軸延伸フィルムでは、延伸軸方向に沿って（3 軸方向）に無限大軸が存在し、一軸配向 PLLA フィルムのマクロな対称性を表す点群は  $D_{\infty}$  となる。 $d_{36}$  は垂直な鏡面の存在により見かけ上消失し、またその結晶の対称性から  $d_{25} = -d_{14}$  と書ける。従って、式(1-2)は式(1-3)のように書き直すことができる[67]。

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1-3)$$

即ち、PLLA の一軸延伸フィルムにおいて、主面方向に電場を加えた時、PLLA の逆圧電効果によるずり歪みが発現することを意味する。言い換えると、PLLA のらせん分子の分子軸に沿ってずり応力（せん断応力）を加えると、ずり面に垂直な方向に分極が生じると言うことができる。これを図 1-13 に模式的に示す。PLLA フィルムに生じるずり圧電（逆圧電効果）を図示すると図 1-14 のようになる（誇張表現）。

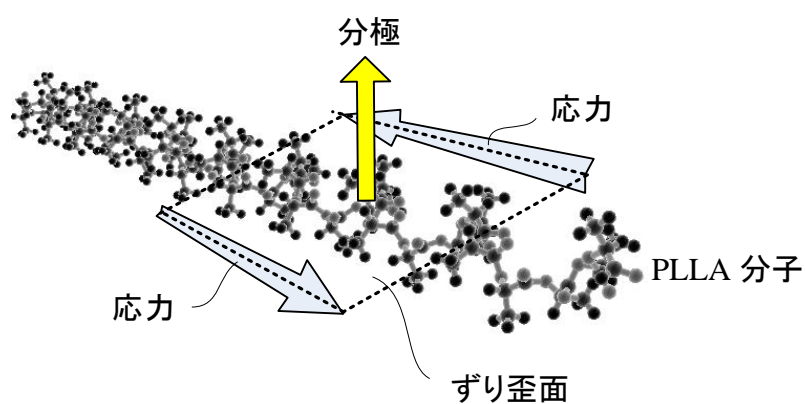


図 1-13. PLLA 分子に対するずり歪みと分極

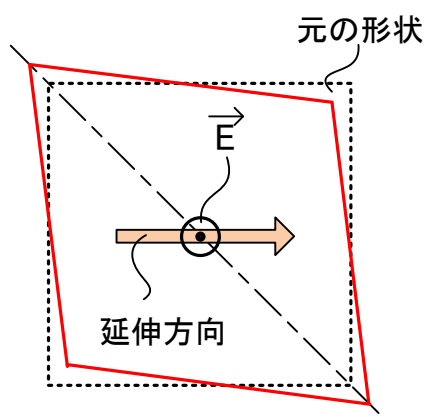


図 1-14.  $d_{14}$  逆圧電効果による PLLA フィルムの変形

PDLA も PLLA と同じ原理で圧電性を発現するが、らせん分子の旋回方向が逆になっているため、圧電現象の極性が反転する[72]。

## 1.2 本研究の目的

本研究の目的は、民生用電子デバイス機器に対し工業的に利用可能な圧電性 PLLA フィルムを開発し、そのフィルムを応用して HMI として利用可能な電子部品としての各種センサを創出することにある。

工業的に利用可能な圧電性 PLLA フィルムであるためには、まずそのフィルムが量産設備を用いて安定的に製造される必要がある。電気的特性を持たないフィルムに関しては既に様々なフィルムが製造されており、そのノウハウが蓄積されている。しかしながら、圧電性 PLLA フィルムに関してはその製造工程において機械的処理の条件により電気的特性である圧電特性が決定される。その圧電特性のばらつきはセンサ感度のバラつきとなるため、製造時に一定範囲に収める必要がある。また、製造された圧電性 PLLA フィルムは一定基準の信頼性を満足する必要がある。民生用電子デバイス機器に搭載する電子部品の場合、主要電気特性を除き、信頼性として高温放置、高温高湿放置、ヒートショック、UV 耐性等が一般的に求められる。これらの環境下において、電気特性、機械的強度、光学的仕様を満足する必要がある。PLLA の最も懸念される点は高温高湿下において加水分解が進むという点である。センサデバイスとされる場合には、少なくとも電極層やその電極を保護する層が圧電性 PLLA フィルムに対して設けられるため、PLLA がむき出しの環境下にさらされることはない。しかしながら、使用時において水蒸気を含め水分の侵入を完全遮断するのは非常に難しい。またこのような処置が必要となる材料の使用は敬遠される場合が多い。従って圧電性 PLLA フィルムそのものがこれらの信頼性を満足するようにその処方について研究を行った。材料研究に関しては三井化学株式会社と共同研究を行った。

また、センサデバイスとしては、PLLA の持つ様々な特徴を最大限に活かし、本章冒頭に触れた3つのキーワード（直観的な操作感覚、確実な操作認識、フレキシビリティ）に準じたセンサデバイスの開発、試作を行い、これらの技術を確立することを目標に研究を進めた。

### 1.3 本論文の構成と概要

本論文は本文6章と、本文中で用いる特定の式の導出方法を示した付録、および参考文献リストより構成されている。

ここ第1章では、新しい HMI の誕生が近年のデバイスの構成を大きく変化させ、現在のデバイス開発はこの HMI の開発に大きな力が注がれていることを述べた。圧電性ポリマー、特に PLLA は非常に多くの有用な機能を持つ新しい材料の一つである。この圧電性 PLLA フィルムを応用した HMI を工業化することを目標として研究した成果を以降の章にて述べる。

第2章では、圧電性 PLLA フィルム自体を工業化するために、圧電性 PLLA フィルムの目標特性を決定し、これを製造するための種々の条件について検討を行う。また、有機フィルムの圧電定数を正確に測定する方法についても言及する。

第3章では、圧電性 PLLA フィルムがセンサ用途において有益で、優れている点を列挙し、それぞれに関して詳しい検討を加える。PLLA の非焦電性、ずり圧電性の利用、センシング感度、透明性、機械的強度、温度特性等、理論式と実測結果を用いて詳しい検討を行う。

第4章では、実際の応用アプリケーションの検討として、まず圧電性 PLLA フィルムに対する電極の形成方法に関して検討を行う。次に、実用的な微小変位量検知センサの構成、検知回路について解説を加える。さらに曲げ・ねじりのセンシング機能を生かしたアプリケーションとして直感的に操作できる TV リモコンの試作例を示す。このリモコンには光電池を用いた電力供給システム

が内蔵されており、このために開発した光電池に関しても言及する。さらに、他のアプリケーションの例としてタッチパネルに圧電性 PLLA フィルムを組み込んだ、新機能付きタッチパネルの提案を行う。静電容量型のタッチパネルの既存の機能を活かしたまま、現在市場で要求されている押圧力機能を加えたタッチパネルや、未来のフレキシブルデバイスに向けた新しいタッチパネルの提案を行う。

第5章では、今後の展望として、ずり圧電を直接用いたセンサの例や、アクチュエーター利用に関して述べる。また、PLLA は配向する方向を変えることによってセラミックスの圧電体に匹敵する圧電率を発現させられる可能性があり、これについても言及する。

第6章は、本論文の結論であり、本研究で得られた成果を要約して述べる。



## 第2章 圧電性 PLLA フィルムの工業化に関する検討

### 2.1 はじめに

圧電性 PLLA フィルムは、PLLA フィルムを一軸延伸し熱処理を加えることによって得られる。一軸延伸以外による配向方法や単なる熱処理以外の結晶化度の向上方法も過去には検討されてきた[73~75]。ここでは 1.1.4 項で述べたように、一軸延伸により分子鎖を配向させ、その後結晶化温度で熱処理することにより、伸びきり鎖結晶を成長させて圧電性を得ることに主眼を置く。本章ではそれに関する基本的な検討、目標特性、量産設備による製造方法、加水分解抑制剤による効果、耐久性試験、および圧電定数の高精度測定について述べる。

### 2.2 PLLA の示差走査熱量測定とその考察

#### 2.2.1 延伸、熱処理後の示差走査熱量測定

一軸延伸の延伸倍率を異ならせた PLLA フィルムのアニール前の試料（赤で示す）と、アニール後の試料（青で示す）について示差走査熱量測定：Differential Scanning Calorimetry, (DSC) を行った結果の多重図を図 2-1 に示す（グラフの起点をヒートフロー0 の点とする）。延伸処理はバッチ式の一軸延伸機を用いて行った。延伸時の温度は 70°C で、延伸速度は 50mm/min で行った。またアニールは 105°C 180min で行い。アニール終了後は急冷スプレーにて急速に冷却を行った。アニールを行う前の試料の DSC 分析結果を見ると、まず 62~63°C 付近でガラス転移点による吸熱反応が開始され、60~70°C の間で応力緩和（エンタルピー緩和）の吸熱ピークが生じ、その後結晶化による発熱ピークが現れる。2 倍延伸では 105°C 付近、3、4 倍延伸では 75°C 付近に発熱ピークが現れる。170°C 付近の吸熱ピークは融解によるものである。これらを表 2-1 にまとめた。

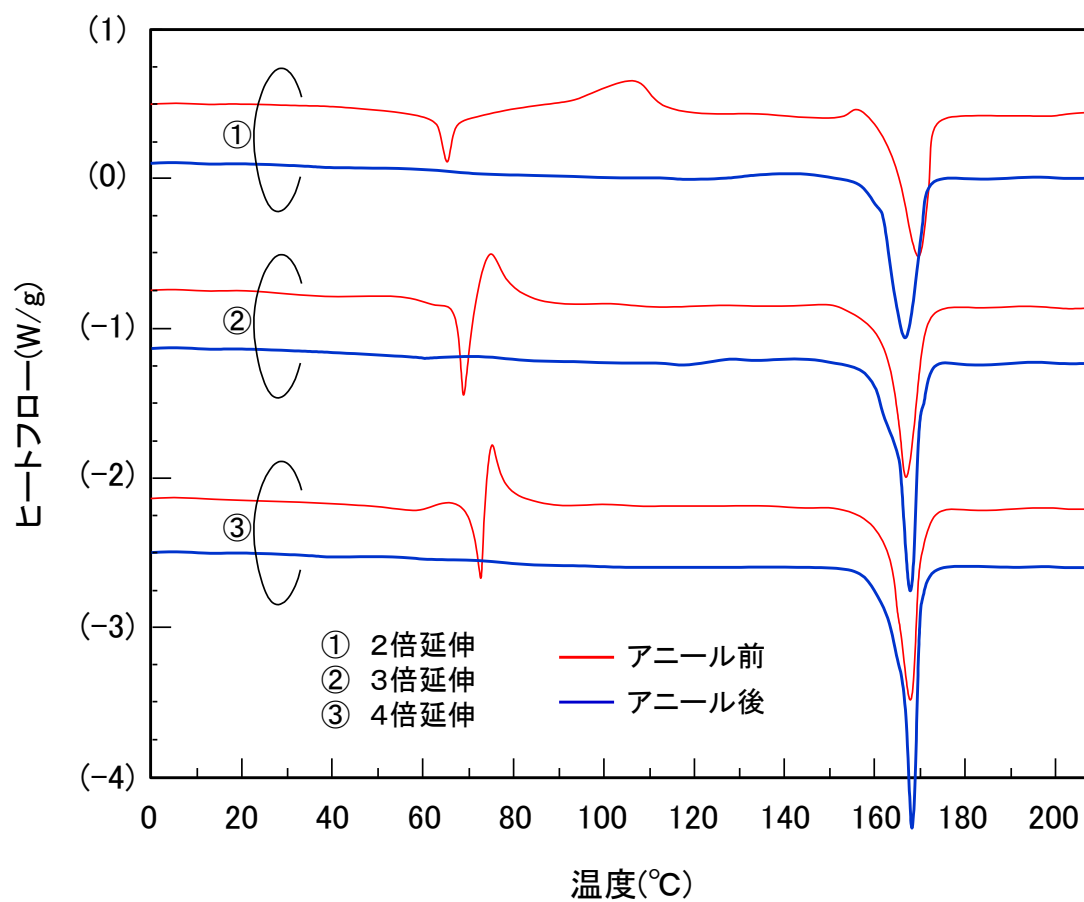


図 2-1. 一軸延伸フィルムのアニール前後での DSC 分析結果

表 2-1. 各試料のピーク温度のまとめ

条件	ガラス転移点	吸熱ピーク (エンタルピー緩和)	発熱ピーク (結晶化)	外挿法による 融点	吸熱ピーク (融解)
2倍延伸	約62°C	約66°C	約105°C	約162°C	約170°C
2倍延伸+アニール	不明瞭	消失	消失	約161°C	約167°C
3倍延伸	約62°C	約69°C	約75°C	約161°C	約167°C
3倍延伸+アニール	不明瞭	消失	消失	約163°C	約168°C
4倍延伸	約63°C	約73°C	約75°C	約162°C	約168°C
4倍延伸+アニール	不明瞭	消失	消失	約163°C	約168°C

延伸フィルムに対してアニールを行うことにより、ガラス転移点は極めて不明瞭になり、エンタルピー緩和の吸熱ピークは消失する。また同様に結晶化発熱ピークは消失する。延伸倍率を大きくすれば、結晶化発熱ピークが低温側にシフトする傾向が見られた。これは延伸処理によって主鎖が配向し、結晶化転移が進行しやすい状態になっていると考えられる。

### 2.2.2 延伸処理後(アニール前)のDSC分析結果に対する考察

まず、結晶化発熱ピークが低温側にシフトしていることに着目すると、延伸倍率が増すことによりタイ分子鎖の配向が進み、この部分がより結晶化し易くなっていると考えられる。延伸処理を施していない PLLA フィルムでは、結晶化発熱ピークは 112~115°C である。2倍延伸では、結晶化発熱ピークは未延伸処理のものと大きく変わらないが、延伸倍率が3倍を超えると、結晶化発熱ピークが急激に低下することがわかる。これにより、2倍延伸と3倍延伸ではタイ分子鎖の配向の程度に大きな差があることが分かる。

次に、エンタルピー緩和の吸熱ピークに着目すると、延伸倍率が増すに従って吸熱ピークが高温側にシフトする傾向が確認された。これは、応力緩和が起りにくくなっていることを示唆している。延伸倍率が増すことにより配向状態が進み、分子間にファンデルワールス結合が形成されて緩やかな結晶状態にあると考えた場合、エンタルピー緩和が進行するために必要な温度が高くなっていると考えられる。また全体的な傾向として、延伸倍率が増すに従って、エンタルピー緩和の吸熱量（ピーク面積）は大きくなっている。エンタルピー緩和の吸熱ピークは隣接するガラス転移点や結晶化発熱ピークの影響を受けているため、正確な吸熱量を算出することが難しいが、2倍延伸の吸熱ピークに比べて、3倍延伸、4倍延伸ではエンタルピー緩和の吸熱量が大きくなっている。これは延伸処理によって試料に蓄積されている応力が増加しているものと考えられる。

最後に、融解の吸熱ピークに着目すると、延伸倍率が増すことによって融点のピーク形状が鋭くなり、融解に伴う吸熱量(ピーク面積)が大きくなる傾向が

見られた。これは、試料の結晶化度の違いによるものと考えられ、延伸倍率を増すと結晶化度が高くなるということを示唆している。すなわち、高倍率な延伸処理を行った試料では結晶化転移を起こし易い状態にあるため、融点温度に到達した時点での結晶化度が高く、未延伸フィルム等のアモルファス状態に比べてエネルギー準位の低い結晶化状態にある分子の比率が高いため融解の吸熱量が大きくなっていると考えられる。

### 2.2.3 アニール処理後の DSC 分析結果に対する考察

アニールを行うことによってエンタルピー緩和の吸熱ピーク、結晶化発熱ピークは消失する傾向が見られた。これは、ガラス転移点以上の温度でアニール処理を行うことによって、応力緩和および結晶化転移が進行していることを示唆しており、これに伴って延伸倍率が増すほどガラス転移点屈曲挙動が小さく不明瞭になっている。ガラス転移とは高分子試料のアモルファス性によって起こる相転移である。アニールによって結晶化転移を起こした試料ではファンデルワールス結合によって主鎖の分子運動が凍結されているため、ガラス転移を示さなくなると考えられる。

### 2.2.4 PLLA フィルムの延伸処理の方針

一般に延伸倍率を大きくすると高分子配向度は高くなり、結晶化度も高くなることが分かっている。PLLA のようならせん高分子でもこのような傾向は同じである。2倍延伸と3倍延伸では配向度に大きな差があるため、2倍延伸では結晶化がスムーズに進まないことが DSC 分析から確認された。また3倍以上になるとあまり大きな変化は見られないことが分かる。配向が不完全であったり結晶化が不完全であったりすると、初期特性にバラつきが見られたり、長期的に見て物性に变化が生じたため、環境特性として要求される温度保持により物性が変化することが考えられる。ここでの分析結果を見れば延伸倍率は少なくとも3倍以上にすることが適当である。この結果を参考にして以降の実験を進めた。

## 2.3 工業化に向けた管理パラメータと処方

### 2.3.1 圧電性 PLLA フィルムの目標特性

PLLA を力覚センサや変位センサとして用いる場合、圧電定数は大きいほどよい。しかし、これを工業的に用いる場合には、生産速度、良品率、特性の安定性、フィルムの耐久性、コスト等様々な課題をクリアする必要がある。実際に工業用設備を用いて試作を繰り返し、様々な条件を鑑みた上で圧電性 PLLA フィルムの実力を把握した。市場での要求を満たすために、先の結果を考慮しつつフィルムの目標特性を表 2-2 のように決定した。尚、厚み、圧電定数、比誘電率に関しては、3.3.3 項で解説する理論式に基づいてそのばらつき範囲を設定した。

表 2-2. 圧電性 PLLA フィルムの目標特性

項目	目標特性
フィルム厚さ	100 μm 以下
圧電定数( $d_{14}$ )	5~10 pC/N
比誘電率	2.7±0.2
引っ張り降伏応力	40 MPa以上
高温高湿耐性	60°C90%240hr放置後に特性が維持されていること
高温耐性	85°C240hr放置後に特性が維持されていること
低温耐性	-40°C240hr放置後に特性が維持されていること
ヒートサイクル	-40°C←→85°C100サイクル後に特性が維持されていること

### 2.3.2 圧電性を決定づける特性要因

第1章でも述べたように、PLLAに圧電性を発現させるためには分子の配向と結晶化が重要である。このPLLA高分子の配向度と結晶化度を決定する要因には様々なものがある。2-2節で述べたように、配向度と結晶化度には密接な関係があり、これらを制御する方法が圧電性を決定づける要因となる。配向度は主に延伸倍率により決定づけられるが、フィルムを延伸する時の温度や延伸速度も重要な要因となる。圧電性を発現するために重要な構造となる伸びきり鎖結晶の結晶化度は、前述したように配向度と密接な関係があり、一般的に配向度が高いほど伸びきり鎖結晶は生成され易いと考えられている。加えて配向処理後のアニール処理が結晶化度に密接に関係しており、アニール時の温度、アニールをする時間、アニール後の冷却の度合いが深く関係する。さらに結晶化度は加える添加物や、分子量の影響を受ける。PDLAはPLLAと逆符号の圧電特性を持つため、使用するPLLAの光学純度（PLLAに対するPDLAの混入割合）も大きな要因となり得る。圧電性能が決定づけられる要因の特性要因図を図2-2に示す。

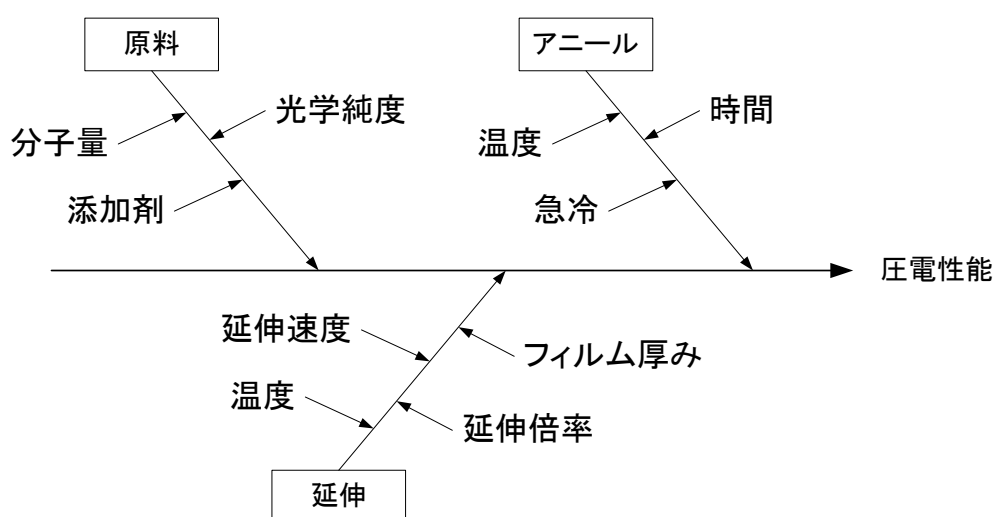


図 2-2. PLLA フィルムの圧電性能を決定づける要因

### 2.3.3 圧電性 PLLA フィルムの工業化パラメータの検討

PLLA は名の通り L 乳酸がポリマーになったものであるが、わずかに D 乳酸が含まれる、この純度を PLLA 原料の光学純度と呼ぶ。前述したように光学純度は高いほど圧電定数は高まることが分かっている。また一軸延伸により分子を配向させ、結晶化度を高めるには、一定以上の分子量が必要であると想像できる。しかし、分子量が大きくなりすぎると逆に延伸が困難となり配向度を低下させてしまう場合もある。光学純度や分子量のコントロールはコストに大きく反映されるため、量産品として市場に供給されているレベルのものを用いた。

添加剤としては、主に結晶生成を促進するものの検討を先に行い、その後 PLLA の加水分解を抑制する添加剤についての検討を行った。結晶生成を促進する添加剤を入れると当然結晶化度が高くなるため圧電率の改善に何らかの効果があると考えられる。

延伸、およびアニールは製造設備の調整で細かくコントロールが可能である。これらのコントロールは、結果的に PLLA フィルムの配向度と結晶化度に反映される。PLLA フィルムの圧電定数を定めるものは、材料物性そのものに影響する分子量、光学純度、添加剤を除くと、配向度と結晶化度で決まる。従って、一定の配向度と結晶化度が達成されるように、設備の条件を細かくコントロールする必要がある。

延伸の倍率等による配向度や結晶化度の違いと圧電定数の関係の一部のデータを表 2-3 にまとめた。添加剤として“あり”と記載されているものはフェニルホスホン酸亜鉛を結晶化促進剤として添加したものである。結晶化促進剤は結晶形成を促進する添加剤のことであり、フェニルホスホン酸亜鉛の他にポリリン酸メラミン、メラミンシアヌレート、フェニルスルホン酸亜鉛、フェニルホスホン酸カルシウム、フェニルホスホン酸マグネシウム、無機系物質のタルク、クレイ等が挙げられる[61]。ここで、結晶化度は DSC 分析から得られる値を用いて計算される。検査試料のエネルギー状態準位を  $A$ 、完全に結晶化した PLLA のエネルギー準位を  $F$ 、熔融状態の試料のエネルギー準位を  $E$  とすれば、結晶化度  $X_C(\%)$  は式(2-1)で表せる。

$$X_c = \frac{A - F}{E - F} \times 100 \quad (2-1)$$

また、規格化分子配向度  $M_0$  の値は式(2-2)において試料の厚み  $t$  を基準厚み  $t_s$  (50 $\mu$ m) としたときの分子配向度  $M$  の値である。

$$M_0 = \frac{t_s}{t} (M - 1) + 1 \quad (2-2)$$

分子配向度  $M$  は分子の配向度合いを表す値であり、次に述べるようなマイクロ波測定法により測定される。

フィルム試料を周知のマイクロ波分子配向度測定装置のマイクロ波共振導波管中に、マイクロ波の進行方向に試料の主面が垂直になるように配置する。波の振動方向が一方向に偏ったマイクロ波を試料に連続的に照射した状態で、試料を波の進行方向に対して垂直な面内で0 $\sim$ 360 $^\circ$  回転させて、試料を透過した

表 2-3. 各条件の違いによる圧電定数の例

項目	試料1	試料2	試料3	試料4	試料5	試料6	試料7
添加剤	なし	なし	なし	なし	あり	あり	あり
原反結晶化度(%)	17	17	17	17	40	45	42
延伸倍率	4.1	4.1	4.6	4.6	6.9	6.0	8.3
延伸速度(mm/min)	100	500	300	200	100	500	100
延伸温度	90	80	70	80	90	70	90
アニール温度( $^\circ$ C)	150	150	150	150	150	150	150
アニール時間(s)	600	600	600	600	600	600	600
結晶化度 $X_c$ (%)	42.5	45.0	46.6	48.0	50.3	52.4	48.9
規格化分子配向度 $M_0$	7.62	7.14	7.21	7.02	8.32	8.29	7.08
$X_c \times M_0$	324	321	336	337	418	434	346
圧電定数(pC/N)	8.6	8.4	8.3	8.1	9.5	9.9	8.4
内部ヘイズ(%)	0.3	0.1	0.1	4.0	11.9	24.6	39.9



マイクロ波の強度を測定する事により求める。マイクロ波分子配向計は王子計測器株式会社製 MOA-2012A を用いた。

表 2-3 の  $X_C \times M_0$  と圧電定数の関係に着目すれば、 $X_C \times M_0$  が大きいほど圧電定数が高くなっていることが分かる。従って PLLA の圧電定数をコントロールするパラメータとして  $X_C \times M_0$  が重要であることが分かる。また、表 2-3 からは次のことも読みとれる。結晶化促進剤の添加により明らかに結晶化度が向上している。またこれにより結晶サイズが大きくなったと考えられ、内部ヘイズが劣化している。

尚、これらに関する検討は本研究を共同で進めた三井化学株式会社において主体的に進められた[76]。

次に加水分解の抑制効果について検討を行った。前述したように添加剤として、カルボジイミド基、エポキシ基、イソシアネート基からなる群から選ばれる高分子安定化剤を添加しその影響を確認した。測定した結果の一部を表 2-4 にまとめた。

高温高湿試験は 60°C90%の環境下で行い、その分子量の低下度合いと圧電定数の変動具合を調べた。分子量の低下度合いはフィルムの強度に顕著に影響を及ぼすが、圧電特性にはほとんど影響が無いことが分かった。表中の“○”で示した箇所は分子量の低下が概ね 10%程度もしくはそれ以下であるもの。“△”は分子量の低下が 50%以下のもの。“×”は分子量の低下が 50%を越えたものを表している。圧電性 PLLA フィルムのセンサへの用途としては、大きく分けて透明用途と非透明用途の 2 つがあり、透明用途の場合は内部ヘイズを少なくとも 1%以下に保つ必要がある。加水分解抑制添加剤を加える割合によって内部ヘイズ値に大きな変動があることが分かる。従って透明度の保持と、分子量低下の抑制に関してはトレードオフの関係となっていることが分かる。ここに挙げた条件のうち試料 3 では表 2-2 に掲載した圧電性 PLLA フィルムの仕様を全て満足した。内部ヘイズ値は 1%以下であり、透明用途においても十分に使用可能である。延伸速度は表 2-3 の条件と比較してかなり速くされており、ま

たアニール時間も短縮したため生産能率も飛躍的に向上し、十分に工業化が可能なレベルに高まったと言える。

目標特性に対する信頼性試験結果を表 2-5 に示す。この試験は複数のサンプルを使用して行い、その全数が規格を満足した。

表 2-4. 各条件の違いによる圧電定数と高温高湿耐性の例

項目	試料1	試料2	試料3	試料4	試料5
添加剤(wt%)	0.1	0.3	0.5	1.0	3.0
原反結晶化度(%)	5.63	8.30	5.04	5.57	8.30
延伸倍率	3.3	3.3	3.3	3.3	3.3
延伸速度(mm/min)	1650	1650	1650	1650	1650
延伸温度	70	70	70	70	70
アニール温度(°C)	130	130	130	130	130
アニール時間(s)	60	60	60	60	60
結晶化度 $X_c$ (%)	47.0	43.1	40.3	40.0	43.0
規格化分子配向度 $M_0$	5.17	4.89	4.86	4.84	4.24
$X_c \times M_0$	243	211	196	194	182
圧電定数(pC/N)	6.2	6.3	6.1	5.8	5.9
内部ヘイズ(%)	0.3	0.2	0.6	1.4	13.1
高温高湿100hr後	○	○	○	○	○
高温高湿200hr後	○	○	○	○	○
高温高湿500hr後	×	×	△	○	○

表 2-5. 信頼性試験結果

項目	条件	高温高湿後 60°C90%240hr	高温放置後 85°C240hr	低温放置後 -40°C240hr	ヒートサイクル後 -40,85°C100c後
フィルム厚さ	初期値±10%以内	○	○	○	○
圧電定数( $d_{14}$ )	初期値±10%以内	○	○	○	○
比誘電率	2.7±0.2以内	○	○	○	○
引っ張り降伏応力	40MPa以上	○	○	○	○
内部ヘイズ値	1%以下	○	○	○	○

PLLA の圧電性発現の基礎検討同様に、これらに関する検討も本研究を共同で進めた三井化学株式会社において主体的に進められた[77]。

## 2.4 圧電定数測定方法に関する検討

### 2.4.1 応力電荷法測定による測定ばらつきの要因

圧電性 PLLA フィルムの圧電定数を安定して測定するためには様々な課題がある。圧電定数の測定方法には主に、共振法、変位法、応力電荷法等がある。いずれの方法に関しても詳細な検討を行い、最終的に応力電荷法による精密な圧電定数の測定方法を確立した。

応力電荷法とは、一定寸法に裁断された矩形の圧電性 PLLA フィルムに引っ張り応力をかけ、その時に発生する電荷を測定することにより圧電定数を測定する方法である。この矩形のフィルムは、中心軸がフィルムの延伸方向に対して  $45^\circ$  の角度となるように原反フィルムから切り出されている。フィルムの厚みを  $t(\text{mm})$ 、有効なフィルムの長さを  $L(\text{mm})$ 、引っ張り応力の変化を  $\Delta F(\text{N})$ 、その時の電荷の変化量を  $\Delta Q(\text{C})$ 、とすると、圧電定数  $d_{14}(\text{C/N})$  は式(2-3)で表せる (巻末付録 *apdx3.1* 参照)。 $d_{14}$  の精度を得るための各測定値の精度の選び方を表す式は式(2-4)で表せる。間接測定による精度の検討式は、元の式の両辺の対数を取ってそれを微分することにより得られる。結果の相対誤差としては安全を期するために全ての項を加算とすることとなっている[78]。

$$d_{14} = \frac{2t}{L} \cdot \frac{\Delta Q}{\Delta F} \quad (2-3)$$

$$\frac{dd_{14}}{d_{14}} = \frac{dt}{t} + \frac{dL}{L} + \frac{d\Delta Q}{\Delta Q} + \frac{d\Delta F}{\Delta F} \quad (2-4)$$

式(2-4)から、 $t$ ,  $L$ ,  $\Delta Q$ ,  $\Delta F$  それぞれの測定精度は全て同じ重みで  $d_{t_4}$  の計算結果の精度に影響を及ぼすことが容易に理解できる。このうちで作業者の要因が加わり、最もばらつきの原因となるのは、切り出したフィルムを電動スタンド（引っ張り試験機）に取り付けるためのクランプ装置をフィルムに装着するときのものである。フィルムを定尺に切り出したとしても、クランプ間距離が不正確であると結果的にフィルムの長さがばらついていることと同じになる。また、両端に取り付けるクランプ同士が完全に平行に取り付けられていない、もしくは平行であるが電動スタンドの作用点がフィルムの中心軸と一致しない等の要因によっても測定値はばらついてしまうことが分かっている。フィルムはクランプ装置を介して電動スタンドにより引っ張り応力がかけられるが、クランプが不完全であると位置がずれてしまい、不正な応力の緩和が発生する。またクランプ位置のずれにより長さが変動してしまい測定値にばらつきが生じる。これらを鑑みて高精度クランプ装着治具を作製しフィルムに対するクランプ間距離が正確に管理されるようにした。図 2-3 はクランプ装置部の拡大写真である。電極が形成された圧電性 PLLA フィルムはクランプ電極により挟持される。フィルムの着脱は締め付けねじにより容易に行うことができる。フィルムを実際に挟持するクランプ電極は、フィルムの表面に形成されている電極と電気的に接続される。

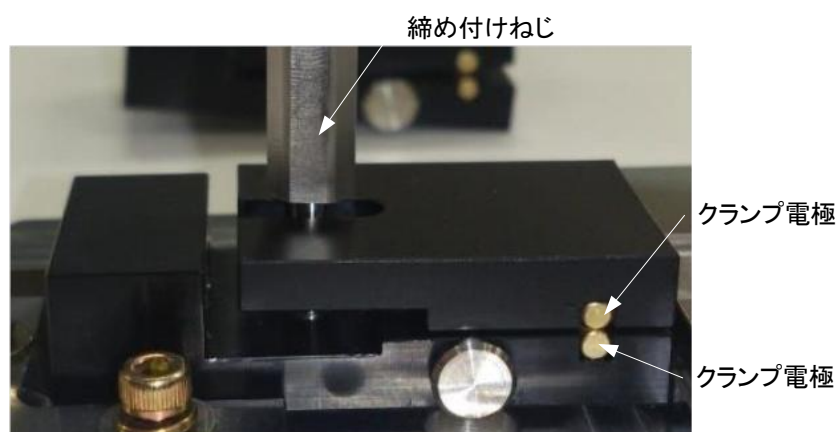


図 2-3. クランプ装置部拡大写真

測定するフィルムの縦横比は幅 1 に対して長さ 7 以上が好ましい。発生する電荷量を考慮して、ここで用いるフィルムは幅 10mm 長さ 80mm（クランプ間距離）とした。高精度フィルム装着治具の使用によりクランプ間距離の精度は  $80 \pm 0.1\text{mm}$  以下に抑えられた。

#### 2.4.2 目標測定精度と測定システムの実力

圧電性 PLLA フィルムの圧電定数の規格範囲を  $\pm 10\%$  とした時、測定システム自体が持つ測定精度（ばらつき）の目標値は規格範囲の 10 倍の  $\pm 1\%$  程度が妥当である。これに作業者による人的ばらつきを考慮し、最終的な目標精度は  $\pm 1.5\%$  以下とした。用いた測定機は、以下のとおりである。

エレクトロメーター	: Keithley 6514
電動スタンド	: 日本計測システム JSV-H1000
フォースゲージ	: 日本計測システム HF-1

電動スタンドが測定フィルムに応力をかけていくスピードは測定精度と密接な関係がある。図 2-4 は電動スタンドの引っ張りスピードとフィルムにかかる応力を変化させて複数回の測定を行った時の圧電定数の平均値とそのばらつき（標準偏差  $\sigma$ ）の 3 倍値（ $3\sigma$ ）をプロットしたものである。図 2-4 から分かるように、測定条件として  $300\text{mm}/\text{分}$ 、 $1.5\sim 4.5\text{N}$  の引っ張り応力を往復で加えた時の測定値において目標精度が達成された。

次に作業者の作業ばらつきによる測定精度の評価を行った。作業者はフィルムにクランプ治具を取り付けて、これを機械に装着する作業を繰り返し行う。この作業においては前述したようにクランプ間距離およびクランプの平行度が常に一定に保たれているかがポイントとなる。実際の作業者が高精度クランプ治具を用いて被測定物である圧電性 PLLA フィルムに対してクランプ装置の着脱を繰り返し、測定を行った結果を図 2-5 に示す。

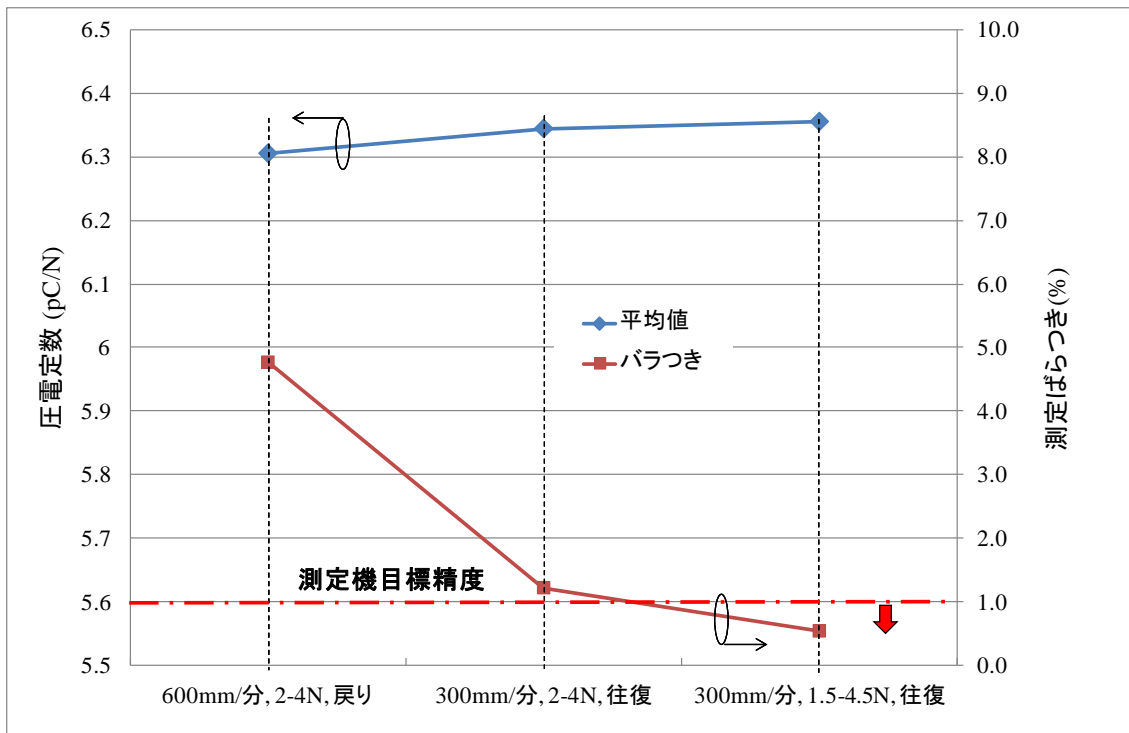


図 2-4. 繰り返し測定による測定平均値とばらつき(3σ)

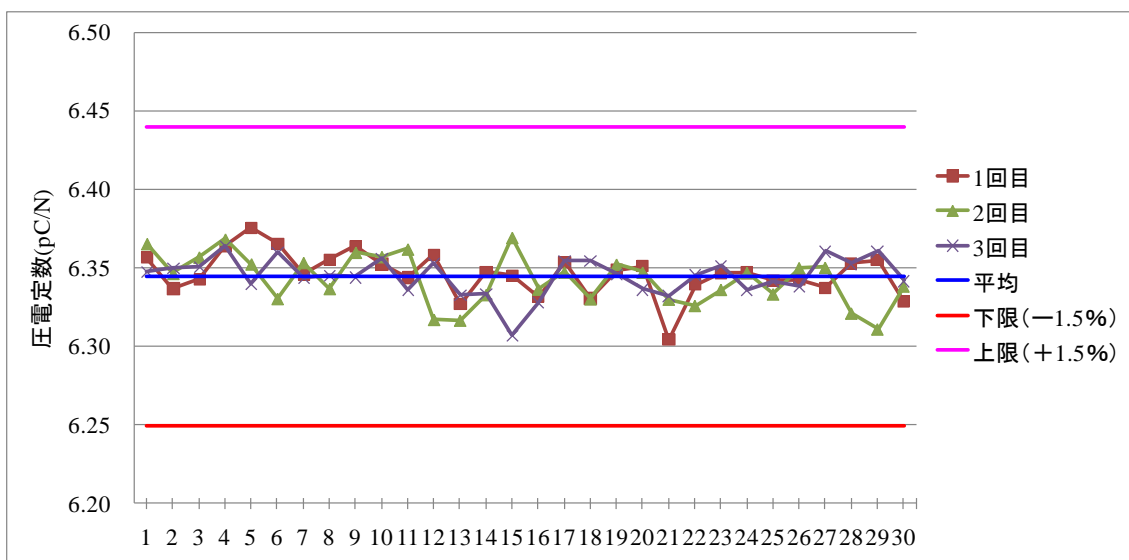


図 2-5. 着脱繰り返し測定による測定値ばらつき

測定は同一の試料を2日間に亘って、3名の作業者が各30回の測定を行った結果である。着脱繰り返し測定による測定精度を表2-6にまとめた。測定値に対するばらつきは高々 $\pm 0.016$  (pC/N)程度であり、 $\pm 0.05$  (pC/N) ( $3\sigma$ 値)以内にはほぼ全ての測定値が分布していると言える。目標に対して十分に高い測定精度が得られていることが分かる。

表 2-6. 着脱繰り返し測定による測定精度まとめ

作業者	No.1	No.2	No.3
平均	6.346	6.343	6.345
標準偏差 ( $\sigma$ )	0.014	0.016	0.012
$3\sigma$	0.042	0.048	0.036
$3\sigma$ (%)	0.66	0.75	0.56

## 2.5 本章のまとめ

PLLA フィルムの DSC 分析を行い、延伸やアニールによる配向及び結晶化の挙動について検証を行った。その結果、分子量 20 万クラスの PLLA においては 3 倍以上の延伸を行うことによってタイ分子鎖がほぼ配向することが分かった。これを基礎情報として工業化可能な量産延伸設備を用いて配向度、結晶化度、圧電定数の結果を調べた結果、圧電定数は配向度と結晶化度の積にほぼ比例することが確認された。これらを管理パラメータとし、さらに圧電性 PLLA フィルムの加水分解耐性に関する検討を行った結果、特定の添加物を加えることにより市場における信頼性要求特性を満足できる性能が得られることが分かった。加水分解を抑制、阻害する、もしくは加水分解の速度を遅らせることは特定の添加物により可能であるが、透明度の維持に対してトレードオフの関係になることが明らかになった。また透明度を維持したまま、市場における信頼性要求特性を満足する処方も特定できた。

セラミックス等の堅いものと比較してポリマーは非常に柔らかく、圧電性

PLLA フィルムの圧電定数を安定して測定することが課題であった。これに対しては、高精度な測定治具を用い、引っ張り条件等のパラメータを規格化することで、工業化に必要な十分な測定精度を得るに到った。



## 第3章 圧電性 PLLA フィルムのセンサ応用に関する検討

### 3.1 はじめに

PLLA のずり圧電性は PVDF に比べて機能が劣るというネガティブなイメージとして捉えられてきた。既に圧電体として長い間確固たる地位を築いてきた圧電性セラミックス、特にチタン酸ジルコン酸鉛 : Lead Zirconate Titanate, (PZT) は強誘電性のセラミックスであり、非常に高い誘電率を示し、圧電率も数百 pC/N と大きく、焦電性を示す。アクチュエーターとしての用途はもちろんのこと、ショックセンサ、焦電型センサとしても非常に幅広い用途で用いられている[79~89]。PVDF は PZT ライクな特性を持つ有機圧電フィルムとして注目され、高い誘電率、大きな圧電率、焦電性に注意が払われてきたとも言える[1~10]。これに対し PLLA の圧電性はずり圧電性であり、誘電率は低く、焦電性がない。PVDF の代替として PLLA の材料特性を捉えれば機能が劣る材料としてのイメージがつかまとう。しかしながらこのような PLLA の特性は視点を変えれば大きなメリットとして捉えることができる。このようなメリットを活かしたセンサ応用に関して詳細な検討を行ったのでこれについて述べる。

### 3.2 圧電性センサフィルムとしての PLLA のメリット

先に述べた PLLA の一部のデメリットイメージは視点を変えるとメリットとして捉えられる。これに他の特徴を加えて整理すると以下 7 点となる。

- (1) 焦電性がない。→HMI に有効。
- (2) 圧電率が大きい。→アクチュエーターに利用できる可能性がある。
- (3) ずり圧電を持つ。→効率的な変位検出と異なる変位モードの検出ができ新しく、面白い HMI を実現できる可能性がある。

- (4) 誘電率が低い。→圧電出力係数が大きくなる。
- (5) 透明度が極めて高い。→光学系機器に利用可能。
- (6) フレキシブルである。→有機フィルムとしての最大の特徴。
- (7) 環境負荷が小さい。→生分解性素材としての PLLA 本来の特徴。

以下、それぞれについて簡単に説明し、詳細な検討に関しては次節以降に述べる。

まず、非常に大きなメリットとして捉えられるものは PLLA が非焦電型の圧電体になるという点である。圧電性を応用して力覚センサや変位センサを作製し、HMI への応用を考える場合、焦電性は大きなネックになる。HMI は人間の手で操作するということが必然であるが故、必ず体温による影響を受ける。例えば変位センサとして応用する場合、これが人間の手で操作された時、加えられる変位と圧電性に基づく電荷と、手の熱と焦電性に基づく電荷が発生する。これらは見かけ上区別することが不可能である。

PLLA の圧電率は圧電性ポリマーの中でも PVDF やポリ尿素と並んで非常に大きい部類に入るが、これらと肩を並べるまでに到っていない。しかしながら、圧電性 PLLA をアクチュエーターに利用しようとする試みはあり、田實等により様々な検討がなされている[90~92]。生体高分子としての特徴から医療系の分野でも応用が検討され、その圧電特性を活かしたマイクロピンセットや、骨接合に関する応用も研究されている[93~102]。

ずり圧電に関して、その HMI 応用について記載されている論文や特許は見あたらない。PLLA のずり圧電は図 1-14 のように表現されるため、一見何に利用できるか理解し難い。伸びや縮み、或いは曲げと言った変形は、日常において非常によく見られるため、割と簡単に応用が考えられる。しかしながらずり圧電のように“ゆがむ”というイメージの変形は簡単に想像することができない。PLLA のずり圧電をうまく用いれば、伸縮に関しては非常に効率のよいセンシングが可能となり、またねじれを検出することも可能となる。

加えて PLLA の誘電率の低さも、センサ応用に関してはメリットの一つとな

る。圧電体の誘電率が低くなれば、圧電出力係数（圧電  $g$  定数）が大きくなる。圧電出力係数が大きいということは単位体積当たりの解放電圧が高いということであり、センシングにとっては有利であると言える。

PLLA の素材としての透明度の高さは際立っている。一般的には PMMA とほぼ同等、もしくはわずかにしのぐと言われている。従って PLLA の光学機器への応用、特に光ファイバーに応用し圧電効果と組み合わせて光ファイバーを機械的にコントロールする試みや、ポッケルス効果の応用等が検討されてきた [103~106]。現在の HMI の本流となっているのはタッチパネルでありこれは透明のデバイスである。従って PLLA の透明度の高さはタッチパネルへの応用に際して際立ったメリットであると言える。

残りの特徴であるフレキシブルに関して説明は不要であろう。生分解性については前章で詳しく述べた。特に PVDF と比較するなら、PVDF はフッ素系樹脂であるが故極めて分解されにくい、また焼却も非常にやりにくいため環境負荷軽減という観点では比べ物にならない。

### 3.3 圧電性 PLLA フィルムの各特徴に対する詳細な検討

#### 3.3.1 PLLA の非焦電性

焦電性とは自発分極の状態が温度により大きく変化することに由来する。あらゆる結晶は、その対称性により 32 の晶族に分類され、そのうちの対称中心を欠いた 21 晶族中の 20 晶族は圧電性を示す [89]。既に述べたが点群  $C_{2v}$  に属する PVDF と点群  $D_2$  に属する PLLA は共に圧電性を示す。さらにこのうち 10 晶族は自発分極を有するため焦電性を有する。PVDF はこの 10 晶族に分類されるため焦電性を示す [83~88, 107~111]。一方 PLLA はこの 10 晶族に分類されず、自発分極を有していない。従って PLLA には焦電性がない。

変位センサ、或いは力覚センサとして HMI に用いたときに焦電性がないという特徴は非常に大きなメリットとなる。ポリマーは金属やセラミックと比較

して非常に線膨張係数の大きな材料であり、温度による伸び縮みが大きい。

表 3-1 は代表的な物質の線膨張係数の比較である[112~114]。PLLA はポリマーの中でも線膨張係数がやや大きい部類に入る。線膨張に由来する応力の発生により、圧電性に由来する電荷が生じる可能性がある。緩やかな温度の変化に対しては電荷の発生はほとんどなく、また検知回路側でキャンセルすることも可能であるが、この応力の発生が急激であると、あたかも焦電性による電荷が発生したような振る舞いをするのではないかと懸念がある。これを確かめるために以下のような実験を行った。

表 3-1. 線膨張係数の比較

物質	線膨張係数(ppm)
PLLA	MD: 96 TD: 120
PVDF	120
PP	110
PC	70
PMMA	77
アルミ(A7075)	23.4
ガラス	7~9

図 3-1 は焦電性、および線膨張による焦電性ライクな反応を検証するために作製したテストプレート (テストプレート 1) である。PMMA で作製したベースプレート(Base Plate)の片方の主面には圧電性 PLLA フィルムが貼り付けられ、他方の主面に圧電性 PVDF フィルムが貼り付けられている。PLLA も PVDF もフィルムの両面には電極が形成されている。電荷を取り出すためのケーブル類は作図を省略した。ベースプレートの厚みは 2mm である。また PLLA の厚みは 72 $\mu$ m、PVDF の厚みは 74 $\mu$ m でほぼ等しい。PLLA の圧電定数は  $d_{14}=5.8\text{pC/N}$  であり、PVDF の圧電定数は  $d_{31}=23\text{pC/N}$  である。

このテストプレートを指でつまみその際に発生する電荷を測定し図 3-2 に示

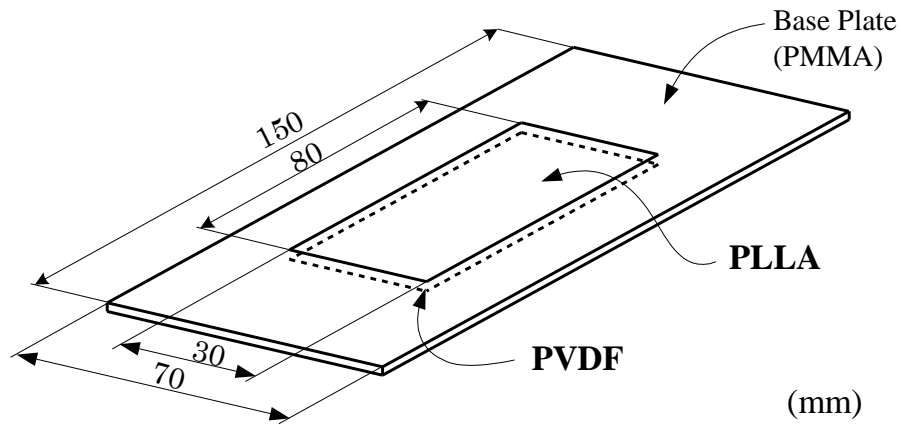


図 3-1. テストプレート 1

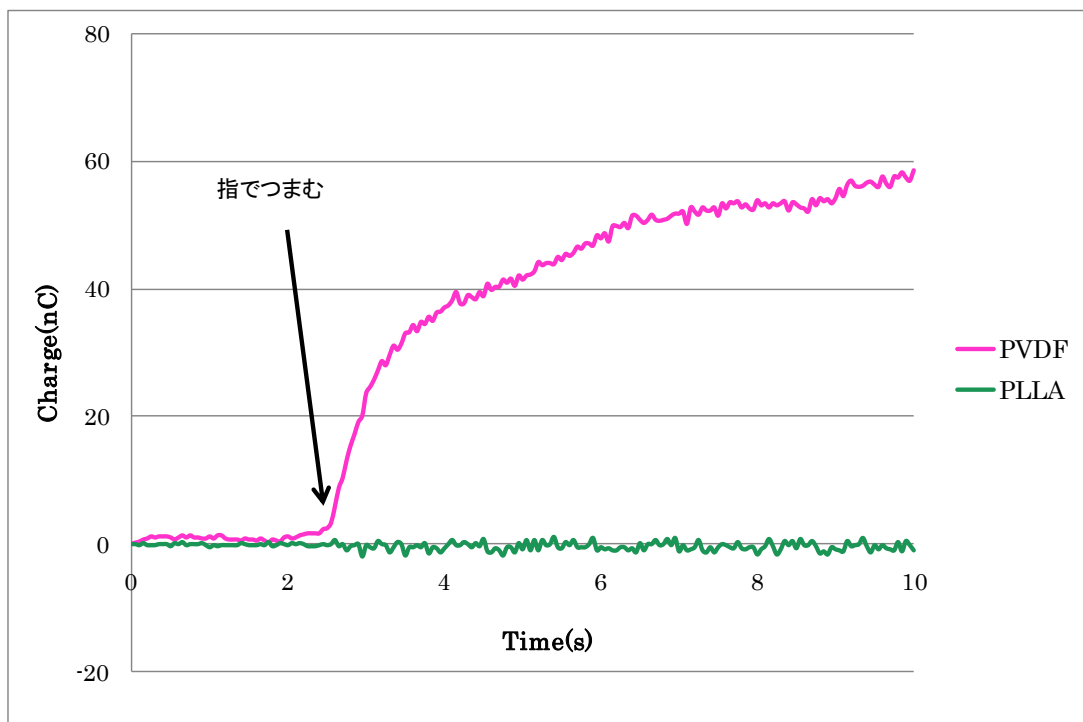


図 3-2. PLLA と PVDF の焦電性測定

した。人差し指及び親指でつまんだ際の温度は  $33.4^{\circ}\text{C}$  であった。またテストプレートそのものの温度は  $24.7^{\circ}\text{C}$  であった。

測定開始から約 2 秒を経過した時点でテストプレートを人差し指と親指でつまんだ。これに伴い PVDF では電荷が発生し始めたが、PLLA では全く反応していないことが分かる。指でつまんだ時点からノイズ成分が増えているように見えるが、これは商用電源から出るノイズが人体に伝わりそれが指を通じて双方のフィルムの電極に流入しているものである。PLLA と PVDF のグラフに重畳されているノイズのレベルはほぼ等しい。懸念事項として掲げた線膨張による局所的な応力から発生する電荷はこの実験においては、全く観測されなかったと言ってよい。即ち、実用上問題のあるレベルでは無いということが言える。これらから、手で操作する HMI に向けた変位センサ、力覚センサに対して、明らかに PVDF は不向きであり、PLLA は有用であることが分かる。

### 3.3.2 PLLA のずり圧電性とその利用方法

図 1-14 を見れば、圧電性 PLLA フィルムはずり圧電により一方の対角線に対して伸び、他方の対角線に対して縮むという変形を生じていることが分かる。即ち、延伸方向に対して  $45^{\circ}$  の角度に矩形状に切り出したフィルムは  $d_{14}$  の逆圧電効果により、電圧を加えたときに単に伸縮するフィルムのように見ることができる。一般的に物質を引き伸ばしたとき、引き伸ばしの方向に対して垂直な方向には縮む。圧電性 PLLA フィルムの延伸方向に対して  $45^{\circ}$  の角度で切り出したフィルム（以降 PLLA<sub>45</sub> フィルムと書く）は、一般的な物質の伸び縮みと矛盾しない変形を起こす。従って PLLA<sub>45</sub> フィルムを伸び縮みする基体に貼り付けて、圧電効果によりその変形が効果的に検出できることが分かる。

圧電性 PVDF フィルムの延伸方向に沿って切り出したフィルム（以降 PVDF<sub>0</sub> フィルムと書く）に電圧を加えたとき、 $d_{31}$ 、 $d_{32}$  の逆圧電効果により全方向に伸びが生じる。延伸されたフィルムでは延伸方向と、延伸方向に垂直な方向とでフィルムの硬さが異なるため均等には変形しない[115]。前述した PLLA<sub>45</sub> フィルムの場合と比較して、一般的な物質の伸び縮みを PVDF<sub>0</sub> フィルムで検出

する場合、引っ張り方向に延びることにより発生する電荷と、それと垂直方向に縮むことにより発生する電荷は符号が逆で、キャンセルされる場合があることがわかる。延伸方向とそれに垂直な方向で弾性定数が大きく異なる場合は十分に出力が得られるが、弾性定数がほぼ等しい場合には出力がキャンセルされてしまう[115]。従って、PVDF<sub>0</sub> フィルムと比較して PLLA<sub>45</sub> フィルムをセンサとして用いた方が物質の伸び縮み等の変位検知には優れていると考えることができる。図 3-3 は PLLA<sub>45</sub> フィルムと PVDF<sub>0</sub> フィルムの逆圧電効果によるフィルムの変形の違いを模式的に表したものである。

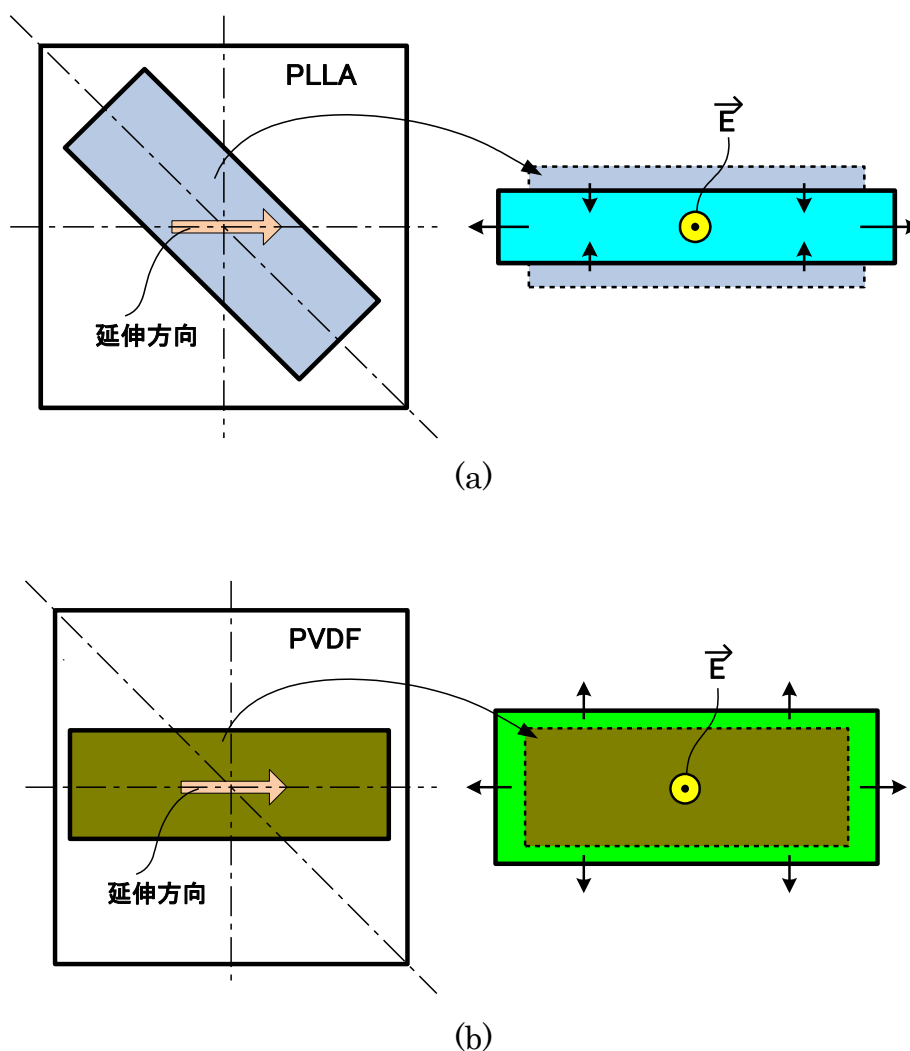


図 3-3. PLLA と PVDF の逆圧電効果による変形の違い

物体の表面は曲げにより伸び縮みが発生する。従って PLLA<sub>45</sub> フィルムでは物体の曲げが検出可能である。また延伸方向に沿って切り出した PLLA フィルム（以降 PLLA<sub>0</sub> フィルムと書く）では、ねじりの検出が可能となる。これに関して詳細に説明する。

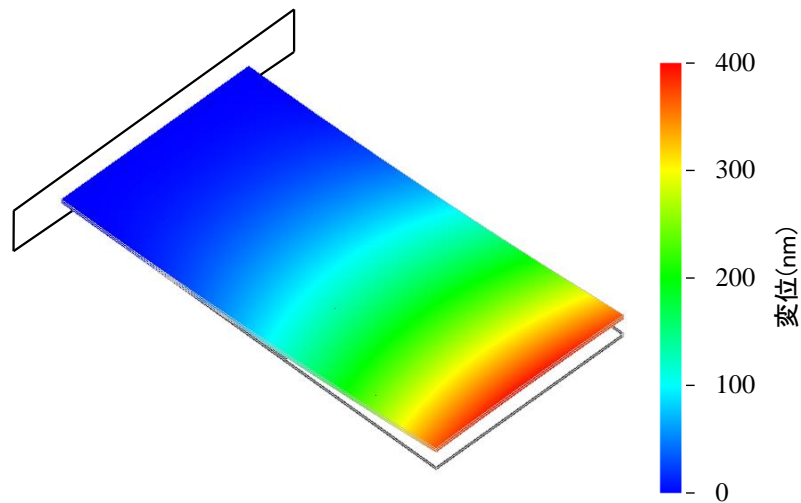
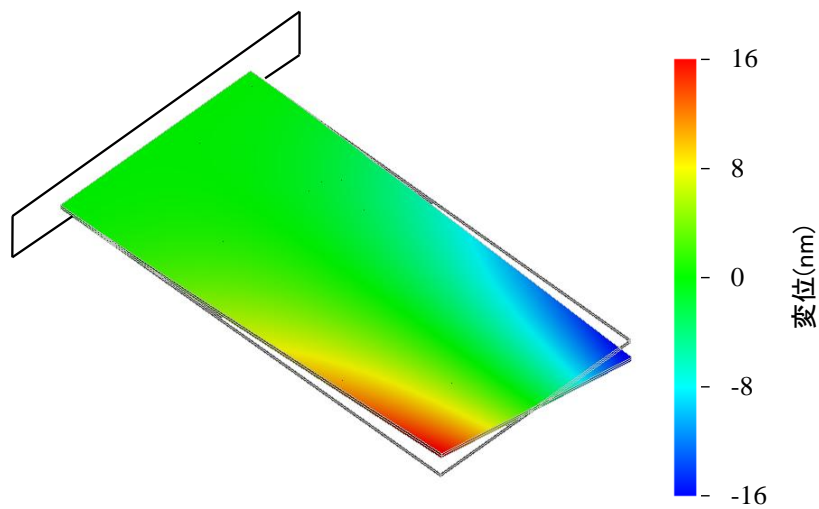
(a) PLLA<sub>45</sub>+PET(b) PLLA<sub>0</sub>+PET

図 3-4. PLLA のカット角の違いによるユニモルフの変位



図 3-4 は PLLA<sub>45</sub> フィルムと PLLA<sub>0</sub> フィルムのそれぞれに PET フィルムを貼り付けてユニモルフとし、一端を固定したカンチレバーとしたものについて、変形の様子を有限要素法：Finite Element Method, (FEM) にてシミュレーションを行ったものである。PLLA フィルムの主面両面には電極が形成されており、これに電圧を与えた際の様子を表している。

カンチレバーの長さは 20mm、幅は 10mm、フィルムの厚みはそれぞれ全て 0.1mm とした。PLLA フィルムの圧電定数は  $d_{14}=6.0\text{pC/N}$  とした。また、印加した電圧は 10V とした。固定端に対して(a)ではカンチレバーが曲がる様に変形し、(b)ではカンチレバーがねじれる様に変形していることが分かる。圧電効果は可逆であるから、これを逆に捉えると PLLA<sub>45</sub> のカンチレバーは曲げを捉えるセンサとすることができ、PLLA<sub>0</sub> のカンチレバーはねじりを捉えるセンサとすることができる。いずれの場合も PLLA フィルムに対して伸張もしくは圧縮の応力がかかる必要がある。フィルム単体での曲げやねじりは、厚み方向の中立面に対して一方側では伸張され、他方側では圧縮される。発生する電荷の符号は逆転しており全体としては打ち消されてしまう。従って、これらのフィルムは必ずある程度の硬さのものに貼り付けて使用する必要がある。

実験を行うために図 3-1 のテストプレート 1 の一方側のフィルムを PLLA<sub>45</sub>、他方側のフィルムを PLLA<sub>0</sub> とし、テストプレート 2 を作成した。(図 3-5)。

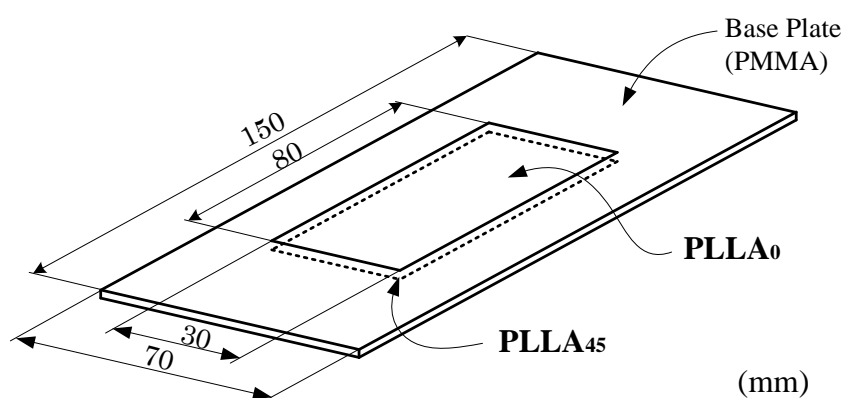
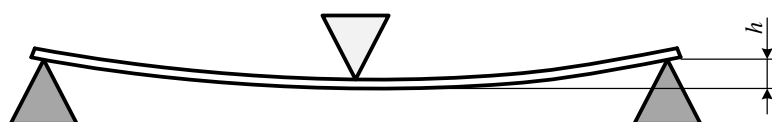


図 3-5. テストプレート 2

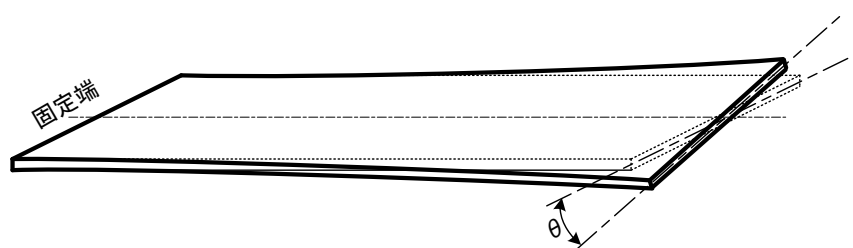
PLLA フィルムの厚みは前項と同様  $72\mu\text{m}$ 、また  $d_{14}=5.8\text{pC/N}$  である。PLLA フィルムの両面には、PLLA の変位を阻害しないようにするため、有機系の電極であるデナトロン®(ナガセケムテックス製)の特別処方品が形成されている。特別処方とは PLLA フィルムに対する濡れ性を良くする、および密着強度を高めるためのものがある。この電極の主成分は、

PeDOT/PSS: poly(3,4- ethylenedioxythiophene) – poly(styrenesulfonate) である[116]。乾燥後の電極の膜厚は  $0.1\sim 0.2\mu\text{m}$  程度である。

図 3-7 はテストプレート 2 を曲げた時(a)、とねじった時(b)、の変位量と各 PLLA フィルムに生じる電荷の関係をグラフにしたものである。曲げの変位量  $h$  とねじり  $\theta$  の変位量は図 3-6.(a), (b)のように定義される。

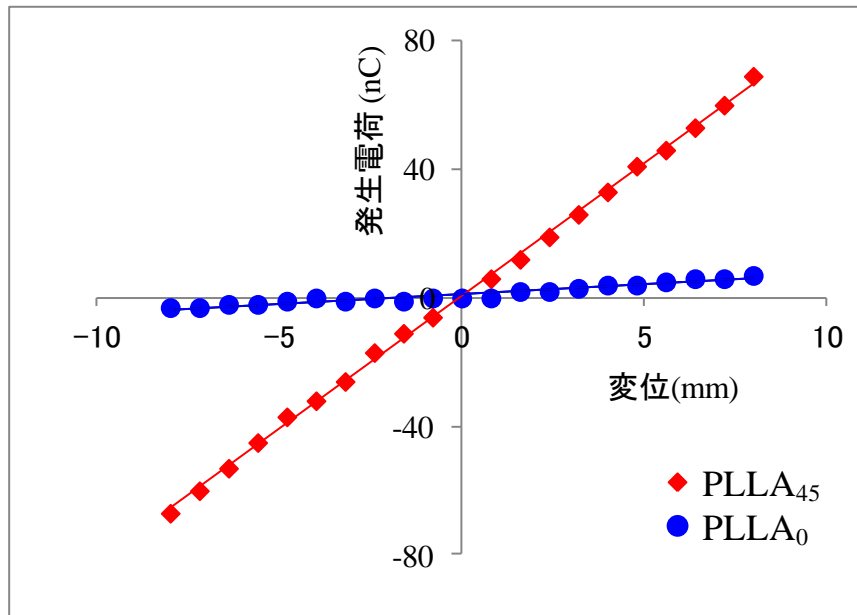


(a) 曲げ量の定義

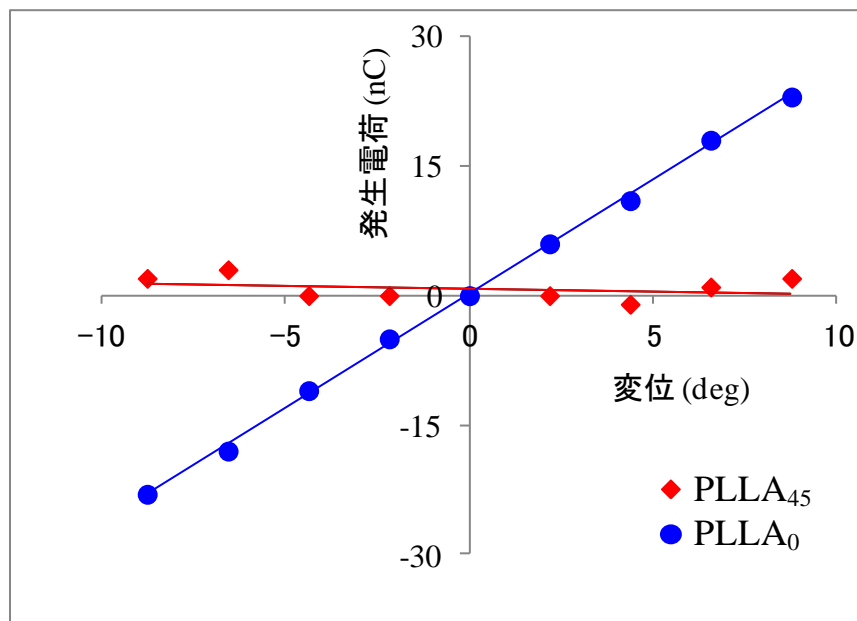


(b) ねじり量の定義

図 3-6. 曲げ量(a)とねじり量(b)の定義



(a) 曲げによる反応



(b) ねじりによる反応

図 3-7. プレートの変位と発生電荷の関係

テストプレート 2 を曲げた時、曲げ検知用のセンサである PLLA<sub>45</sub> が反応し、ねじり検知用センサである PLLA<sub>0</sub> はほとんど反応していないことが分かる。逆にテストプレート 2 をねじった時、ねじり検知用センサである PLLA<sub>0</sub> が反応し、曲げ検知用のセンサである PLLA<sub>45</sub> はほとんど反応していないことが分かる。例えば PLLA<sub>45</sub> フィルムにねじりの変形が加わった時は、電極面内で発生する電荷はマクロ的にキャンセルされてほとんど外部に出てこない。PLLA<sub>0</sub> フィルムに曲げの変形が加わった時も同様である。このようにいずれの動作も非常に独立性よく検知できることが分かる。さらに、変位と電荷の発生量の関係は非常に線形性が高く、優れたセンサとなり得ることが分かる [117]。

### 3.3.3 圧電性 PLLA フィルムの出力係数とセンサとしての検知感度

前項の検討は比較的大きな変位に関するものである。本項では PLLA の低誘電率性がもたらす変位量の検知感度の高さについて説明する。一般に圧電体に応力  $\mathbf{T}$  と電場  $\mathbf{E}$  が加わった時に生じる電気変位  $\mathbf{D}$  は圧電定数（圧電歪定数） $\mathbf{d}$  と誘電率  $\boldsymbol{\varepsilon}$  を用いて式(3-1)のように書ける ( $\mathbf{d}$ ,  $\boldsymbol{\varepsilon}^T$  はテンソル行列である) [89]。

$$\mathbf{D} = \mathbf{d}\mathbf{T} + \boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbf{E} \quad (3-1)$$

$\boldsymbol{\varepsilon}$  は等方的であると仮定し、式(3-1)の両辺を  $\boldsymbol{\varepsilon}$  で除して  $\mathbf{E}$  について解くと式(3-2)を得る ( $\mathbf{g}$  形式) [89]。

$$\mathbf{E} = -\mathbf{g}\mathbf{T} + \frac{\mathbf{D}}{\boldsymbol{\varepsilon}} \quad (3-2)$$

ここで  $\mathbf{g}$  は圧電出力係数と呼ばれ、 $g_{ij} = d_{ij} / \varepsilon$  である。圧電定数  $d$  が大きくても誘電率  $\varepsilon$  が大きければ  $\mathbf{g}$  は相対的に小さくなる。また、逆に  $d$  が小さくても  $\varepsilon$  が小さければ  $\mathbf{g}$  は相対的に大きくなる。変位センサにおける感度の評価の際は、電圧測定を行うため両端電極はほぼ解放状態で、電気変位をかけない場合は、 $\mathbf{D}=[0]$  となるから、式(3-2)は、式(3-3)のようになる。

$$E = -gT \quad (3-3)$$

この式から、応力により生じる電場は、応力と圧電出力係数の積に比例することが分かる。 $d_{14}=2d_{31}$  なので（巻末付録 *apdx1.2* 参照）、 $d_{14}$  を  $d_{31}$  に換算して PLLA, PVDF, PZT を比較すると表 3-2 のようになる。尚、PZT に関する値は文献により多少ばらつきがあるため、ここに示したものは一例である。

表 3-2. 各材料の圧電出力係数比較

物質	$d_{33}^*$	$d_{14}$	$d_{31}^*$	$\epsilon_r$	$g_{14}$	$g_{31}^*$
PLLA(50 $\mu$ m)		6.2	3.1	2.7	0.259	0.130
PLLA(70 $\mu$ m)		5.8	2.9	2.7	0.243	0.121
PVDF	約30-40		23	14		0.186
PZT	200		120	1700		0.008
単位	pC/N	pC/N	pC/N		Vm/N	Vm/N

(\*のついた圧電定数は PVDF の座標系で表したものである。)

PZT の圧電定数は大きいが誘電率が非常に高いため圧電出力係数が小さく、PLLA は既に市販されている PVDF フィルムセンサと比較して遜色のない値となっていることが分かる。さらに、センサを何らかの物体に貼りつけて使用する場合、センサにかかるのは応力ではなく変位と考えた方が良い。応力  $T$  と歪み  $S$  の関係は、弾性率を  $c$ 、弾性コンプライアンスを  $s$  とすると、式(3-4)で表せる。弾性率、弾性コンプライアンスはテンソル行列となる。弾性率テンソルの逆行列が弾性コンプライアンステンソル行列である。（巻末付録 *apdx3.2* 参照）。

$$T = cS = s^{-1}S \quad (3-4)$$

今、図 1-12 の座標系を採用し、圧電性 PLLA フィルムの延伸軸方向を 3 軸方向とし、この延伸軸方向に対して斜め 45° 方向に矩形状に切り出したフィル

ムをセンサとしてプレート貼り付け、このプレートを曲げた時の発生電圧について考える。3軸を2軸方向へ45°回転した軸を3'軸としたとき、矩形状のセンサフィルムの長手方向は3'軸に沿っている。この時センサフィルムに生じる電場  $E$  は、式(3-3), (3-4)から式(3-5)のように表せる (巻末付録 *apdx3.2* 参照)。

$$E_1 = -g_{14}c_{44}(S_{3'} - S_{2'}) \quad (3-5)$$

プレートの曲りによりセンサフィルムは3'軸に沿って伸縮されるとし2'軸方向にはほとんど歪みが発生していない( $S_{2'} = 0$ )と考える。この時の発生電圧  $V$  は、フィルムの厚みを  $t$  とした時、 $V = Et$  の関係から式(3-6)のように表せる。

$$V_1 = -g_{14}c_{44}S_{3'}t \quad (3-6)$$

これらの式から、図3-5のテストプレートモデルで微小変位に対する圧電性 PLLA フィルムの反応感度を計算する。各変数は以下のように定義する。

ベースプレート	厚み(mm): $t_b$ , 長さ(mm): $L_b$ , 幅(mm): $b_b$ 弾性率(Pa): $c_b$
PLLA <sub>45</sub> フィルム	厚み(mm): $t_p$ , 長さ(mm): $L_p$ , 幅(mm): $b_p$ 弾性率(Pa): $c_p$ (MD×45° 方向)

テストプレート (ベースプレート+PLLA<sub>45</sub> フィルム) を両端持ちの梁状態とし、その中央部に  $F$ (N)の応力が加わった時、片端から  $x$  (mm)の位置のたわみ量  $z$  (mm)は、テストプレートの断面2次モーメント  $I_t$ 、テストプレートの弾性率  $c_t$  を用いて式(3-7)のように表すことができる [118]。 ( $0 \leq x \leq L_b/2$ )

$$z = \frac{FL_b^3}{48 \times 10^{-6} c_t I_t} \left( \frac{3x}{L_b} - \frac{4x^3}{L_b^3} \right) \quad (3-7)$$

応力が加わっている部分( $x = L_b/2$ )の変位を  $h$  とすれば、 $h$  は式(3-7)より式(3-8)のように表せる。ただし、 $I_t$  は長さ方向に沿って一様であると仮定する [118]。

$$h = \frac{FL_b^3}{48 \times 10^{-6} c_t I_t} \quad (3-8)$$

テストプレートの曲がりの曲率半径  $R$  (mm) とすれば、一般的に

$$\frac{d^2 z}{dx^2} = -\frac{1}{R} \quad (3-9)$$

となり  $R$  は  $x$  の関数となる。式(3-7), (3-8), (3-9)より  $R$  は式(3-10)のように表せる。

$$R = \frac{L_b^3}{24hx} \quad (3-10)$$

テストプレートのたわみにより一方の主面には伸び、他方の主面には縮みの変位が生じる。ここで、センサである PLLA<sub>45</sub> フィルムは伸びる側の面に貼り合わせられていると仮定し、変位量が小さく、 $R$  が一定である仮定とすれば、伸び側の表面の変位量  $\Delta L_b$  (mm) は式(3-12)のように表せる。

$$\Delta L_b = \frac{L_b t_b}{2R} \quad (3-12)$$

実際には  $R$  は  $x$  の関数となっており、 $x$  に対する微小区間  $dx$  において式(3-12)は成立している。

$x$  の区間は、 $0 \leq x \leq L_b$  なので、 $\Delta L_b$  は式(3-13)のように計算される。

$$\begin{aligned}\Delta L_b &= \int \frac{L_b t_b}{2R} \cdot \frac{dx}{L_b} = \frac{12 t_b h}{L_b^3} \int x dx \\ &= \frac{6 t_b h}{L_b}\end{aligned}\quad (3-13)$$

ここで、テストプレートの断面 2 次モーメント  $I_t$  は以下のように表すことができる。ただし、断面 2 次モーメントはテストプレートの構造により変化するため、以下のように場合分けを行う。

断面 2 次モーメント  $I_t$  :

- i) ベースプレート(BP)のみ :  $I_b$
- ii) BP の片面にセンサが貼り付けられている場合 :  $I_1$
- iii) BP の両面にセンサが貼り付けられている場合 :  $I_2$
- iv) BP の片面にセンサと保護フィルムが貼り付けられている場合 :  $I_{1c}$
- v) BP の両面にセンサと保護フィルムが貼り付けられている場合 :  $I_{2c}$

ただし、保護フィルムの幅を  $b_c$ 、その厚みを  $t_c$  とする。また  $t_b \gg t_p, t_c$  とし、断面 2 次モーメントの中心軸は BP の中心軸に一致するものとする、上記で定義した断面 2 次モーメントはそれぞれ以下ようになる（巻末付録 *apdx2* 参照）。

$$I_b = \frac{1}{12} b_b t_b^3 \quad (3-14)$$

$$I_1 = I_b + \frac{1}{12} b_p t_p^3 + b_p t_p \times \left( \frac{t_b + t_p}{2} \right)^2 \quad (3-15)$$

$$I_2 = I_b + \frac{1}{6} b_p t_p^3 + 2b_p t_p \times \left( \frac{t_b + t_p}{2} \right)^2 \quad (3-16)$$



$$I_{1c} = I_1 + \frac{1}{12} b_c t_c^3 + b_c t_c \times \left( \frac{t_b + 2t_p + t_c}{2} \right)^2 \quad (3-17)$$

$$I_{2c} = I_2 + \frac{1}{6} b_c t_c^3 + 2b_c t_c \times \left( \frac{t_b + 2t_p + t_c}{2} \right)^2 \quad (3-18)$$

ここでは計算を簡単にするために、BP の表面の伸びがそのままセンサの伸び反映されるものと仮定する。また、センサの電極は厚みのない伸縮自由なものとして仮定し無視する。さらにセンサは厚みのない理想的な接着剤で BP に貼り付けられていると仮定する。このときセンサの長手方向に生じる変位  $\Delta L_p$ (mm) と歪み  $S_p$  は以下のように表せる。

$$\Delta L_p = L_p \frac{\Delta L_b}{L_b} \quad (3-19)$$

$$S_p = \frac{\Delta L_p}{L_p} = \frac{\Delta L_b}{L_b} \quad (3-20)$$

発生する電圧を  $\Delta V$ (V) とすれば、式(3-6)~(3-20)から式(3-21)を得る。ただし、一定の力による変位  $h$  はテストプレートの構造によって異なる。(  $S_x = S_p$  )

$$\begin{aligned} \Delta V &= g_{14} c_{44} S_p t_p \times 10^{-3} \\ &= g_{14} c_{44} t_p \frac{\Delta L_b}{L_b} \times 10^{-3} \\ &= g_{14} c_{44} t_p \frac{6t_b h}{L_b^2} \times 10^{-3} \end{aligned} \quad (3-21)$$

$h$  はテストプレートの構造により式(3-14)~(3-18)を用いて以下のようになる。

尚、式を簡単にするためにセンサ（PLLA<sub>45</sub> フィルム）および保護フィルムそのものの断面二次モーメントをそれぞれ  $I_p$ 、 $I_c$  とする。また保護フィルムの弾性率を  $c_c$  とする。

i) BP にセンサが貼り付けられていない場合

$$h = \frac{FL_b^3}{48 \times 10^{-6} c_b I_b} \quad (3-22)$$

ii) BP の片面にセンサが貼り付けられている場合

$$h = \frac{FL_b^3}{48 \times 10^{-6} \left[ c_b I_b + c_p \left\{ I_p + b_p t_p \left( \frac{t_b + t_p}{2} \right)^2 \right\} \right]} \quad (3-23)$$

iii) BP の両面にセンサが貼り付けられている場合

$$h = \frac{FL_b^3}{48 \times 10^{-6} \left[ c_b I_b + 2c_p \left\{ I_p + b_p t_p \left( \frac{t_b + t_p}{2} \right)^2 \right\} \right]} \quad (3-24)$$

iv) BP の片面にセンサと保護フィルムが貼り付けられている場合

$$h = \frac{FL_b^3}{48 \times 10^{-6} \left[ c_b I_b + c_p \left\{ I_p + b_p t_p \left( \frac{t_b + t_p}{2} \right)^2 \right\} + c_c \left\{ I_c + c_c t_c \left( \frac{t_b + 2t_p + t_c}{2} \right)^2 \right\} \right]} \quad (3-25)$$

v) BP の両面にセンサと保護フィルムが貼り付けられている場合

$$h = \frac{FL_b^3}{48 \times 10^{-6} \left[ c_b I_b + 2c_p \left\{ I_p + b_p t_p \left( \frac{t_b + t_p}{2} \right)^2 \right\} + 2c_c \left\{ I_c + b_c t_c \left( \frac{t_b + 2t_p + t_c}{2} \right)^2 \right\} \right]} \quad (3-26)$$

中央部の変位で計算する場合は式(3-21)、中央部にかかる応力で計算する場合はさらに式(3-22)~(3-26)を用いればよい。これより、例えばBPの両面にセンサと保護フィルムが貼り付けられている場合、式(3-21)は最終的に式(3-27)のように書くことができる。

$$\Delta V = \frac{g_{14} c_{44} t_p t_b FL_b \times 10^3}{8 \left[ c_b I_b + 2c_p \left\{ I_p + b_p t_p \left( \frac{t_b + t_p}{2} \right)^2 \right\} + 2c_c \left\{ I_c + b_c t_c \left( \frac{t_b + 2t_p + t_c}{2} \right)^2 \right\} \right]} \quad (3-27)$$

ただし、 $I_p = \frac{b_p t_p^3}{12}$ ,  $I_c = \frac{b_c t_c^3}{12}$  である。

ここではテストプレートの長さ方向の断面2次モーメントは一定であると仮定した。ベースプレートに対してセンサの長さや保護フィルムの長さが極端に短くなければ計算結果にはほとんど影響はない。また通常、保護フィルムのサイズはセンサのサイズよりもやや大きくされるが、保護フィルムがセンサと積層されない部分は、積層されている部分と比較して十分小さいとして無視した。

BPの両面にセンサと保護フィルムが貼り付けられていると想定し、式(3-27)に基づきBPがPMMAの場合と、ガラスの場合との荷重と発生電圧の関係を表3-3に示す。下プレートの長さは両端支持点間距離として125mmで計算した。ただし、信号は片側のセンサのみから発生するものを測定したとする。

表 3-3. 荷重と発生電圧の関係

PLLA		PMMA		ガラス	
変数	値	変数	値	変数	値
$g_{14}$	0.242Vm/N	$b_b$	70mm	$b_b$	70mm
$c_{44}$	1.42GPa	$c_b$	3.1GPa	$c_b$	70GPa
$L_p$	80mm	$L_b$	125mm	$L_b$	125mm
$t_p$	72 $\mu$ m	$t_b$	2mm	$t_b$	0.5mm

		PMMA		ガラス	
$W$ (g)	$F$ (N)	$h$ (mm)	$V$ (V)	$h$ (mm)	$V$ (V)
50	0.49	0.11	2.13	0.24	0.72
100	0.98	0.22	4.26	0.47	1.44
150	1.47	0.34	6.40	0.71	2.16
200	1.96	0.45	8.53	0.95	2.88

これを図 3-7(a)の実測結果と比較する。図 3-5 に示したテストプレートには実際には保護フィルムが貼り付けられているが図示を省略している。保護フィルムは厚さ 50 $\mu$ m の PET フィルムである。図 3-7(a)の PLLA<sub>45</sub> フィルムの変位と発生電荷の関係に対する最小二乗近似直線は、変位  $h$ (mm)、発生電荷  $Q$ (nC) とすれば式(3-28)で表せる。

$$Q = 8.33h \quad (3-28)$$

PLLA<sub>45</sub> フィルムの容量を  $C$  とした時  $Q$ ,  $C$ ,  $V$  の間には一般に  $Q = CV$  の関係があり、PLLA<sub>45</sub> フィルムの面積と誘電率から  $C \approx 0.8$ (nF) と計算される。この関係から表 3-3 の PMMA の場合の計算値と、図 3-6(a)に示した実測値（近似式利用）の発生電荷を比較すると表 3-4 のようになる。

実測の場合、センサである PLLA<sub>45</sub> フィルムはアクリルプレートに対して OCA (Optical Clear Adhesive) を用いて貼り合わされている。曲げることにより、プレートの歪みの全てが PLLA<sub>45</sub> フィルムに伝わらず、OCA の粘着剤の滑りにより、ある程度緩和されるため、計算値よりも経験上必ず低い値となる。

表 3-4. BP が PMMA 場合の曲げセンサの計算値と実測の比較

荷重	応力	歪量	計算	実測	差異	
$W$ (g)	$F$ (N)	$h$ (mm)	$Q_c$ (nC)	$Q_m$ (nC)	$Q_d$ (nC)	%
50	0.49	0.11	1.70	0.93	0.76	45.01
100	0.98	0.22	3.40	1.87	1.53	
150	1.47	0.34	5.09	2.80	2.29	
200	1.96	0.45	6.79	3.73	3.06	

この緩和量は OCA の種類や厚み、粘着剤の固さ、センサのサイズ (OCA のサイズ) により決まる。この程度のセンサのサイズであれば、汎用の OCA を使用した場合、出力が約半分程度 (緩和量=45%) に低下していることがわかる。良く利用される OCA の厚みは通常 20~30 $\mu\text{m}$  程度である。通常、粘着剤の弾性率は PLLA の弾性率よりも 4 桁以上も低い。経験上粘着剤の厚みが小さい OCA を用いるほどセンサの感度は増す。変位を的確にとらえ、感度を高くするためには PLLA<sub>45</sub> フィルムと被検知物とを貼り合わせる接着部分のトータルの弾性に注意する必要があることが分かる。つまり、粘着剤 (接着剤) の弾性率および厚みに注意する必要がある。これに関しては、実際のセンサの開発に関して記載した 4 章において詳しく述べる。

OCA 等の粘着剤は粘弾性を持っており、速い動きに対しては硬く、遅い動きに対しては柔らかくなるような挙動を示す。従って、非常に高速で変位が加えられた場合と、ゆっくりと変位が加えられた場合で発生する電荷に差が生じる事がある。この点においても注意が必要であるが、手や指で操作するデバイスにおいてはいくら速くてもせいぜい 10Hz 程度であり、粘弾性の影響はさほど大きくない。圧電体からの発生電圧は、同じ変位であっても変位時間が短いほど出力が大きくなる。実際の使用においては、むしろこの点に関する注意が必要であり、必要に応じて積分回路等を用いる等の処置が必要である。図 3-7.(a), (b) に示した測定結果は積分回路を用いて電荷量を測定した結果であり、押圧スピードは測定結果にほとんど影響が無い。

結果的に式(3-27)は接着剤等による機械的緩和係数を  $\delta_a$  とすれば以下、式(3-29)のように表すことができる。

$$\Delta V = \delta_a g_{14} c_{44} t_p t_b FL_b \times 10^3 J_{2c} \quad (3-29)$$

ただし

$$J_{2c} = \frac{1}{8 \left[ c_b I_b + 2c_p \left\{ I_p + b_p t_p \left( \frac{t_b + t_p}{2} \right)^2 \right\} + 2c_c \left\{ I_c + b_c t_c \left( \frac{t_b + 2t_p + t_c}{2} \right)^2 \right\} \right]}$$

$J_{\#\#}$ は、テストプレートの構造に応じて、式(3-23)～(3-26)を参考にして適切なものを選択する。表 3-4 の例では  $\delta_a \doteq 55\%$  (=100% - 45%)となる。

ここまでで見てきたように、HMI としては非常に小さな荷重、小さな変位でも十分な出力が得られることが分かる。HMI において人間の手による操作はできるだけ大雑把な方がコントロールし易い。最低荷重としては 40~50g 程度が検知できれば十分である。表 3-3 では、タッチパネルへの使用も考慮して 0.5mm 厚のガラスにおける変位と発生電圧についても計算した。2mm の PMMA より 0.5mm のガラス板の方がやや変位が大きい、薄いために表面の伸びが少なくなり PLLA<sub>45</sub> フィルムにかかる伸長歪みが小さくなる。従ってその分、出力が小さくなっている。実際のスマートフォン等では、最近 0.5mm のガラスが用いられることが増えている。またガラスは割れることがあるために、PC 等の樹脂パネルも検討され始めている。ここでの検討はプレートの長辺方向の両端部が支えられた単純な変形の検討であるが、実際の機器ではガラスの形状や、固定方法がここでの検討のように単純ではない。特に固定方法に関しては4辺全てが固定されるため応力に対する変位はかなり小さくなると考えられる。一般的に電圧検知回路は mV、 $\mu$ V オーダーの検知は十分可能であり、タッチパネルの押圧力検知にも十分使えそうであることが分かる。

### 3.3.4 圧電性 PLLA フィルムの光学特性（透明性、色度、消衰係数、屈折率）

これまで説明してきた特徴に加えて PLLA は非常に透明度が高いという極めて優れた特徴を持つ。透明度が高ければ、光学系の HMI に用いることができる。特にタッチパネル等に有効であると考えられる。図 3-8 は分光光度計・島津製作所製 UV2450 により測定した圧電性 PLLA フィルムの分光透過率である（試料 1, 2, 3 は原反からの切り出し位置が異なるだけである）。可視光線域において高い透過率を保ちフラットネスも高い（ただし反射を含む）。

図 3-9 はタッチパネル用のガラスの分光透過率と、圧電性 PLLA フィルムをガラスに貼り合わせたときの分光透過率である。測定器及び想定手法は図 3-8 の場合と同じである。ガラスに対して圧電性 PLLA フィルムを貼り付けた場合の方が透過率は上昇しているが、これはガラスと空気の界面の反射が圧電性 PLLA フィルムにより抑えられたためであり、反射による透過光の損失が低減されたことによる。これにより圧電性 PLLA フィルムの内部ヘイズによる透過光の損失はほとんどないことが分かる。表 3-5 に圧電性 PLLA フィルムの内部

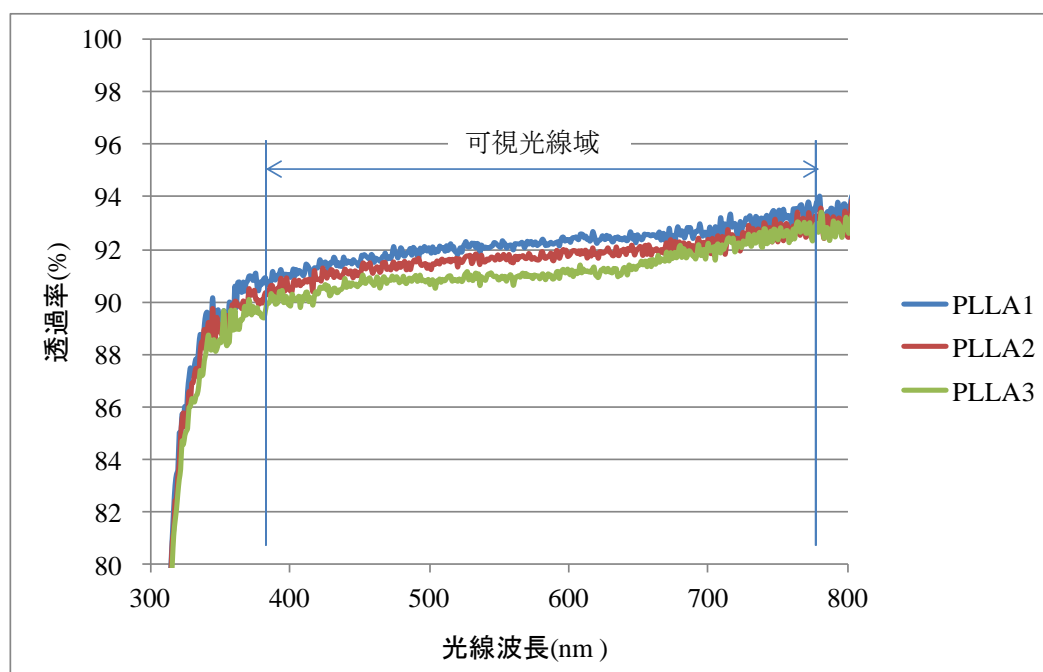


図 3-8. PLLA の分光透過率

ヘイズ値を測定した結果を示す。表中における記号は以下のことを指す。

$T_t$  : 全光線透過率、 $T_d$  : 拡散光線透過率、 $T_p$  : 平行光線透過率

この結果からヘイズ  $H(\%)$  は式(3-30)から求められる。尚、ヘイズの測定に関しては日本工業規格(JIS) K 7105 に準拠し東京電色製 TC-HIII DPK を用いて行った (データ提供 : 三井化学株式会社) [119]。

$$H = \frac{T_d}{T_t} \times 100 \quad (3-30)$$

表 3-5. 全光線透過率とヘイズ

試料	$T_t(\%)$	$T_d(\%)$	$T_p(\%)$	$H(\%)$
1	98.3	0.5	97.8	0.5
2	98.7	0.4	98.3	0.4
3	99.1	0.2	98.8	0.2
average	98.7	0.4	98.3	0.4

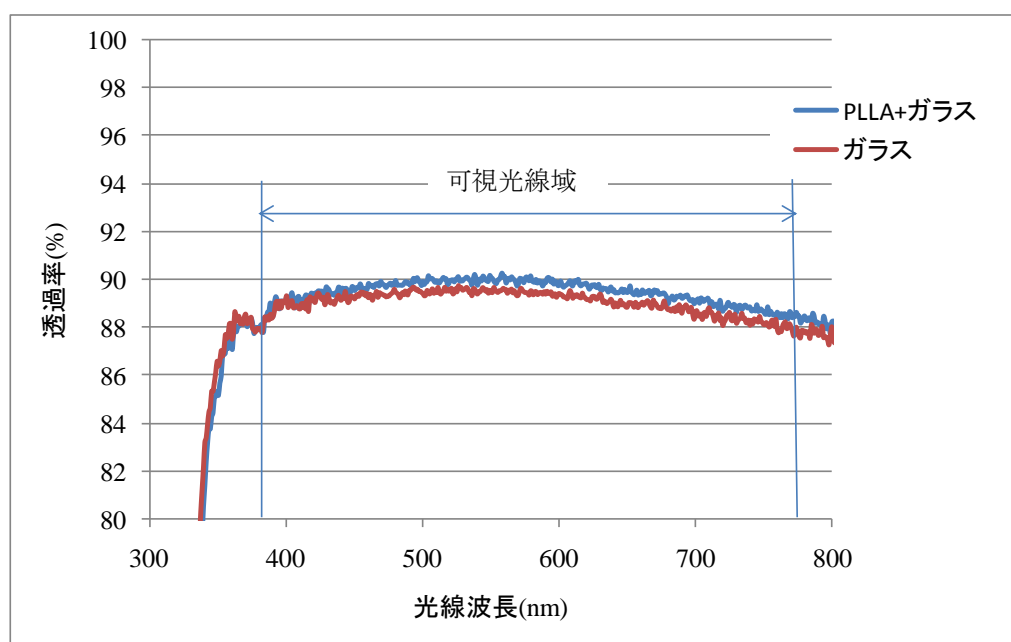


図 3-9. ガラスと、圧電性 PLLA フィルム+ガラス、の分光透過率



図 3-8 に示した光線波長に対する光線透過率の関係から圧電性 PLLA フィルムはほとんど無色透明に近いことがわかる。これについては次のように「色度」を用いた正確な評価を実施した。

1 つの色を表すために人間の感覚的な 3 原色である R(red), G(green), B(blue)の色光の強さをそのまま使うと 3 つの数値が必要となる。色そのものは RGB の光の混合比で決まるので、RGB 全部の光の強さの和を 1 とすれば、R と G の光の相対比から B の相対比を自動的に決めることができる。つまり、2 つの数値で色を決めることができる。実際には感覚的な 3 原色 RGB だけでは表せない色もあるので、機器による測色、表色、目の波長感度特性を詳しく調べて数値化した「表色上の 3 原色」である 3 刺激値  $X, Y, Z$  を用いて 2 値である色度  $x, y$  を決定する。3 刺激値は測色標準観測者の等色関数  $x(\lambda), y(\lambda), z(\lambda)$  と試料刺激の色度関数  $\varphi_\lambda(\lambda)$  を用いて式(3-31)~(3-33)のように表される[120]。

$$X = k_c \int \varphi_\lambda(\lambda) \cdot x(\lambda) d\lambda \quad (3-31)$$

$$Y = k_c \int \varphi_\lambda(\lambda) \cdot y(\lambda) d\lambda \quad (3-32)$$

$$Z = k_c \int \varphi_\lambda(\lambda) \cdot z(\lambda) d\lambda \quad (3-33)$$

$\lambda$  は波長であり、積分で求める範囲は 360~830nm である。また  $k_c$  は定数で、通常透過物体色では完全拡散透過体の  $Y$  値が 100 となるように定める。一次光源において  $Y$  値が測光量の絶対値を表す必要があるときには  $k_c$  は最大視感効果度  $K_m$  に等しい。この時  $K_m = 683 \text{ (lm/W)}$  である[120]。色度計算時には  $k_c$  は消去されるため、ここでは正確な値を求めている。

ここで  $\varphi_\lambda(\lambda)$  は、標準光源の分光分布を  $\alpha_\lambda(\lambda)$  とし、試料の分光分布を  $\beta_\lambda(\lambda)$  とした時、式(3-34)のようになる[120]。

$$\varphi_\lambda(\lambda) = \alpha_\lambda(\lambda) \cdot \beta_\lambda(\lambda) \quad (3-34)$$

尚、等色関数  $x(\lambda)$ ,  $y(\lambda)$ ,  $z(\lambda)$  は JIS 規格に記載されている[120]。また、 $\alpha_i(\lambda)$  は標準光源の資料に記載されている。ここでは  $10^\circ$  視野の等色関数を使用し、また標準光源として D65 標準光源を使用した。

色度  $x, y$  は 3 刺激値  $X, Y, Z$  から式(3-35), (3-36)に基づいて算出する[120]。図 3-10 は光透過性物質の色度を判断するために用いる  $10^\circ$  視野の  $xy$  色度図である[121]。

$$x = \frac{X}{X+Y+Z} \quad (3-35)$$

$$y = \frac{Y}{X+Y+Z} \quad (3-36)$$

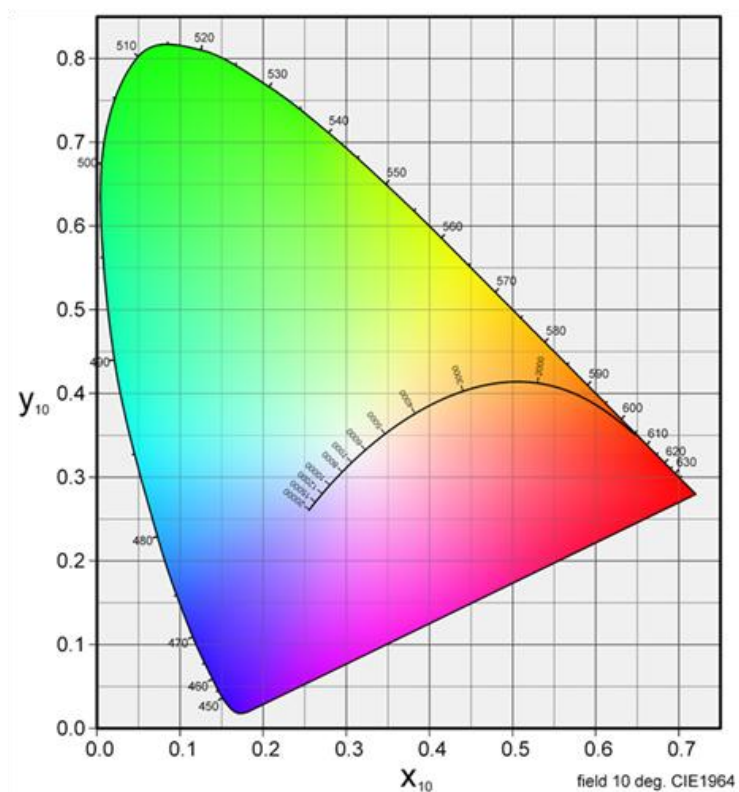


図 3-10.  $xy$  色度図

図 3-11 は、それぞれ圧電性 PLLA フィルムと光学用 PET フィルム（東レ ルミラー®）を 3 枚測定した時の平均値の分光透過率と、文献から取得した  $10^\circ$  視野の等色関数を示したものである。この図から、光学用 PET フィルムの光線透過率を圧電性 PLLA フィルムの光線透過率が上回っていることが分かる。ただし、この測定は反射を含んでおり、光学用 PET フィルムの方が圧電性 PLLA フィルムよりも反射が大きいため、このように光線透過率に大きな差があるように見える。

図 3-11 のデータに基づいて、式(3-31)~(3-33)から 3 刺激値  $X, Y, Z$  を計算した。実際には  $k_c$  を求めているので 3 刺激値として、 $X/k_c, Y/k_c, Z/k_c$  の値を求めた。さらに式(3-35), (3-36)から色度  $x, y$  の値を求めた。これらを表 3-6 にまとめて示した。圧電性 PLLA フィルムと光学用 PET フィルムの色度はほぼ同等であり、図 3-10 の色度図から見て完全に無色透明であることが分かる。

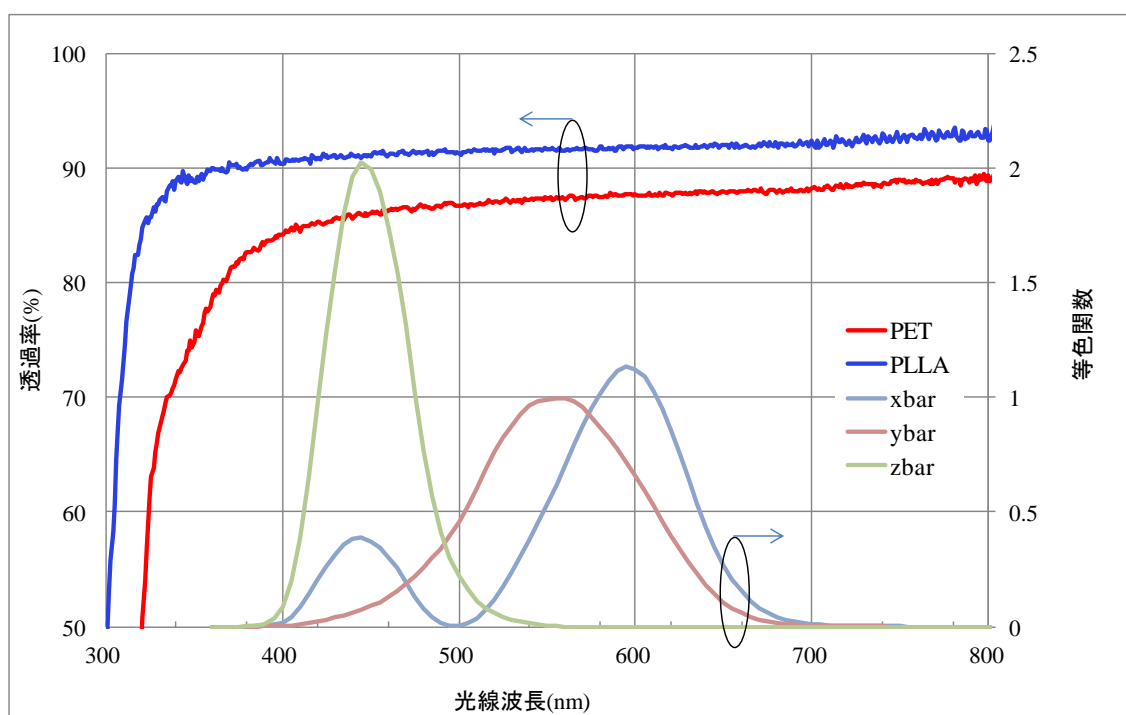


図 3-11. フィルムの光線透過率と等色関数

表 3-6. 3 刺激値および色度

	試料	3刺激値			色度	
		$X/k_c$	$Y/k_c$	$Z/k_c$	$x$	$y$
標準光源(D65)		2203.2	2323.7	2491.0	0.3139	0.3311
光学用PET	1	1923.3	2028.4	2145.7	0.3154	0.3327
	2	1926.0	2031.2	2149.3	0.3154	0.3326
	3	1928.9	2033.6	2152.6	0.3154	0.3326
	average	1926.1	2031.0	2149.2	0.3154	0.3326
圧電性PLLA	1	2030.8	2141.8	2284.6	0.3145	0.3317
	2	2019.8	2129.7	2274.2	0.3144	0.3315
	3	2005.1	2114.1	2261.6	0.3142	0.3313
	average	2018.6	2128.5	2273.4	0.3144	0.3315

次に Lab 色空間について説明する。これは、人間の目で見える全ての色を記述でき、機器固有のモデルの基準として利用できるように意図して定められた基準であり、CIELAB (CIE  $L^*$   $a^*$   $b^*$ ) と呼ばれる。タッチパネルに使用される材料の光学的評価にはこの値が用いられることが多い。CIELAB の3つの座標は色の明度( $L^*$ )、赤/マゼンタと緑の間の位置( $a^*$ )、黄色と青の間の位置( $b^*$ )に対応している。 $L^*$ が小さいほど暗くなり、 $a^*$ が負の場合は緑寄り、正の場合はマゼンタ寄り、 $b^*$ が負の場合は青寄り、正の場合は黄色寄りとなる。 $L^*$ ,  $a^*$ ,  $b^*$  の値は3刺激値を用いて以下の式(3-37)~(3-41)を用いて求められる[122]。ただし  $X_n$ ,  $Y_n$ ,  $Z_n$  は標準光源の3刺激値である。

$$L^* = 116f\left(\frac{Y}{Y_n}\right) - 16 \quad (3-37)$$

$$a^* = 500\left\{f\left(\frac{X}{X_n}\right) - f\left(\frac{Y}{Y_n}\right)\right\} \quad (3-38)$$

$$b^* = 200\left\{f\left(\frac{Y}{Y_n}\right) - f\left(\frac{Z}{Z_n}\right)\right\} \quad (3-39)$$

ただし

$$f(u) = u^{1/3} \quad \text{ただし} \quad u > \left(\frac{6}{29}\right)^3 \quad (3-40)$$

$$f(u) = \frac{1}{3} \left(\frac{29}{6}\right)^2 u + \frac{4}{29} \quad \text{上記以外} \quad (3-41)$$

表 3-6 の値を基に、式(3-37)~(3-41)により  $L^*$ ,  $a^*$ ,  $b^*$  の値を求めた結果を表 3-7 に示す。この表から圧電性 PLLA フィルムは光学用 PET フィルムよりも黄色みが小さく、光学特性が優れていることが分かる。一般的なタッチパネルでは透明電極として酸化インジウムスズ : Indium Tin Oxide, (ITO) が用いられることが多い。ITO は黄色みが強いためこれに重ねられるフィルムは  $b^*$  が小さい方が好ましい。

表 3-7. 圧電性 PLLA の CIELAB 表記

	$L^*$	$a^*$	$b^*$
光学用PET	94.91	0.0312	0.8250
圧電性PLLA	96.66	0.0348	0.2364

次に圧電性 PLLA フィルムの消衰係数  $k$  について検討する。消衰係数とは物質が光のエネルギーをどれだけ吸収するかということ判断するために使用するパラメータであり、 $k$  により求められる吸収の度合いは以下のような関係となる (Lambert Beer の法則) [112]。

$$\Gamma = \Gamma_0 e^{-\alpha z} \quad (3-42)$$

$$\alpha = \frac{4\pi k}{\lambda} \quad (3-43)$$

ここで、 $\Gamma$ ：透過光の強度、 $\Gamma_0$ ：最初の光の強度、 $z$ ：侵入深さ、 $\alpha$ ：吸収係数、 $\lambda$ ：光の波長、である。このとき透過率  $\tau$  は式(3-44)のように表すことができる。

$$\tau = \frac{\Gamma}{\Gamma_0} = e^{-\alpha z} \quad (3-44)$$

消衰係数の測定に関しては、通常エリプソメーターで測定するが、有機フィルムのように表面が凸凹しているものに関しては正確な測定ができなかった。従ってここでは、厚みの異なる圧電性 PLLA フィルムの分光透過率を測定し、反射によって生じる損失を等しいと仮定して  $k$  を求めることとした。厚み  $t_1$  の試料の透過光の強度を  $\Gamma_1$ 、反射係数を  $R_1$ 、厚み  $t_2$  の試料の透過光の強度を  $\Gamma_2$ 、反射係数を  $R_2$  とすれば、それぞれの透過光の強度は、表面の反射と裏面の反射を考慮して式(3-42)より以下のように表せる。

$$\Gamma_1 = (1 - R_1)^2 \Gamma_0 e^{-\alpha t_1} \quad (3-45)$$

$$\Gamma_2 = (1 - R_2)^2 \Gamma_0 e^{-\alpha t_2} \quad (3-46)$$

$R_1=R_2$  なので式(3-45)、(3-46)から反射係数を消去して式(3-47)を得る。

$$\alpha = \frac{1}{t_2 - t_1} \ln \frac{\Gamma_1}{\Gamma_2} \quad (3-47)$$

式(3-43)、(3-47)より消衰係数  $k$  は式(3-48)で求められる。

$$k = \frac{\lambda}{4\pi(t_2 - t_1)} \ln \frac{\Gamma_1}{\Gamma_2} \quad (3-48)$$

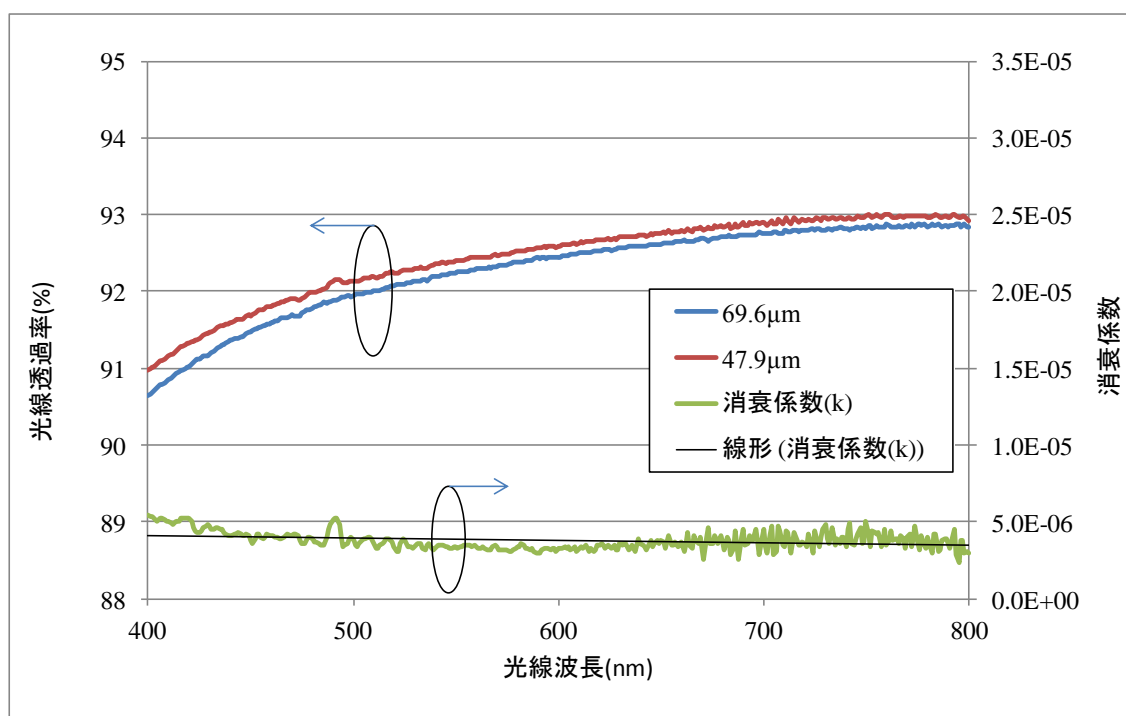


図 3-12. 消衰係数の波長依存性

厚みの異なる圧電性 PLLA フィルムの分光特性を図 3-12 に示した。フィルムの厚みはそれぞれ、 $t_1=47.9$  ( $\mu\text{m}$ )、 $t_2=69.6$  ( $\mu\text{m}$ ) であり、式(3-47)から  $k$  を求め、図 3-12 に同時に示した。尚、分光特性（透過率）は、それぞれのフィルムを 5 回測定し、その平均値をグラフ化している。例えば波長 550nm（一般的な透過率を論じるときに選択される波長）の時の  $k$  は、計算値の前後 5 個の平均をとれば  $3.36\text{E-}6$  (545~555nm の間の平均) と算出される。一般的な透過率として、フィルムの厚さが 1mm の時の透過率を求めると、式(3-43)、(3-44)から、圧電性 PLLA フィルムの光線透過率は 92.6% となる。50 $\mu\text{m}$  の厚さであれば光線透過率は 99.6% となる。

光学系の機器、例えばタッチパネルに圧電性 PLLA フィルムを用いる場合を考えると、以上の検討により透明度や色度に関しては全く問題がないと考えられるが、複屈折に関しては以下の点に注意が必要である。

圧電性 PLLA フィルムは一軸配向されているために複屈折を持つ。複屈折とは物質中を光が通過するとき振動面の向きによってその進む速度が異なることを指す。延伸軸の方向(MD)の屈折率が、延伸方向と垂直の方向(TD)の屈折率と比較してやや高くなる。この屈折率の差が複屈折を生む原因となる[123]。それぞれの方向の屈折率を  $N_{MD}$ ,  $N_{TD}$  とした時にその屈折率差を  $\Delta N = N_{MD} - N_{TD}$  と定義し、これにフィルムの厚み  $t_p$  を掛け合わせたもの、即ち  $\Delta N t_p$  をリタデーションと呼ぶ。 $\Delta N$  は波長分布を持つため、リタデーションも波長分布を持つ。図 3-13 に屈折率  $N$  の波長依存性を示す。尚、屈折率の測定に関しては Metricon Corp. 製、Prism Coupler Model 2010 を用いた。

通常タッチパネルの下部には LCD が配置されている。LCD は偏光板を有しているため、この画面を偏光サングラス越しに見た時にはクロスニコルの状態になる場合があり、LCD の偏光板と偏光サングラスの間にある圧電性 PLLA フィルムのリタデーションにより画面の色が変わって見える場合がある。構造の詳細に関しては次章にて詳細に解説するが、LCD の偏光板は通常画面に対して  $45^\circ$  の方向に向けられている。また、圧電性 PLLA フィルムにてタッチパネルの押圧を検知する際には PLLA<sub>45</sub> フィルムを用いる。これにより偏光の向きが完全にそろうため、このような配置では偏光サングラス越しにタッチパネルを見ても LCD の画面の色が大きく変化してしまわない。

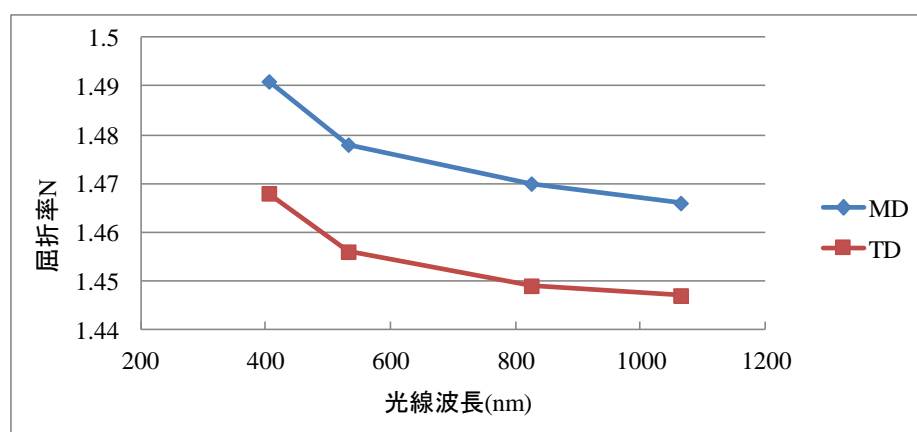


図 3-13. 屈折率の波長依存性



### 3.3.5 圧電性 PLLA フィルムの機械物性

圧電性 PLLA フィルムは一軸延伸フィルムであるために、延伸軸方向(MD)に分子が配向しており、MD に対する引っ張りには非常に強度が高いが、延伸軸と垂直な方向(TD)に対する引っ張りには引き裂け易いという特徴を持つ。変位を検出する HMI に対して圧電性 PLLA フィルムを用いた時、どの程度の機械的ストレスに耐えるかをここでは明らかにする。

一般に物質に外力が作用する時、物質の内部には外力に抵抗する力が生じると共に変形、即ち歪みが生じる。逆に、強制的に歪みが加えられた時にはそれに応じた力が観測できる。歪みに対して応力がほぼ直線的に上昇する領域を弾性域と呼び、弾性域を過ぎると応力が上昇せず歪みだけが上昇する塑性域となる。弾性域と塑性域の境目が降伏点であり、物質の機械的強度を確保するためには弾性域内で使用する必要がある。図 3-13、図 3-14、図 3-15 は JIS K 7127, K 7128-3 に基づく引っ張り強度試験による応力-歪み曲線であり、順に「MD」、「TD」、「MD に対して 45° 方向」の試験結果を示している[124, 125]。この試験により、引っ張り弾性率、引っ張り降伏応力、引っ張り強さが求められる。

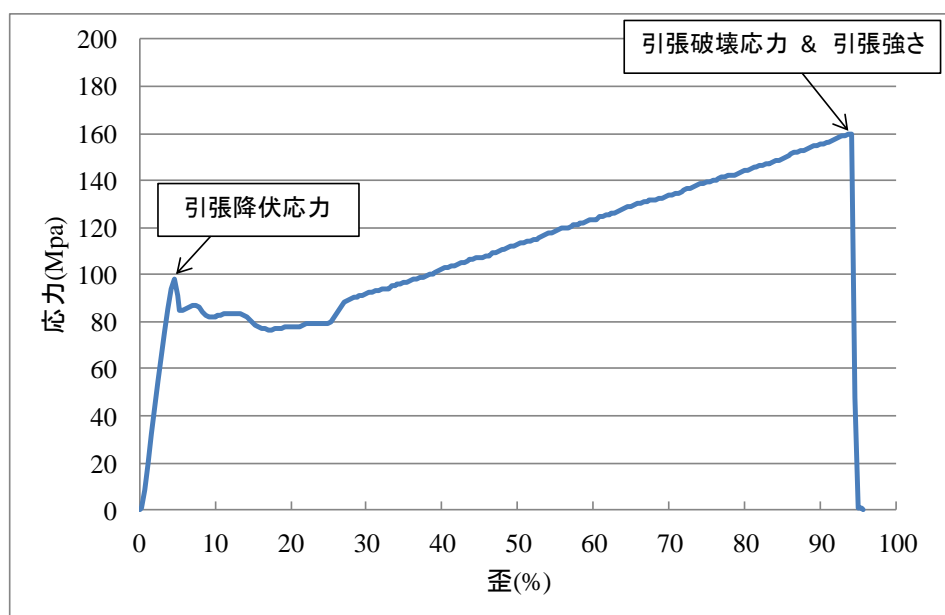


図 3-13. MD の応力-歪み曲線

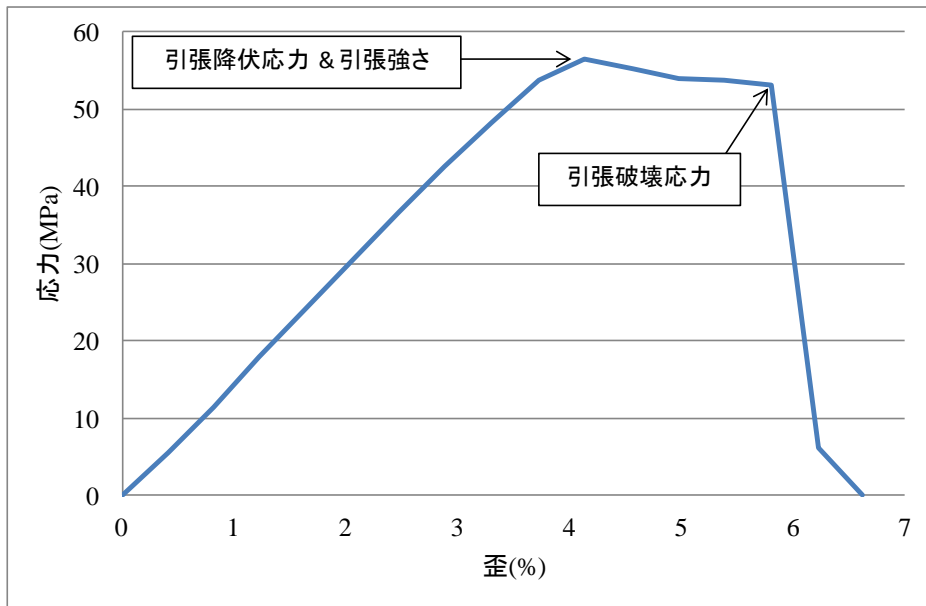


図 3-14. TD の応力-歪み曲線

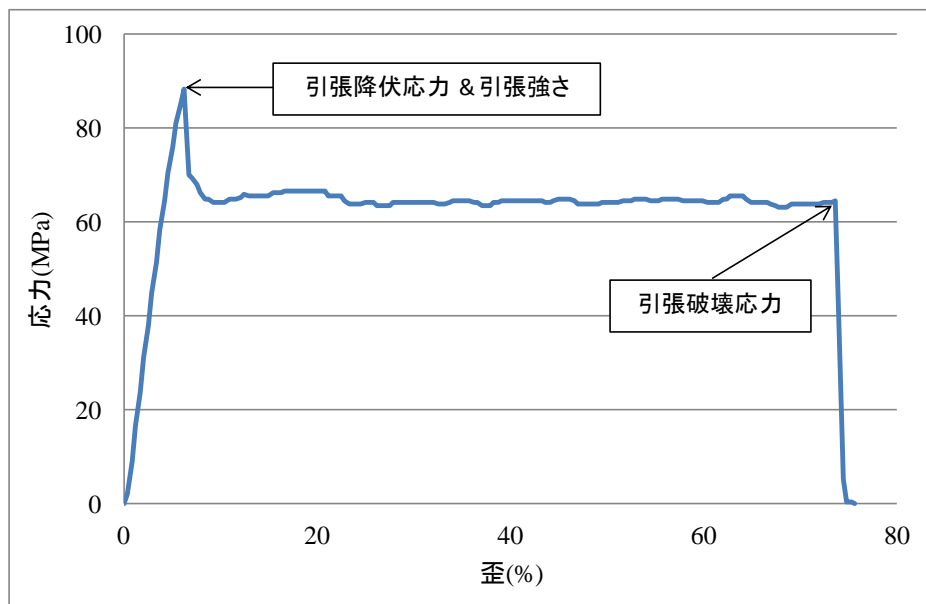


図 3-15. MD に対して 45° 方向の応力-歪み曲線

ここでは主に、HMI に圧電性 PLLA フィルムを用いた場合、大きく変位させる HMI デバイスに対して PLLA が十分な強度を有するか否かについて検討する。

それぞれの引っ張り降伏応力を表 3-8 に示す。またその時の引っ張り降伏歪みを表 3-9 に示す。

表 3-8. 各方向の引っ張り降伏応力

試料	引っ張り降伏応力 $\sigma_Y$ (MPa)		
	MD	TD	MD $\times$ 45°
1	97.8	56.5	88.5
2	97.8	55.7	85.5
average	97.8	56.1	87.0

表 3-9. 各方向の引っ張り降伏歪み

試料	引っ張り降伏歪 $\epsilon_Y$ (%)		
	MD	TD	MD $\times$ 45°
1	4.57	4.14	6.23
2	6.20	4.57	6.21
average	5.38	4.35	6.22

圧電性 PLLA フィルムの分子は一軸配向されているため、最も引っ張りに対して弱いのは TD 方向である。例えば図 3-5 に示したテストプレート 2 で考えた時、式(3-7)~(3-13)を使い大変形の時のセンサにかかる歪みを計算すると 90° 近くまで曲げても歪みはせいぜい 2%以下である。実際には大きな変位の際は表面が歪んで完全にはこの式には従わず、ポアッソン比の影響を受けて歪み量は緩和される。また先に述べたように接着剤（または粘着剤）の滑りによる緩和もあり、センサフィルムにかかる歪みは 1%近くまで落ちる。最小の引

引っ張り降伏歪みは約 4%であり、大きな変形に対しても十分な耐性があることが分かる。

弾性率に関しては JIS K7128-3 によれば、歪み  $\varepsilon_1=0.0005$  において測定された時の引っ張り応力を  $\sigma_1$  とし、歪み  $\varepsilon_2=0.0025$  において測定された時の引っ張り応力を  $\sigma_2$  とした時、引っ張り弾性率  $E_t$  は式(3-49)のように定義される[125]。

$$E_t = \frac{\sigma_2 - \sigma_1}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1} \quad (3-49)$$

引っ張り弾性率は大まかに見ると、引っ張り降伏応力に至るまでの弾性変形の傾きに等しい。しかし高分子材料の多くは粘弾性的挙動があるために、線形粘弾性の範囲内であっても応力-歪み曲線は直線にはならず、やや歪み軸の方へ曲がる。従って引っ張り降伏応力に至るまでの弾性変形を直線近似してその傾きを求めたものは本来の弾性率よりも低くなる。式(3-49)の定義から弾性率を求めるためには非常に精密な測定が必要で、図 3-13、図 3-14、図 3-15 から弾性率そのものを求めても本来の値とはならない。圧電性 PLLA フィルムの正確な引っ張り弾性率 (MD に対して  $45^\circ$  方向) に関しては、表 3-10 のようになる (データ提供：三井化学株式会社)。

表 3-10. 引っ張り弾性率

試料方向	MD×45°
引っ張り弾性率(GPa)	3.74

### 3.3.6 圧電性 PLLA フィルムの温度特性

式(3-29)において  $g_{14} = d_{14}/\varepsilon$  なので、式(3-29)は改めて式(3-50)のように書ける。

$$\Delta V = \frac{\delta_a d_{14} c_{44} t_p}{\varepsilon} t_b FL_b \times 10^3 J_{2c} \quad (3-50)$$

PLLA の物理特性に着目すれば、温度による誘電率はほぼ一定と考えられる。またフィルムの厚みは線膨張係数に依存し影響はあまり大きくない。従って、 $d_{14} \times c_{44}$  が温度特性において重要なファクターであることが分かる。ここで、 $c_{44} = 1/s_{44}$  である。MD の弾性コンプライアンスを  $s_{33}$ 、TD の弾性コンプライアンスを  $s_{22}$ 、MD に対して  $45^\circ$  方向の弾性コンプライアンスを  $s_{3'3'}$ 、ポアソン比を  $\rho$  とすれば、 $s_{44}$  は式(3-51)のように表せる（巻末付録 *apdx3.3* 参照）。

$$s_{44} = 4s_{3'3'} - s_{22} - s_{33} - 2\rho s_{33} \quad (3-51)$$

上記のように  $s_{44}$  は、他の軸方向の弾性コンプライアンスの加減算となる（同様に  $c_{44}$  も他の軸方向の弾性率の加減算で表すこともできる）。弾性率  $c_{44}$  の温度変化は、他の軸方向の弾性率の温度変化に比例すると考えられる。各軸方向の弾性率の温度変化はポリマーの分子構造上ほぼ等しいと考えられるので、ここでは  $c_{44}$  の温度変化を、 $c_{3'3'}$  の温度変化と等しいと仮定して検討を行う。 $J_{2c}$  の分母に  $c_p (c_{3'3'})$  が含まれるが、この項はベースプレートの変形に関する項であり、ここでの検討とは本質的に異なるものであるため考慮しない。

先に述べたように圧電性 PLLA フィルムでのガラス転移点は明確では無くなっているが、非結晶領域は元々のガラス転移点近くで動き始めると考えられ弾性率の低下が大きくなると考えられる。圧電定数が温度に対して安定していても弾性率の変化が大きければ測定値は温度変化により影響を受ける。

一般民生機器向けの使用温度範囲はその使用想定環境によって異なるが、およそ  $-30 \sim 60^\circ\text{C}$  或いは  $-10 \sim 60^\circ\text{C}$  等の範囲である。一般的に低温側での弾性率

はほとんど変わらないが、高温側では 60°C 付近で大きく変化する可能性がある。図 3-16 は、圧電性 PLLA (PLLA<sub>45</sub>) フィルムの温度特性試験を行った結果である。弾性率  $c_p$  と圧電定数  $d_{14}$  の温度特性を測定し、それぞれ 20°C の値で規格化した。縦軸は 20°C の時のそれぞれの値の倍率となっている。規格化弾性率を  $c_N$ 、規格化圧電定数を  $d_N$  としたとき、 $d_N \times c_N$  の値を同時にプロットした。

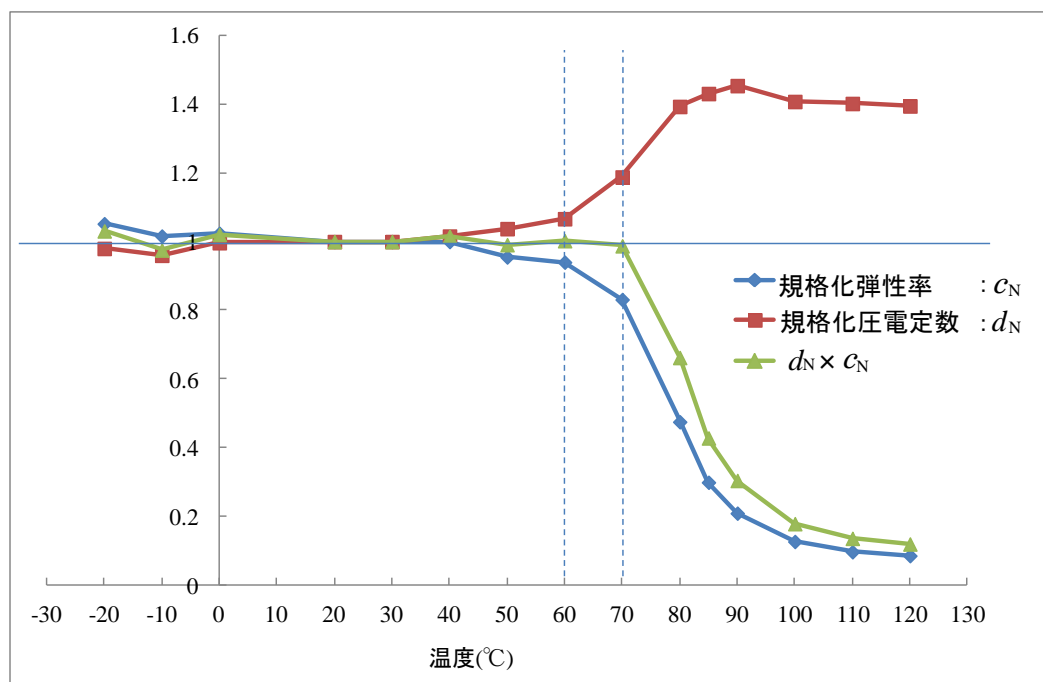


図 3-16. 圧電性 PLLA の弾性率と圧電定数の温度特性

まず弾性率に着目すれば、40°C を過ぎたあたりからやや減少が始まり、60°C を超えると一気に減少率が大きくなる。20°C の時の値と比較した時の 60°C での弾性率の低下率は約 6%、同様に 70°C での低下率は約 17% であった。温度による機械物性の変化という点では、一般民生機器の使用温度範囲の高温側でも十分な強度を保っていると言える。

次に圧電定数について見ると、弾性率とは逆に 40°C を超えたあたりから緩やかに上昇が始まる。これは温度が加わることにより結晶化していないタイ分子

鎖が動き易くなった事に起因するところが大きいと考えられる。これは、そもそも弾性率の低下と同じ原因である。ある一定以上の温度ではタイ分子鎖が柔らかくなりすぎて、ミクロな結晶部分の圧電性をマクロ的な領域に伝達できなくなるため、圧電定数は弾性率の低下率の逆数に追従できなくなる。このため、弾性率の低下と全く逆の関係にはなっていないものと考えられる。

最後に、 $d_N \times c_N$ に着目する。 $d_N \times c_N$ は約 70°C付近まで一定となるため、この項の最初に述べた、 $d_{14} \times c_{44}$ の値も約 70°C付近まで一定となると推定される。変位センサとしての圧電性 PLLA フィルムの単体の温度特性は高温域まで非常に安定していることがわかる。ただしこれを何らかの物体に貼り付けて用いる場合は機械的緩和係数  $\delta_a$  の影響を大きく受けるため、実際には  $\delta_a$  の温度特性に依存するところが大きいと考えられる。

### 3.4 本章のまとめ

工業的センサ利用に対する PLLA の利点と考えられる点を列挙し、それぞれの特徴に関して詳しい検証と考察を加えた。元々 PLLA が非焦電性であるという点に関しては結晶学的に明らかになっている点であるが、局部的にかかる温度により、線膨張の影響で応力が発生し、見かけ上の焦電効果の発生の有無を調べたが実用上問題になるような電荷の発生は確認されなかった。

PLLA のずり圧電の特徴的な利用に関して、PVDF と比較してその圧電性が変位センサとしてより優れていることを解説した。その上で、分子の配向方向に対するカット角を変えた変位センサの実験結果を示し、曲げとねじりを独立して検知できるセンサとなり得ることを明らかにした。また、原理式に基づいて変位センサとしての電圧計算式を導出した。この式による計算結果と実験による実測結果とを比較して、圧電性 PLLA フィルムを変位センサとして用いる場合には、センサと被検出物の接着層による歪みの機械的な緩和が測定値に大きな影響を与えることを定量的に示した。

圧電性 PLLA フィルムの透明度に関しては、分光透過特性を示すだけではなく、それらの測定結果を用いて、光の3刺激値から色度を実際に算出した。またさらに、特にタッチパネル用途において工業的なデータとして利用される CIELAB の値を導出し、現在一般的に流通している光学用 PET フィルムと比較して圧電性 PLLA フィルムの光学特性が圧倒的に優れていることを明らかにした。同時に厚みの異なる圧電性 PLLA フィルムの分光透過特性を用いて消衰係数の周波数依存性を求めた。この消衰係数より、厚さ 50 $\mu\text{m}$  の圧電性 PLLA フィルムの光線透過率は 99.6%であり、光学的利用において極めて優秀な材料であることを明らかにした。圧電性 PLLA フィルムは一軸延伸フィルムであるため複屈折を生じる。MD および TD 方向の屈折率の周波数依存性を示し、これを工業的に利用する際の注意点についても考察を加えた。

「MD」、「TD」、および「MD に対して 45° の方向」に切りだした3種のフィルムの引っ張り強度試験を実施し、厚さ 50 $\mu\text{m}$  の圧電性 PLLA フィルムは、変位センサとしてどの方向で用いたとしても、実使用上十分な強度があることを示した。

最後に変位センサとした場合の温度に対するセンサの感度として、圧電定数と弾性定数の積が重要であることを示し、この値の温度に対する安定性を実際の測定結果により検証した。その結果、一般民生機器の実使用温度範囲内においてこのセンサは非常に安定した出力が得られることを明らかにするとともに、実際にセンサとして使用する際には、このセンサを被測定物に貼り付ける際の接着剤等の特性が懸念事項になることを示した。



## 第4章 圧電性 PLLA センサを用いたアプリケーション

### 4.1 はじめに

第3章で述べたように、センサへの応用において圧電性 PLLA フィルムは多数の有望な特徴を備えたアイテムであると言える。セラミックスが活躍するような高温、高湿の過酷な条件には不向きであるが、人の手で直接操作する HMI デバイスとしては、セラミックセンサでは実現することのできない数々の機能を発現させることができる。有機フィルムである圧電性 PLLA センサは大きな変位に対して素子が割れることがない。これは HMI に応用した際にセラミックセンサに対して非常に優位な点として挙げられるものである。

これまでの種々の圧電センサと比較して圧電性 PLLA センサが特に優れている点は、極めて透明度が高く、また非焦電型センサとして熱には反応せず純粋に変位のみを検知できるという点である。タッチパネルを含めた HMI への応用においてこれらの特徴は極めて重要である。さらに曲げやねじりを独立して検知できる機能を用いれば、新感覚のコントローラを実現できる。本章では、第3章で詳細に検討した特徴を用いて様々な HMI アプリケーションデバイスの検討を行った結果について述べる。

### 4.2 電極形成に対する基礎検討

#### 4.2.1 各種電極材料の PLLA への密着強度

圧電体は圧電効果により生じる電荷を取り出すために分極が生じる方向の主面に電極を形成する必要がある。PLLA をフィルムとして形成した場合は、その両主面に電極を形成することとなるが、どのような電極の形成方法が好ましいのか検討を要する。これまでの検討において圧電性 PLLA フィルムの表面に直接様々な電極材料の形成を試みたが、工業的な使用を想定した場合には耐久

性という面で問題があった。

PLLA はポリエステルに分類されるが、ポリエステルの表面活性状態は低く、この表面状態の改質が過去から試みられてきた。プラズマ処理はごく表面のみの改質でありバルク特性には影響がなく、また耐熱性の低い高分子の改質に優れているため、これまで検討がなされてきた[126]。しかしながら PLA の表面はプラズマにより改質されないことが既に報告されている[127]。表 4-1 は文献[127]に報告されているプラズマ処理後の水の接触角の変化である。

表 4-1. プラズマ処理による水の接触角の変化

	PLA	PET
未処理	74°	78°
Arプラズマ	74°	60°
O <sub>2</sub> プラズマ	74°	36°

表 4-1 から分かるように、PET においてはプラズマ処理により水の濡れ性が大きく改善されているのに対して PLA では全く変化がないことが分かる。つまり PLA ではプラズマ処理を行っても表面に親水性官能基が全く形成されないことを意味している。プラズマ処理ではポリマー表面に官能基が導入されて化学組成が変わり、それに伴って表面特性が変わる“インプラネーション”と、表面が分解して削り取られる“エッチング”の二つのプロセスが同時に起こっていると考えられる[127]。これらの現象はポリマーの組成の影響を大きく受けると考えられ、PLA ではインプラネーションとエッチングの両プロセスがほぼ同じレベルで進むため、表面状態が全く変化しないと推察できる。

圧電性 PLLA フィルムを利用したセンサアプリケーションでは透明な用途も多数考えられる。透明電極を含めて複数の電極材料について、実際に電極を形成し、形成後に密着強度が得られたものに関してはヒートショックを行ってその電極の密着強度を調査した。表 4-2 はそのテスト結果を示したものである。

密着強度試験に関しては JIS D 0202 に準拠し、100 マスのピール試験を行ったものである[128]。ピール試験用のテープはニチバンの CT24 を用いた。

尚、電極材料としては以下の製品を用いている。

銀ペースト : トーヨーケム RAFS039

銀ナノワイヤ : 日立化成 B9D4

PeDOT : ナガセケムテックス デナトロン®

表 4-2. 各電極の密着強度試験

電極種類	透明／非透明	形成方法	前処理	密着強度	
				直後	HS試験後
ZnO	透明	スパッタ	なし	×	
ZnO	透明	スパッタ	プラズマアッシング	×	
ITO	透明	スパッタ	なし	○	×
Al	非透明	蒸着	なし	○	×
Agペースト	非透明	塗布	なし	○	×
Agナノワイヤ	透明	接着	なし	×	
Agナノワイヤ	透明	接着	UV処理	×	
PeDOT	透明	塗布	なし	○	○
PeDOT	透明	塗布	コロナ	○	○

ピール試験において1個所でも剥れを生じたものに関しては NG と判定した。PeDOT に関しては、コロナ処理を行わないものでは、はじきによる塗りむらが生じている。この結果によれば圧電性 PLLA フィルムに対してコロナ処理を行った後の PeDOT 電極が最も状態が良い。しかしながら PeDOT は水系の透明電極材料であり、粘性が低いためパターンニングが難しく、タッチパネル等の複雑な電極形成に関しては今のところ実績がない。エッチングのように電極を抜いてしまう方法は非常に行いにくい。ここ最近、化学処理による不活化処理でのパターンニングが検討され始めている。しかしながらこの方法に関しても市場実績がなく、新規製品の工業化において、セットメーカーの採用のハードルが高くなる可能性がある。

### 4.2.2 電極に関する基本構成

圧電性 PLLA フィルムに電極が直接形成し難い点、および市場で実績のある技術を出来るだけ利用するという点を念頭において考慮すれば、圧電性 PLLA フィルムに対しては既にこなれた技術である電極付き PET フィルムや FPC (Flexible Print Circuit) (主として電極付きポリイミドフィルム) を両面テープ、OCA、接着剤等を用いて貼り合わせる手法とした方がよいと考えられる。基本的な構成は図 4-1 のようになる。

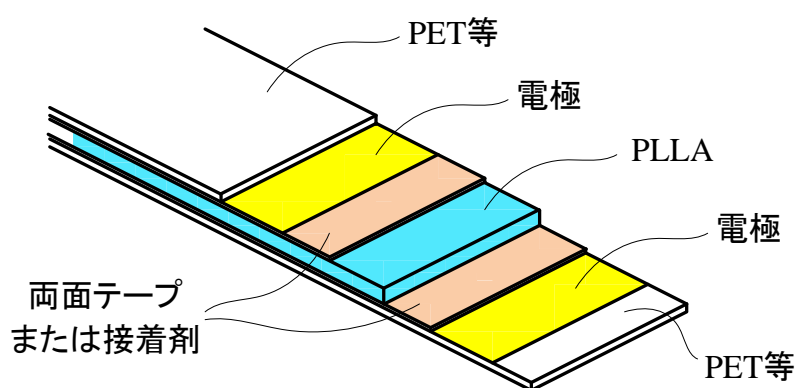


図 4-1. PLLA フィルムと電極の層構造

図 4-1 において、電極は PET フィルムに予め成膜されている。ITO 付き PET フィルム (日東電工)、Al 蒸着電極付き PET フィルム (尾池工業) 等、様々な電極付き PET フィルムは既に販売されており市場実績も多い。PET 以外の素材も選定可能で、ポリイミド製 FPC は非常に多くの工業製品で用いられている。

図 4-1 のような構造としたとき、電極は圧電性 PLLA フィルムの表面に直接付いておらず、両面テープや接着剤を介して圧電性 PLLA フィルムに取り付けられていることとなる。即ち、回路的に見れば圧電体の両面にさらにコンデンサが直列に接続された構造となる。一方、市販の両面テープでは最近導電率の高いものも発売されており、このような両面テープを用いた場合では直接圧電

性 PLLA フィルムに電極が形成されていることと同等になるが、金属や透明導電膜と比較して導電率が低い。また耐環境性能等に対して不明確な部分が多いため、電極を接着する両面テープは絶縁体とした。両面テープ（接着剤）が絶縁体であれば、この絶縁体の部分は付加コンデンサとなり、この回路を回路図で表すと図 4-2 のようになる。尚、絶縁体の厚み、および誘電率は圧電性 PLLA フィルムの上下面で等しいと仮定した。

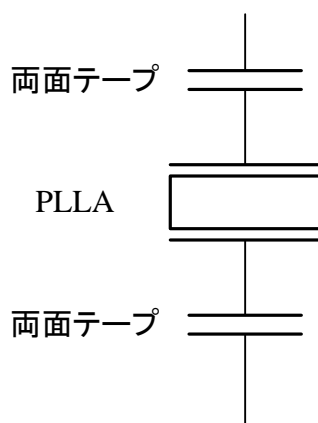


図 4-2. センサ基本構造の回路

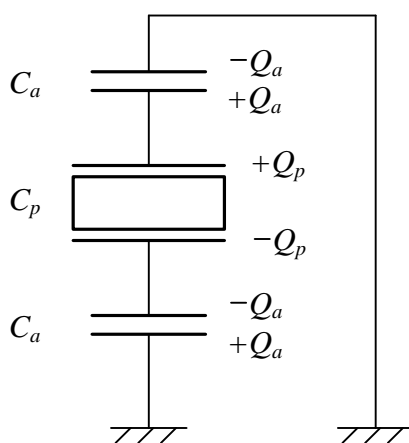


図 4-3. センサに電荷が発生した時の電荷の分配の様子

容量  $C_p$  の圧電体 (PLLA) に応力が加わり電荷  $Q$  が発生した時、この回路において電荷  $Q$  は逃げ場がない。検知回路に接続されている状態では両端の電圧は  $0V$  となっているので、 $Q$  は分割されて圧電体と、付加コンデンサの電極板とに移動する (図 4-3)。PLLA 側に残る電荷を  $Q_p$ 、付加コンデンサの電極板に分配される電荷を  $Q_a$  とすればこの系において以下の式(4-1), (4-2), (4-3)が成り立つ。

$$Q = Q_a + Q_p \quad (4-1)$$

$$-Q = -Q_a - Q_p \quad (4-2)$$

$$-\frac{Q_a}{C_a} + \frac{Q_p}{C_p} - \frac{Q_a}{C_a} = 0 \quad (4-3)$$

これらの式から、電極に現れる電荷  $Q_a$  は式(4-4)のように表せる。

$$Q_a = \frac{Q}{2\frac{C_p}{C_a} + 1} \quad (4-4)$$

$C_a$  が  $C_p$  と比較して十分大きい時は  $Q_a = Q$  となる。ここで用いている圧電性 PLLA フィルムの厚みは  $50\mu\text{m}$  であり、両面テープは一般的に  $20\mu\text{m}$  程度である。また、両面テープの誘電率は一般的に  $2.5 \sim 3$  程度でほぼ PLLA のものと等しい。これより、 $C_a$  と  $C_p$  の比はおおよそ、 $2.5 : 1$  となる。従って式(4-4)から  $Q_a \doteq 0.56Q$  となる。厚さ  $1\mu\text{m}$  程度の接着剤であれば、 $C_a$  と  $C_p$  の比はおおよそ、 $50 : 1$  となり、同様に式(4-4)から  $Q_a \doteq Q$  となる。両面テープの場合はおおよそ半分近くにまで検出電荷は低減されるが、この程度の減少は検知回路で十分カバーできると判断した。

## 4.3 微小変位量検知センサ

### 4.3.1 応用デバイス

スマートフォンやタブレット型 PC、または携帯用音楽プレーヤーやゲーム機において、筐体の表面（タッチパネル）の押圧、側面の押圧、裏面の押圧のセンシング、或いは筐体を握った時（スクイーズ）のセンシングが求められる機会が増えている。例えばスマートフォンやタブレット型 PC において、電源の ON-OFF や音量コントロール機能に関しては専用のボタンが配置されている場合が多い。デザイン性の問題もあるが、別体のボタンを設けることにより筐体の強度設計が難しくなったり、表面のガラスに穴をあけることによるコストアップが問題になっている。またタッチパネルでは、意図せずに触れただけでそれに対するアクションが発生し、誤作動が生じてしまうといった煩わしさがある。タッチパネルそのものの押圧検知に関しては後述するが、ボタンレスにすればこれらの問題点の多くが解決できる。ここではこれらのニーズに幅広く対応できる微小変位量検知センサ（不透明な用途）について検討する。

前述した類の携帯機器に力が加わると、筐体や表面のガラスにはかならず微小な変位が生じる。この変位をセンサで捉える事が出来ればボタンを配置せずとも筐体の特定位置に力を加えるだけで特定のアクションを作動させることが可能となる。スマートフォンを例にとれば、センサの配置位置としては図 4-4 に示すようなバリエーションがある。以下、図に応じて個別に説明をする。

①はカバーガラスの内側に取り付け、直接ガラスに加わる押圧を検知する。ガラスのどの位置を押してもガラスにはかならずたわみが生じるため、表示面と干渉しない位置にセンサを取り付けることにより、ガラス面に加わる押圧を検知することができる。当然、センサからの距離によってその検知感度は変わるが、感度の補正はタッチパネルから得られる座標位置を参照して行うことができる。

②はスマートフォンの内部にセンサを配置する場合である。具体的にはディスプレイの裏面（液晶の場合はバックライト裏面）等にセンサを配置する。

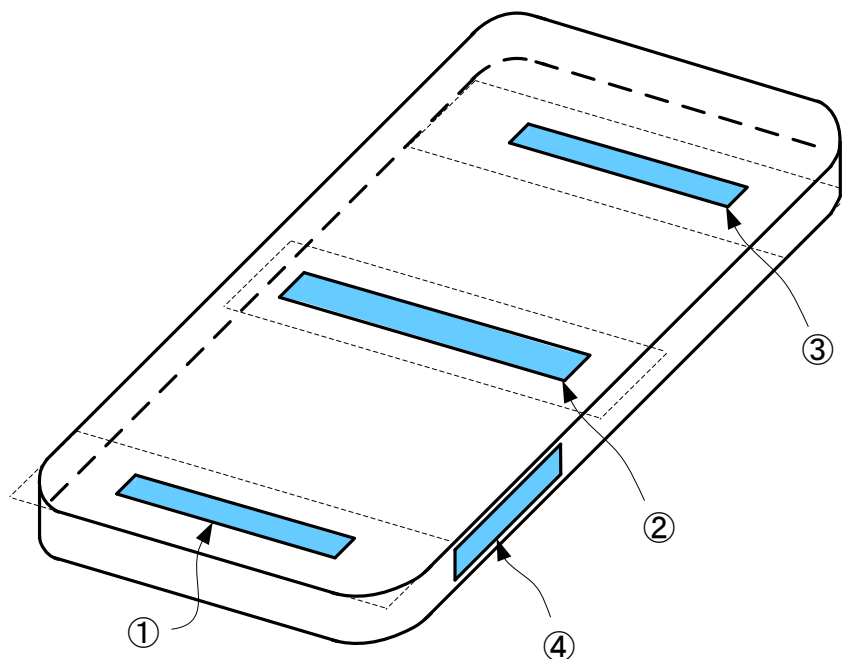


図 4-4. スマートフォンへの変位センサの配置例

カバーガラスに加わる押圧は、タッチパネル、ディスプレイ、バックライト等のリジッドなデバイスを介することになるが、このような構造でもガラス面に加わる押圧を検知することが可能である。

③はプラスチックや金属で形成された筐体の裏面内側にセンサを配置する例である。裏面に対する押圧を検知することが可能であるが、スマートフォン自体を握った場合に筐体がたわむためスクイーズ検知することが可能となる。筐体はカバーガラス類と比較して変形し易いため、検知は①、②に比べると容易である。センサの設置位置に関しては自由度が高い。

④は筐体の側面内側に取り付ける場合である。③と同じようにスクイーズ検知が可能となる。

図 4-5 はタブレット型 PC へ変位センサを配置する場合の例を示している。タブレット型 PC のバックキャビティの内側にセンサを配置している。外部からキャビティに何らかの変形が加わることにより何れかのセンサが反応する。



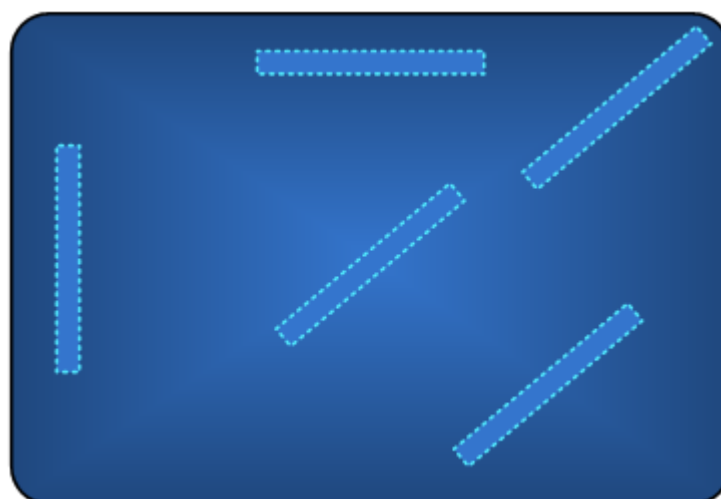


図 4-5. タブレット型 PC バックキャビティへの変位センサの配置例

センサをキャビティに貼る位置、貼る角度等は様々なバリエーションがある。どのようなアクションを捉えたいかによって任意に設定可能である。

#### 4.3.2 センサの構造

センサの構成要素は基本的にセンシング部と検知回路部である。検知回路部はセンシング部と一体で形成される場合と、デバイスのメイン回路基板上に構成される場合がある。検知回路部がセンシング部と一体で形成された場合でも、結果的に検知回路部から出された信号はメイン回路基板で処理されて何らかのアクションに結び付けられる。従って図 4-6 に示すようにセンサに検知回路部を含む場合も、含まない場合も、必ずメイン回路基板との接続部がある。接続の方法としては一般的には FPC 用コネクタが用いられる場合が圧倒的に多い。

FPC は PET 等に比べて価格が高いが、回路部品が直接実装できる、コネクタでの接続部の信頼性が高い等のメリットが大きい。図 4-1 に示したように電極は基本的に 2 層になり、静電気による影響を低減させるグランド層を含めると 3 層になる場合がある。これらの層構造となった電極をコネクタ部で同一平面上にまとめるのは難しい。一般的にタッチパネルによく用いられているよう

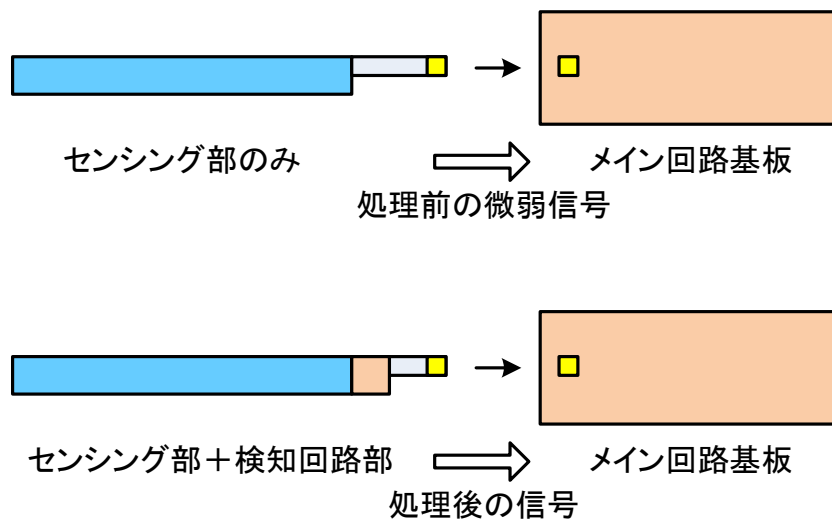


図 4-6. センサとメイン回路基板の接続

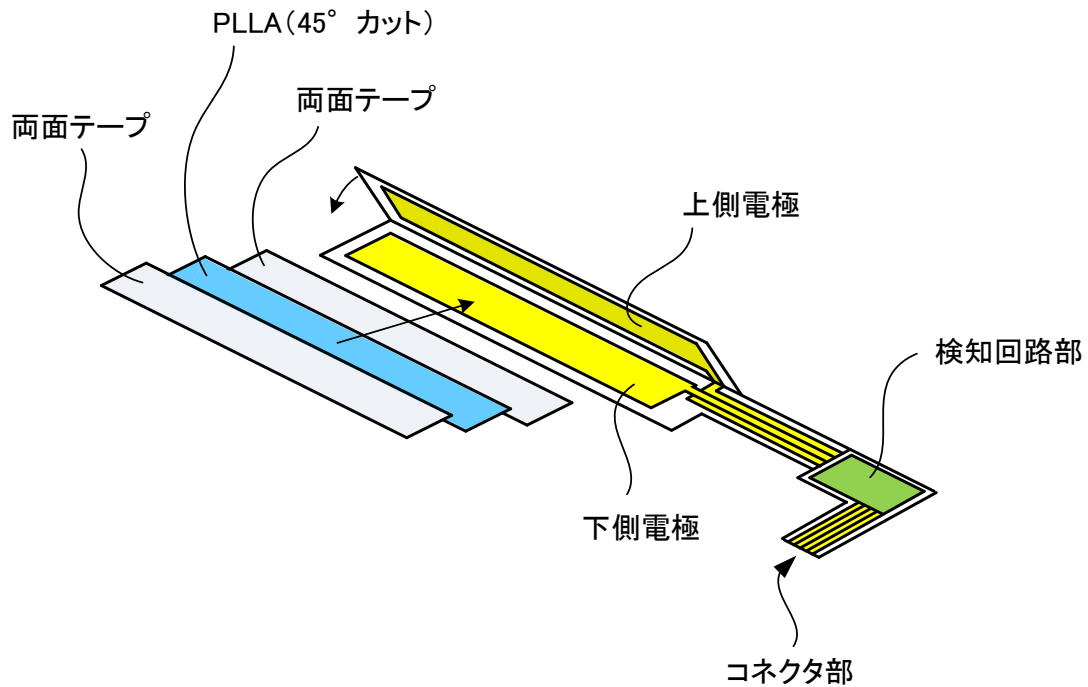
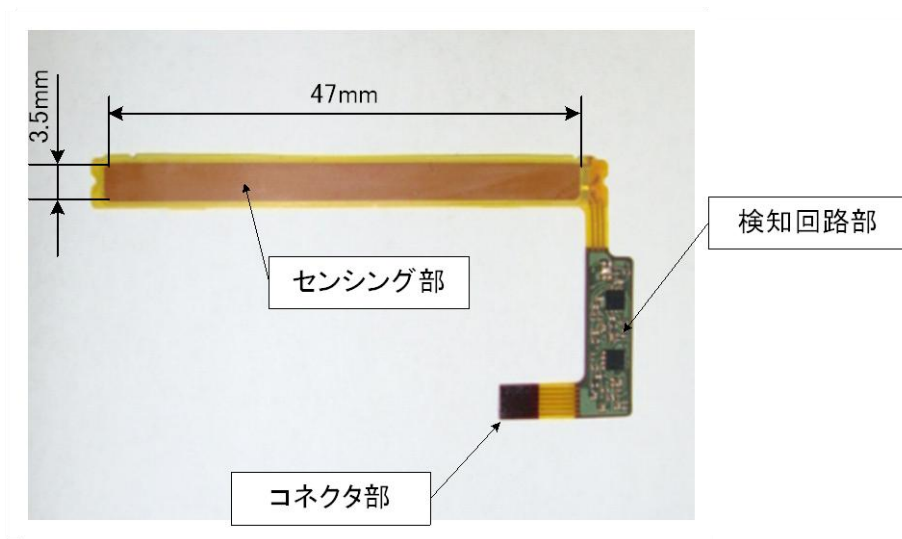


図 4-7. 回路付き変位センサの構造

な異方性導電フィルム：Anisotropic Conductive Film, (ACF) を用いる方法もあるが、コスト的に非常に高くなってしまふ。圧電性 PLLA フィルム以外の部分を FPC で一体的に形成し、FPC に成膜された電極で圧電性 PLLA フィルムを挟み込むような構造にすれば電極の接続部を一切設けることなく、非常に単純な構造で回路一体型変位センサを実現できる。図 4-7 は回路付き変位センサの組み立て前の分解斜視図である。圧電性 PLLA フィルムは各電極に対して両面テープにて貼り合わせられる。両面テープの代わりに接着剤を用いてもよい。この貼り合わせ部の応力緩和が小さいほど検知感度が高くなるため、出来るだけ薄いもの、或いは出来るだけ弾性定数の高い物を選んだほうがよい。下側電極の裏側にはさらにもう一層の電極が形成されており、グランド電極として用いる。

図 4-8 は、実際に作製した変位センサの写真である。図 4-8.(a) は基本的な変位センサの外観である。図 4-7 の模式図に示した通り、変位センサはセンシング部と検知回路部からなる。また図 4-8.(b) はこの変位センサのセンシング部の組み立て前の展開写真である。金色に見える部分は FPC 上に形成された金めっきされた銅電極であり、この電極で圧電性 PLLA フィルムを挟み込む。検知感度を高めるために、電極と圧電性 PLLA フィルムの接着には出来るだけ薄い粘着剤（両面テープ）を使用した。被検出物に貼り付けられる側にある粘着剤は  $10\mu\text{m}$ 、他方は  $30\mu\text{m}$  である。ちなみに  $10\mu\text{m}$  の粘着剤を  $30\mu\text{m}$  とした場合、出力はさらに 50%程度ダウンする（実測）。これは、粘着剤の滑り（歪み緩和）の増加によるものである {3.3.3 項、式(3-29)参照}。

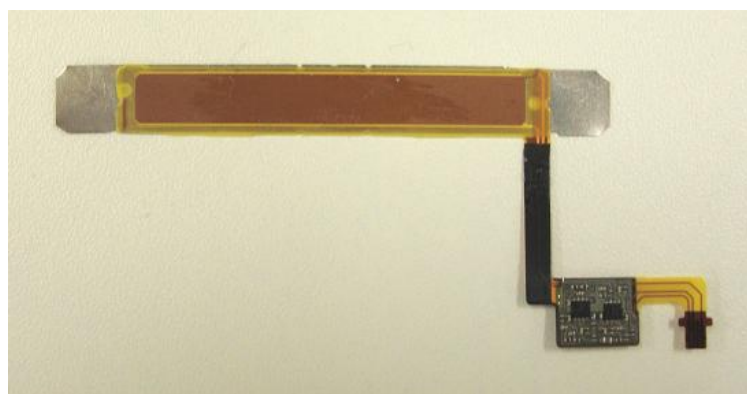
図 4-8.(c) は変位センサの別の例を示しており、センシング部に予めベース板 (SUS 板) が取り付けられている。このセンサは、ベース板自体を筐体などに取り付け、筐体やカバーガラスの変形から二次的に生じるベース板のたわみを捉えるようにしたものである。複雑なたわみ形状が確実に SUS 板の曲げに変換されるため感度良く検知できる。ここに示したセンサはわずか数  $\mu\text{m}$  ～数十  $\mu\text{m}$  程度の変位を確実に捉える事ができる。圧電性 PLLA フィルムからの信号をノイズと分離して確実に検出する検出回路については後述する。



(a)



(b)



(c)

図 4-8. 変位センサ (実物)

図 4-8.(c)の変位センサの層構造の各部名称とその厚みを表 4-3 に示す。このセンサはベースプレート (SUS 板) の変位を検出するものである。ベースプレートを含まない場合のセンサの厚みはほぼ 250 $\mu\text{m}$  である。電極部材は 3 層とされており、最上層の電極は基準電位 ( $V_{\text{std}}$ )、最下層の電極はグランドとされる。基準電位=グランドとしても差し支えない。これらの電極の中間にある電極が検知電極となる。圧電性 PLLA フィルムは検知電極と基準電位電極とに挟まれている。このような構造とすることにより外部から到来するノイズを受けにくいものとなっている。

図 4-9 はこのセンサを実使用状態とした場合を想定し、表 4-3 に示した各要素の厚み分布に基づいて各層を設定し、20 $\mu\text{m}$  の変位を強制的に加えた時に各

表 4-3. 実際のセンサの層構造と各部の厚み

層名	厚み( $\mu\text{m}$ )	備考
基板 PI	20	
電解銅箔	12	基準電位電極
銅めっき	8	
Au/Niめっき	6	
粘着剤	30	
PLLA	50	
粘着剤	10	
Au/Niめっき	6	検知電極
銅めっき	8	
電解銅箔	12	
基板 PI	20	
電解銅箔	12	グランド電極
銅めっき	8	
Au/Niめっき	6	
導電性接着剤	40	
SUS板	104	
Total	352	

箇所が生じる歪みを FEM シミュレーターを用いて計算した結果である。変位の中立面は全体の厚みの中間ではなく、SUS 板の表面からやや内側に入ったところになる。粘着剤の部分で大幅に歪みが緩和されていることが分かる。この計算において粘着剤の弾性率はメーカー提示の値を参考にして  $0.3\text{MPa}$  とした。3.3.3 項で述べたように粘着剤、即ち両面テープの部分で歪みは大幅に緩和されることが分かる。前述したように  $10\mu\text{m}$  の粘着剤を  $30\mu\text{m}$  とした時、実測では 50%程度出力が低下する。図 4-9 において、 $30\mu\text{m}$  の粘着剤の部分の応力緩和は  $10\mu\text{m}$  の粘着剤の部分の歪みの約 2.5 倍となっていることから、この計算の確からしさが分かる。

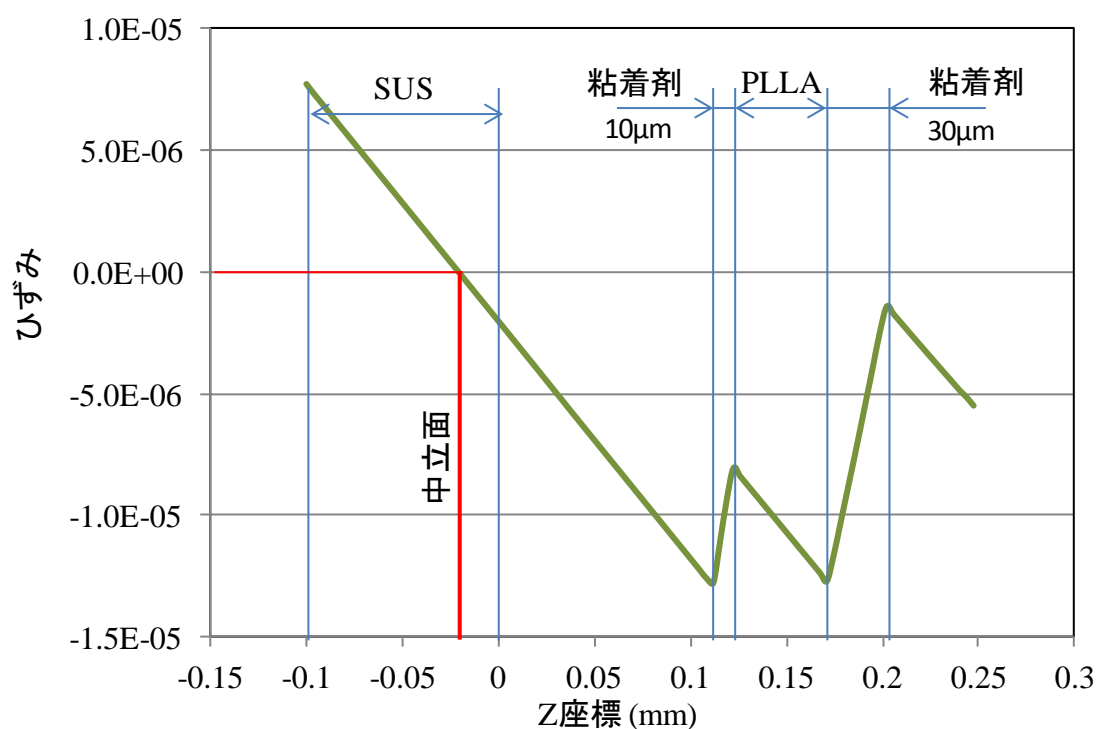


図 4-9. センサに変位を与えた時の各層のひずみの分布

### 4.3.3 検知回路および実際の出力信号

検知回路は3段のOPアンプを使用した電圧増幅回路である。PLLAは誘電率が低いためハイインピーダンス回路となりノイズが入り易い。圧電性 PLLA フィルムから発生する微弱な電荷をノイズに埋もれさせることなく検出するためには、センサの信号発生源において静電気等のノイズが入り込みにくい構造とすることが必要であると共に、検知回路においてもノイズ低減に十分に気を配る必要がある。図 4-10 は検知回路の回路図である。第1段目の増幅後、ツインT型のノッチフィルタ回路（バンドトラップフィルタ）により、一般の商用電源から入るノイズを集中的に低減している。第2段目の増幅後から第3段目の増幅回路に至るまでの間には直列にコンデンサ(カップリングコンデンサ)が挿入されている。これにより静電気等の影響により生じるDC的なノイズや信号のドリフトを完全にカットしている。各増幅回路部は基本的にローパスフィルタ(LPF)機能を有しており、ノイズ成分が大幅に低減された信号が第3段目で増幅され最終の検知信号として出力される。

図 4-11 は、図 4-8.(a)に示すセンサを実際に 0.7mm の厚みのガラスに貼り付けて3軸ロボットで荷重を加えた時の荷重と出力電圧の関係を示している。ガラス面に対し予め 2.5N の荷重を加えた状態を初期状態とし、ここからさらに約 0.8N の荷重を加えた後に初期状態へと復帰させた。圧電体はそれ自体に変形が生じている時にしか電荷を発生しない。即ち形状が維持された状態では電荷の出入りがない。ガラス面に荷重が加わるとガラスが変形し、それに応じてセンサに伸長力が加わり圧電体から電荷が発生する。発生した電荷はチャージアンプに付加された抵抗を通過して瞬時にグラウンドに逃げてしまうため、加えられた荷重の変化が無くなった時点でアンプからの信号の出力は無くなる。逆に加えられた荷重が解放された時にはガラスの変形が初期状態に戻るのに応じて圧電体から逆符号の電荷が発生する。この電荷もまた上記と同様の経路で逃げてしまうためアンプからの信号の出力は無くなる。即ち出力信号は荷重の時間経過の微分波形のようになる。アンプからの出力信号ピークの後、定常状態に戻る前に発生しているオーバーシュートは、最終段のアンプの過渡応答であり、

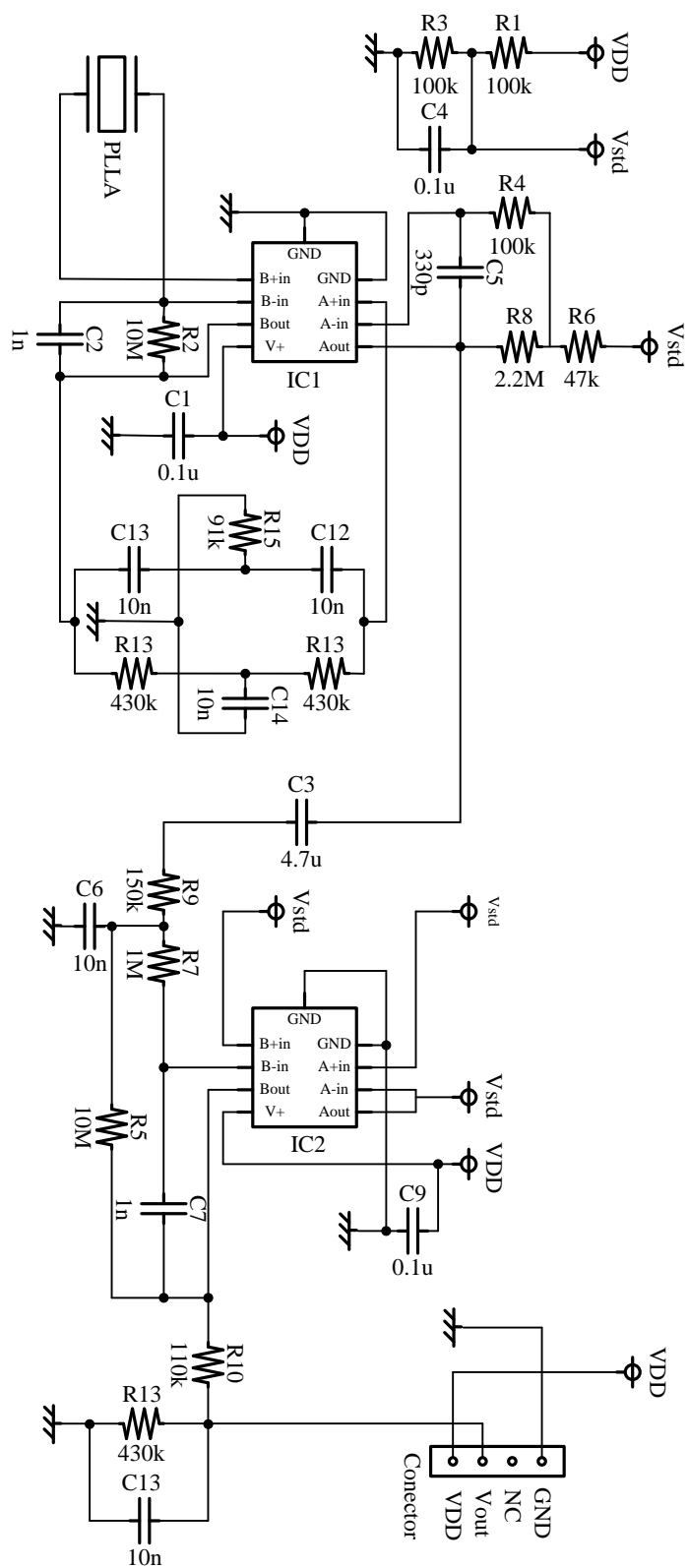


图 4-10. 検知回路図



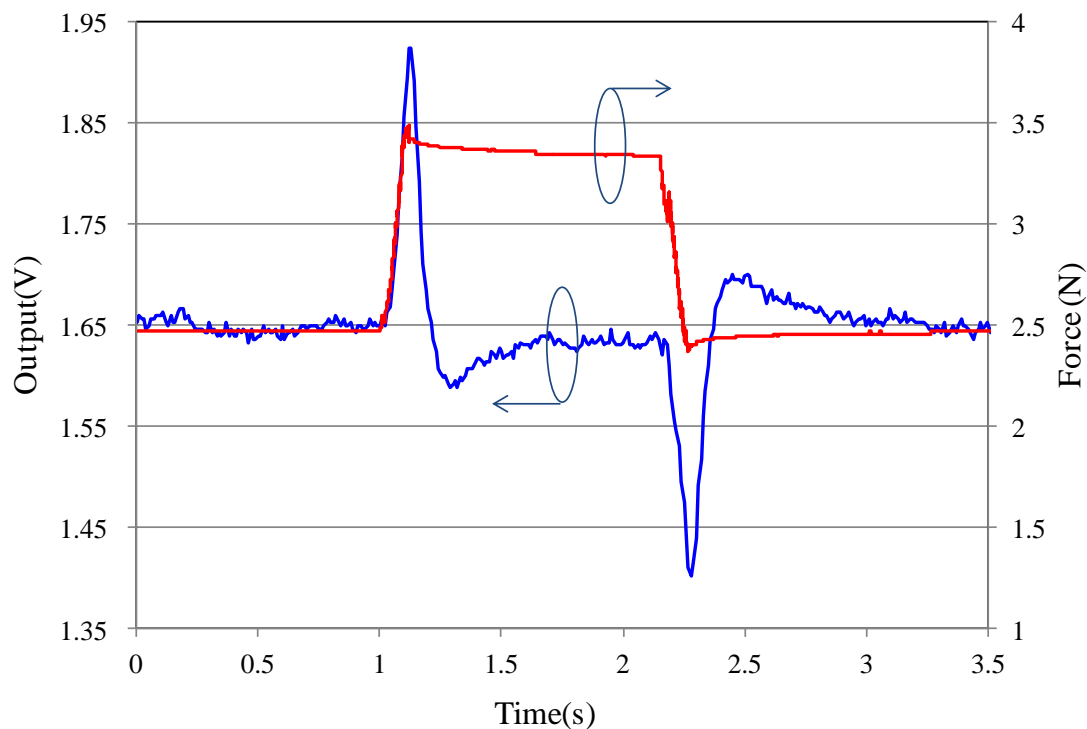


図 4-11. 応力と出力の関係

この過渡応答の大きさは LPF の特性に依存する。

次に、図 4-8. (c)に示すセンサの測定結果について示す。表 4-4 は作製したセンサ 600 個に関して測定を行った結果である。センサに 1Hz, 10Hz の周波数で  $5.5\mu\text{m}$  の変位を与えその振幅を出力値として記録した。変位は予め中央部を  $0.3\text{mm}$  押し込み、その状態から  $\pm 2.75\mu\text{m}$  の変位を周期的に与えている。約  $5\mu\text{m}$  という非常に小さな変位でも安定して電圧が得られていることが分かる。図 4-12 はセンサ測定の模式図であり、センサを横方向から見た図である。変位を与えるためにセラミック製のピエゾアクチュエーターを用いた。図 4-13 は実際の測定機の写真である。

表 4-4. センサの測定結果 (600 個)

条件	1Hz	10Hz
最小値(Vpp)	0.222	0.387
最大値(Vpp)	0.510	0.904
平均値(Vpp)	0.406	0.693
標準偏差(Vpp)	0.047	0.082

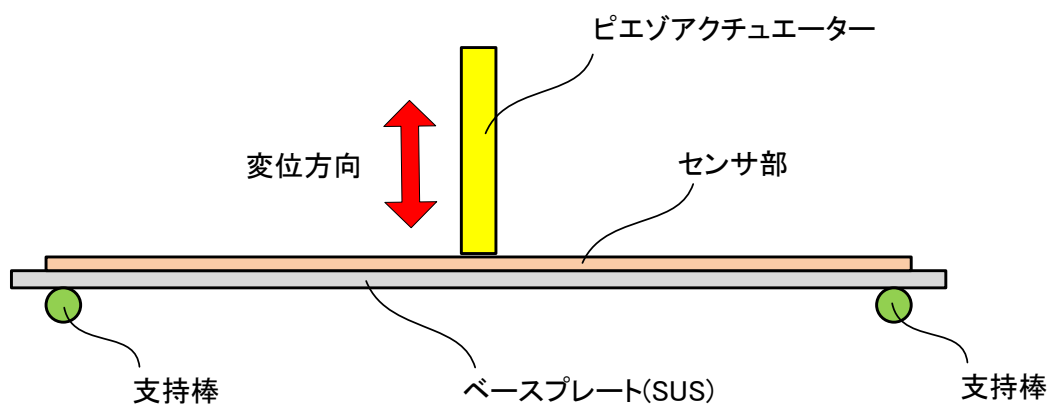


図 4-12. センサ測定の様式図

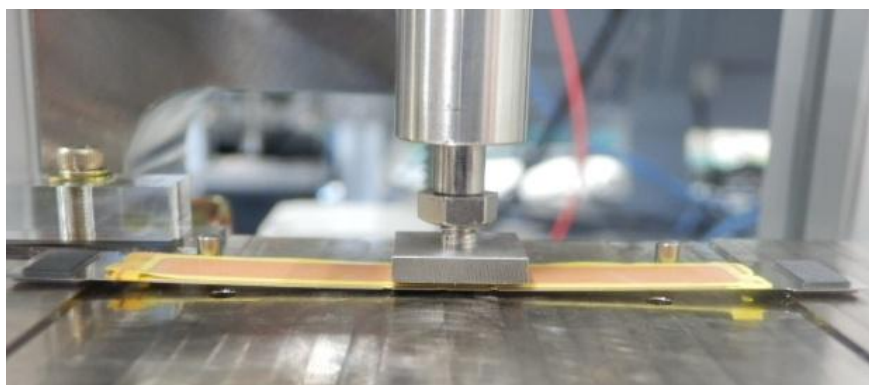


図 4-13. センサ測定の写真

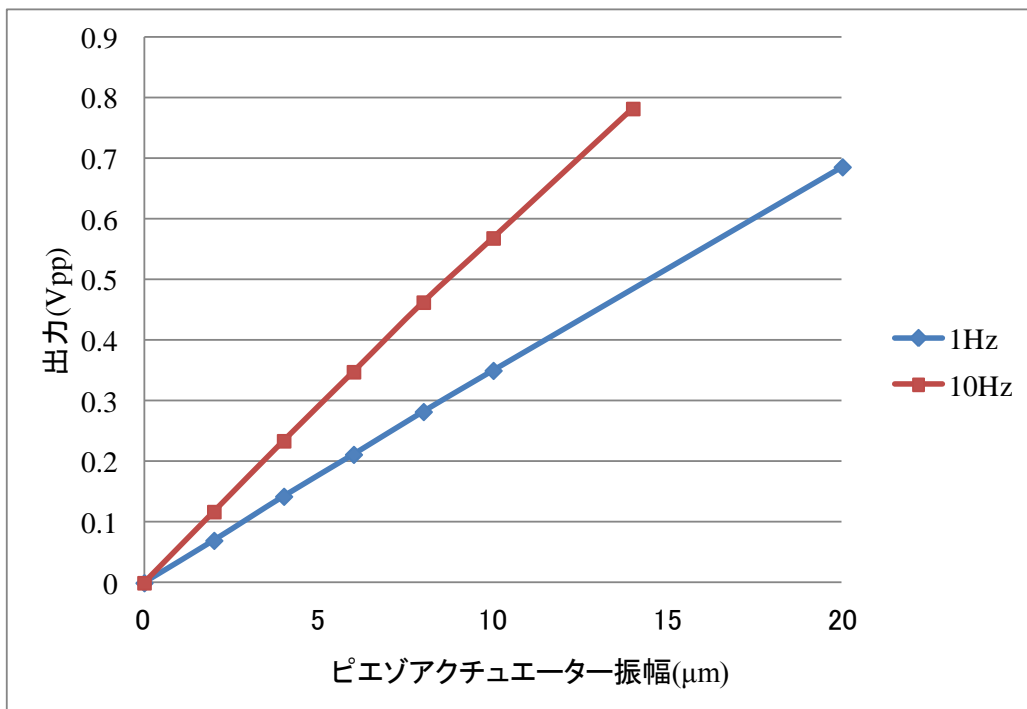


図 4-14. 振幅と出力の関係

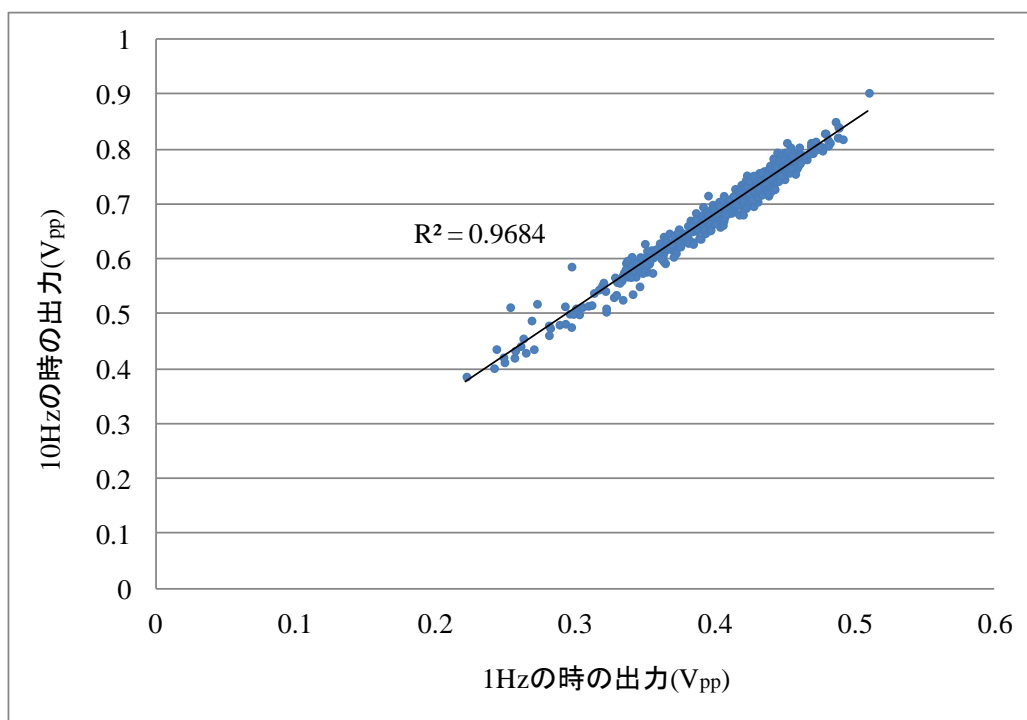


図 4-15. 1Hz の時の出力と 10Hz の時の出力の相関

図 4-14 は piezoアクチュエーターの振幅を変動させて、それに応じて出力する電圧のピークの値をプロットしたものである。振幅に対する出力の応答は非常にリニアリティが高いことが分かる。

図 4-15 は piezoアクチュエーターの周波数が 1Hz の時の出力と 10Hz の時の出力の相関を示したものである。この図から、周波数の違いによる出力電圧は個別のセンサ毎に非常に相関が高いことが分かる。センサの反応のばらつきとしてはやや大きい、周波数の変化に対してランダムにばらつくものではないことが分かる。

このセンサは機器に加わった力のレベルや、その周波数を検知するためのものではなく、歪み加わったのか否かを検知するものである。そのため、この程度のばらつきは実使用上十分許容される。HMI への利用を想定した時、人が加える応力に関しては、人毎にかなり大きなばらつきがあると考えられるため、実際の使用状態においては個別に設定されることが望ましい。

## 4.4 曲げ・ねじり検知直感操作型デバイス

### 4.4.1 応用デバイス

現在、曲げおよびねじりといった動作を併用して何らかの電子機器をコントロールするデバイス（HMI）は一般民生機器において見当たらない。スマートフォンやタブレット型 PC の HMI はタッチパネルが主流となったが、TV リモコンやゲームコントローラ或いは、介護機器、医療機器のコントロールはボタンやジョイスティックによるものが主流である。

TV に関して言えば、液晶ディスプレイやプラズマディスプレイの進化と共に、薄型化と高機能化は目覚ましいスピードで進んだ。これに伴い TV リモコンは非常にボタン数が増え、高齢者やハンディキャップを持つ方々にとって非常に扱いにくいものとなった。ブラウン管 TV から液晶を用いた薄型 TV へと、TV 本体は大きな進化を遂げたが、TV リモコンの操作性だけがまるで取り残されたように進化を遂げていない。TV リモコンへのタッチパネル応用も検討されているが、携帯電話よりも幅広いユーザー層を持つ TV において、特に高齢者や子供に対してもそれが果たして新たな利便性を生むものなのか疑問が残る。高齢者にとっての TV は重要な情報入手手段であり、娯楽でもある。高齢化が進む日本ではこのような傾向が強まると考えられる[129]。通常の TV の視聴においては、電源の ON-OFF、チャンネル選択、音量の調整、入力切り替えの4つの機能があれば十分とされる。これらの機能を全く新しい直感的動作で操作できれば TV リモコンも一気に進化を遂げることができる。ここでは全くボタンがなく、手探りだけで TV を操作できる直感操作型リモコンについて述べる。

### 4.4.2 デバイスの基本構造

圧電性 PLLA フィルムの曲げ・ねじり検知に関しては、既に 3.3.2 項で述べた。図 3-5 に示したテストプレート 2 の構造を踏襲し、これを発展させる形でリモコンを作製した[117]。図 4-16 は作製したリモコンの基本構造モデルの写真である。中央部には曲げ・ねじり変形が可能なプレート（センシング部）が

配されており、両端部には手で持つためのグリップ部がある。このモデルは実験機であるためコードがあるが、実際には電源マネジメント回路、検知回路、無線回路をグリップ部に内蔵した。図 4-17 は基本構造モデルの横断面の模式図を示しており。センシング部の透明プレートは、透明プレート 1, 2 により



図 4-16. 基本構造モデル

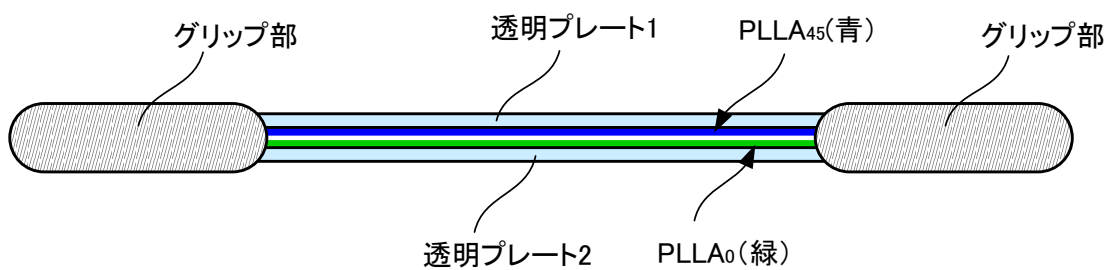


図 4-17. 基本構造モデルの断面模式図

2層構造となっており、それぞれのプレートの内側の面に電極を形成した圧電性 PLLA フィルムが OCA により貼り付けられている。透明プレート 1 に貼り付けられているのは PLLA<sub>45</sub> フィルムであり、透明プレート 2 に貼り付けられているのは PLLA<sub>0</sub> フィルムである。3.3.2 項で述べたように透明プレート 1 は曲げを検知し、透明プレート 2 はねじりを検知するためのものである。使用時に外部から加わる意図しない作用（液体をこぼす、鋭利なものによる衝撃、摩擦、いたずら）に耐えられるように、外装プレートでセンサを守る形とした。透明プレートは PC で作られており、機械的な耐性が高い。

#### 4.4.3 機能の割り付け

前述したように、TV のコントロールにおいては、①電源の ON-OFF、②チャンネルの切り替え、③ボリュームの調節、④入力の切り替え（TV 地上波、BS、CS、ビデオ、ゲーム）の 4 つの機能が最低限求められる機能である。一般の TV の視聴においては、ほとんどの視聴者がこの 4 つの機能しか用いない。高機能 TV の全機能を使うためのリモコンは別として、普段の操作はこのような単純な操作のリモコンでも差し支えがない。

曲げとねじりでは機能的には 2 つの機能への割り付けしかないが、動作を少し変えるだけで 4 つの機能を持たせる事が可能である。具体的な操作とそれに対する機能を表 4-5 に示す。

表 4-5. リモコンの操作

機能	操作
電源ON-OFF	軽く振る
チャンネル切り替え	ねじる
ボリューム調節	曲げる
入力切り替え	2回すばやくねじる

#### 4.4.4 光電池を用いた電力供給

センシング部は透明で、面積も大きいので、この部分に色素増感型光電池：Dye-sensitized Photoelectric Cell, (DPC) を内蔵させることとした（本来色素増感型光電池は DSC : Dye-sensitized Solar Cell と略されることが多いが、ここで作製した光電池は、光源として主に蛍光灯等の室内光を対象としているため DPC とした）。光電池はリモコンが明るいとこに置かれている際には常時発電し、生み出された電力は電気二重層コンデンサ：Electric Double Layer Capacitor, (EDLC) に蓄えられる構造とした。これにより普段の操作に対する電力が十分に賄えるように設計すれば、電池の交換といった煩わしさからも解放される。DPC は薄く柔軟にすることが可能で曲げ・ねじりといった動作を阻害しない[130~134]。

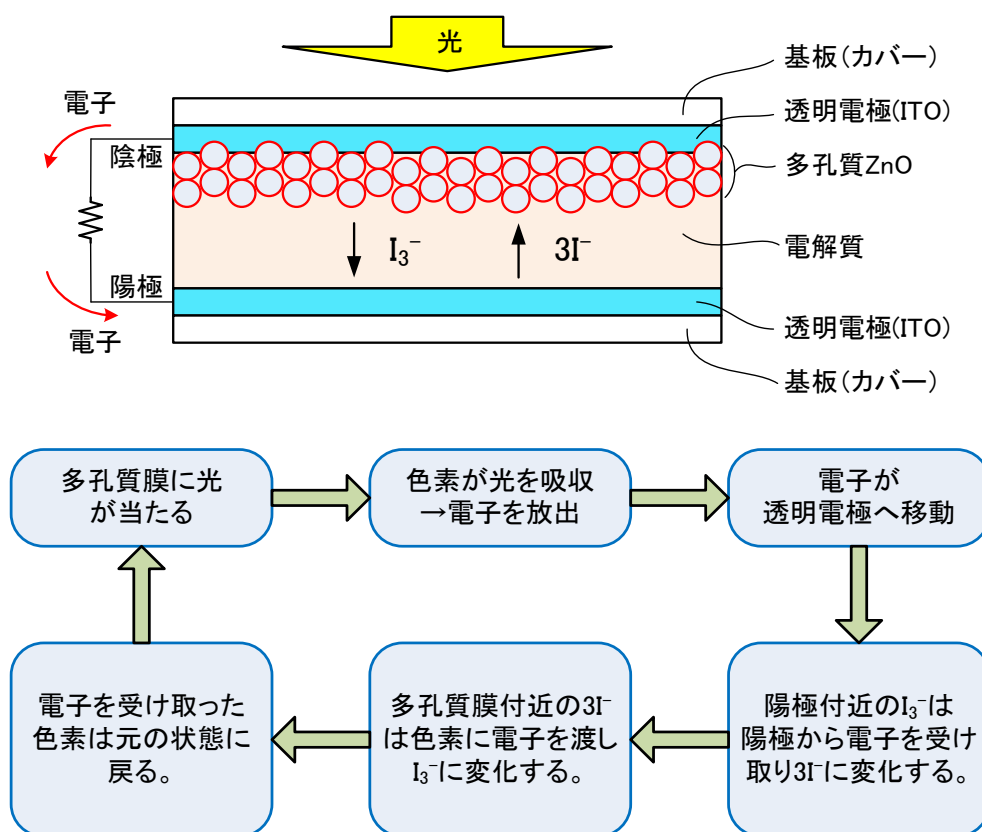


図 4-18. DPC の構造模式図と動作原理



今回 DPC はこのリモコン専用として新たに開発を行った。図 4-18 は今回作製した DPC の構造模式図と動作原理である。

DPC で生み出した電力を EDLC (Panasonic EECS5R5) に充電するためには 5V の電圧が必要である。DPC の発電時の電圧はせいぜい 0.4~0.5V 程度なので、これを DC-DC コンバーター (TI TPS61222DCK) により昇圧する必要がある。ただし、昇圧回路の入力電圧にも制限があり最低 0.9V となっている。安定的・効率的な動作を確保するためには 1.2V 程度が必要であることが実験により確かめられた。そのため DPC に要求する発電電圧の最小値は 1.2V とし、基本セルが 4 つ直列接続された形状とした。図 4-19 は実際に作製した 4 直列 DPC の外形寸法図である。図 4-20 は基本特性取得のために作製した DPC の基本セルの写真である。

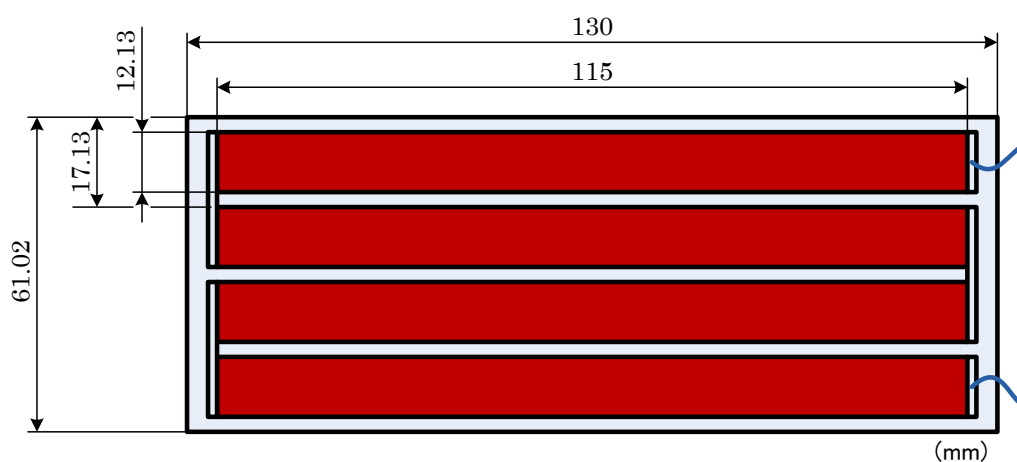
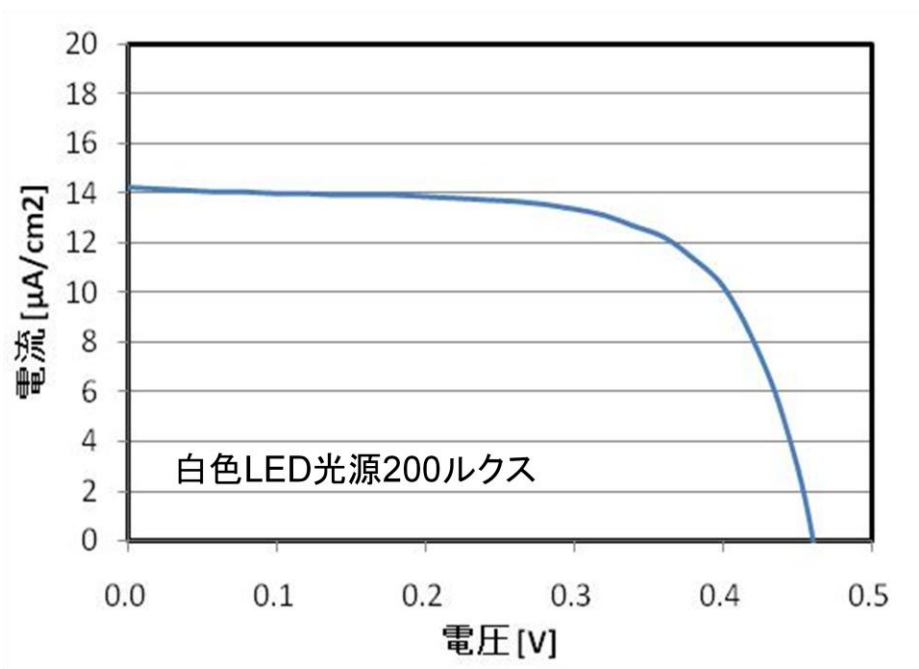


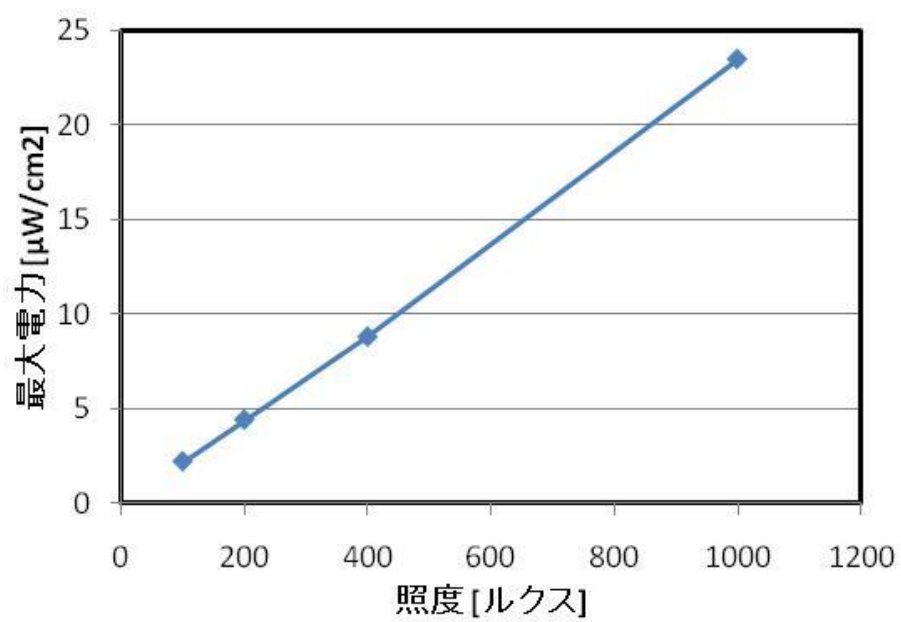
図 4-19. 作製した DPC の外形図



図 4-20. DPC 基本セル



(a)



(b)

図 4-21. 白色 LED 光源での(a)I-V 特性と(b)出力特性

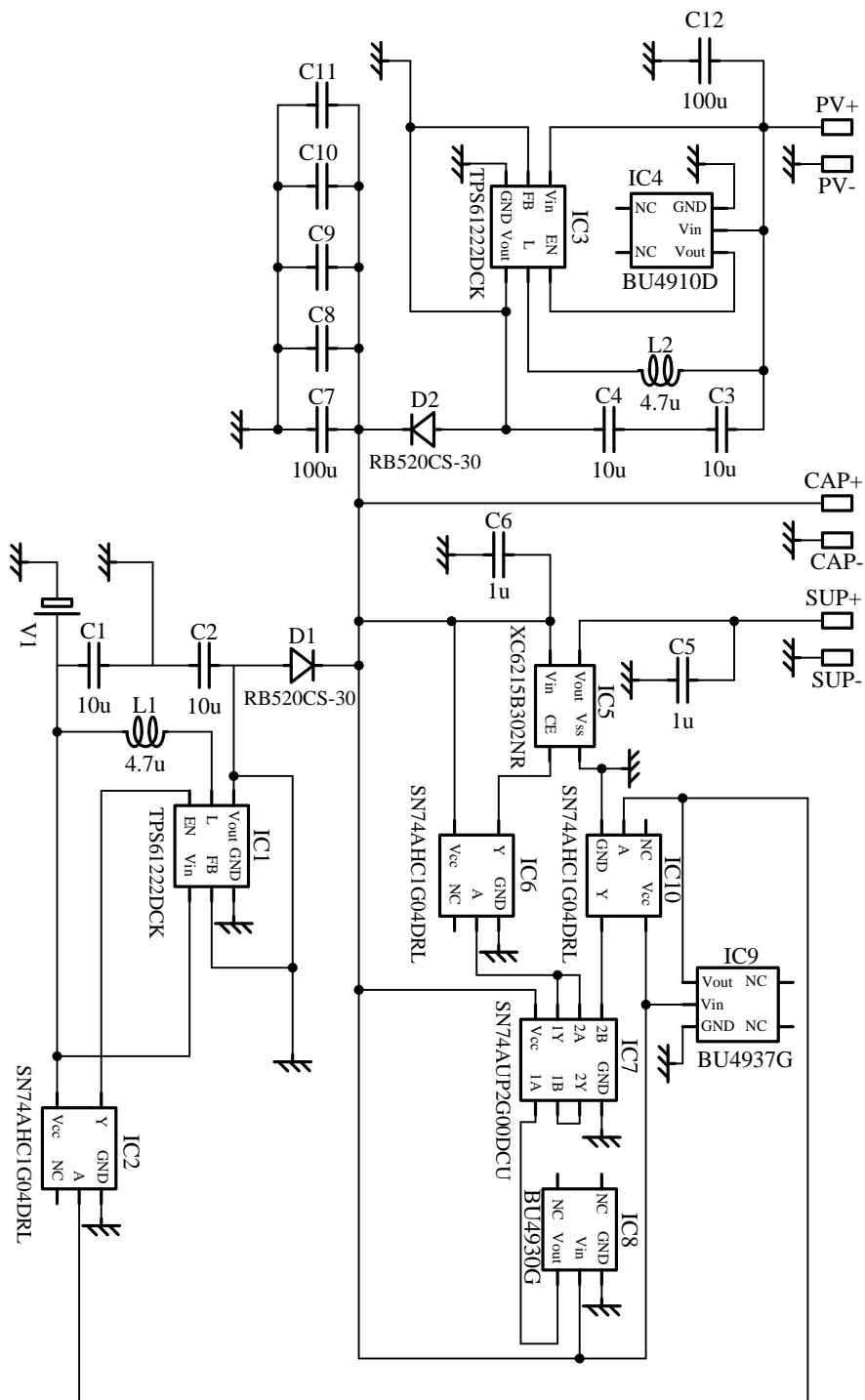


図 4-22. 電源マネジメント回路

図 4-21 は白色 LED 光源を用いて基本セルを実際に測定した結果であり、図 4-21.(a)は I-V 特性を、図 4-21.(b)は出力特性を示している。実際に作製した 4 直列 DPC の能力は、受光エリア  $1295\text{mm}^2 \times 4$ 、受光量  $200\text{lx}$  において出力約  $250\mu\text{W}$  ( $1.8\sim 2.0\text{V} / 130\mu\text{A}$ ) である。図 4-22 は実際に作製した電源マネジメント回路の回路図である。端子 SUP は DPC からの電力入力端子、端子 CAP は EDLC への出力端子、端子 PV は予備電源（電池：3V）との接続端子である。センサ検知回路やリモートコントロールのための通信回路への電力供給は EDLC を通じて行われる。

#### 4.4.5 直感操作型 TV リモコン

図 4-23 は実際に作製した直感操作型リモコン（リーフグリップリモコン：Leaf Grip Remote Control）の写真である。全くボタンのない新感覚のリモコンが実現できている。中央部の黒っぽく見える部分が 4 直列の DPC であり、実際には赤褐色である。圧電性 PLLA フィルムの面積は比較的大きく  $72\text{cm}^2$  である。また人の手による曲げ・ねじり動作は変位量が大きいため、圧電性 PLLA フィルムからの発生電荷量は大きい。従ってここで用いた検知回路は 4.3.3 項、図 4-10 に示した検知回路よりもかなり簡単であり、増幅部はなくインピーダンスマッチングとしてのオペアンプが 1 段入っているだけである。また積分回路は内蔵していない。曲げセンサ、ねじりセンサから検知された信号はマイコンで処理・判断されて通信回路を通じて TV にコマンドが送信される。図 4-24 はリーフグリップリモコンの横断面の模式図である。左右双方のグリップの内部にそれぞれ、電源マネジメント回路、検知回路・通信回路が格納されている。圧電性 PLLA フィルムには直接 PeDOT が成膜されて電極が形成されており、各々透明プレートに OCA で貼りあわされている。圧電性 PLLA フィルムと DPC は接着されておらず、DPC は全体の中立面に機械的にフリーの状態で収納されている。通信回路の規格は ZigBee®（センサーネットワークを主目的とする近距離無線通信規格の一つ）を使用している。電波による通信であるため、コントロールの際にリモコンを TV に向ける必要はない。



CEATEC JAPAN 2011 展示品 : Leaf Grip Remote Control

\*CEATEC JAPAN 2011 Innovation Award (Home Entertainment) Finalist TOP3

(銀のドットは単なる飾りである)

図 4-23. リーフグリップリモコン

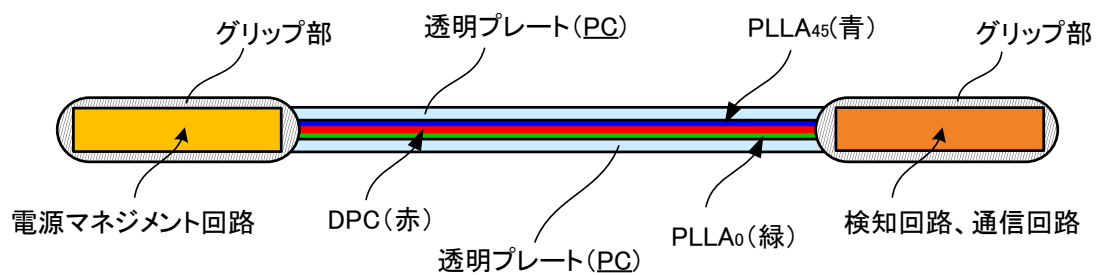


図 4-24. リーフグリップリモコンの断面模式図

今回用いた EDLC の容量は 0.47F で電圧は 5.5V である。容量を  $C$ 、電圧を  $V$ 、エネルギーを  $U$  で表せば、 $U$  は  $C$ 、 $V$  を用いて式(4-5)のように表せる。

$$U = \frac{1}{2}CV^2 \quad (4-5)$$

式(4-5)から満充電で約 7J のエネルギーが蓄えられることとなる。検知回路・通信回路（マイコンの駆動も含む）の消費電力は電波の強度にもよるが、通信時において高く見積もってもせいぜい 0.1W 程度である。他の損失を考慮しないとすれば 0.5s 程度の操作はエネルギー的に約 140 回程度行うことができる。前述したように DPC の発電能力が 250 $\mu$ W のとき 0.1W $\times$ 0.5s のエネルギーを作るためには約 3.3min 必要である。1 日に TV リモコンを使う回数は人それぞれであるが、多めに見て 100 回程度であると仮定すれば、これだけ分のエネルギーを生み出すのにおよそ 5.5hr (330min) が必要となる。効率やその他の損失を考慮すれば 6~7hr が必要となると考えられる。通常的生活においてリモコンが明るい環境に置かれる時間としては十分であると考えられ、1 次電池は不要とできる可能性がある。電源マネジメント回路には、EDLC の枯渇を考慮してバックアップ用の 1 次電池が備えられる構造としている。

リーフグリップリモコンは DVD 等の動画を操作するリモコンとして利用することも可能である。曲げやねじりの大きさを利用すれば動画の早送りや巻き戻しの速度を自由自在にコントロールすることもできる。エアコンのコントローラとしても利用でき、曲げ・ねじり動作で風量調節や、温度調節等も簡単に行うことができる。特にエアコンの操作は就寝時に行うことがある。暗闇の中でボタンを操作することは困難であるが、このコントローラは手探りだけの操作が可能である。さらに、このリモコンをゲームコントローラとして利用することもできる。DPC の位置に OLED を配置すれば全く新しい感覚のゲーム機を創出できる。介護機器等の操作を含め、その有用性は非常に高いと考えられる[117]。

## 4.5 押圧力検知タッチパネル（3次元タッチパネル）

### 4.5.1 応用デバイス

既に 4.3.1 項で述べたように、投影型静電容量方式のタッチパネル：Project Capacitive Touch-Panel, (PCTP) を備えたスマートフォンやタブレット型 PC においてタッチパネルに対する押圧力検知を求められる機会が増えている。現在タッチパネルはすさまじい勢いであらゆる機器にその応用範囲を広げている。ディスプレイを有する機器にはほとんどタッチパネルが装着され始めている [136]。PCTP は表面に軽く触れる、或いは表面を軽く撫でるという操作で機器のディスプレイの表示に働きかけができる優れた HMI である。その軽快な操作感の反面、意図しない操作による誤作動が頻繁に起こる。センシング感度と誤作動の確率はトレードオフの関係にあり、誤作動を減らそうとすればセンシング感度が落ち、軽快な操作感が失われてしまう。

抵抗膜方式のタッチパネル：Resistive Touch-Panel, (RTP) は操作感において PCTP 程の軽快感はないが操作に確実性があり、現在でも確実な操作性が求められるところでは使われ続けている。しかしながら、PCTP の操作性を求めて RTP から PCTP への置き換えを模索しているメーカーは多い。例えば、自動車のカーナビゲーションシステムでは RTP が広く使用されている。スマートフォンユーザー層の拡大に伴い、PCTP の操作性に慣れたユーザーが増えていることから、メーカーではカーナビゲーションシステムのタッチパネルを PCTP へ置き換えることを検討し始めている。

そこで、ある操作を確定させるために意図的に画面が押された時のみに特定の機能が発現するような操作が求められている。つまりタッチパネルの押圧力検知が求められている。さらに押圧力をレベル的に捉える事ができればそれに応じた新しいアプリケーションの開発が期待できる。例えば現在のスマートフォンにおいて画面の拡大はピンチング操作（2本の指の間隔を広げる、又は狭める）によって行われる。押圧力を拡大操作に割りつければ、押圧のレベルにより拡大のスピードを変える、或いは拡大率を変えるという操作が可能になる。

縮小に関してはダブルタップ等でモードを切り替えればよい。このような操作を実現することにより、スマートフォンを両手で操作する必要がなくなる。このような拡大縮小操作はカーナビゲーションシステムにおいても非常に有用である。地図を拡大したい時には拡大したい場所に押圧力を加えれば良く、操作性が格段に向上する。同様な操作はデジタルカメラでも有用であり、画面に映っている画像をそのまま押しこむことでズーム等の操作が簡単に行える。

#### 4.5.2 デバイス（タッチスクリーンセンサ）の基本構造

タッチパネルに押圧を加えれば必ず盤面にはたわみが生じる。先に述べた微小変位量検知センサと同様に押圧力検知タッチパネルはこのたわみを検知する。先のセンサと異なる点は PLLA センサ自体がタッチパネルに組み入れられていることである。このような構成にすることにより、押圧力検知のためのセンサを余分に付加する必要がなくなる。また、タッチパネルの操作面全てを押圧検知部として利用できるため、PLLA フィルムの面積を大きくすることができ、発生させる電荷の総量を大きくすることができる。これにより積分処理が行い易くなり、押圧力のレベル検知が可能となる。

タッチパネルは実際に指で触れる部分であるタッチスクリーンセンサ：Touch Screen Sensor, (TSS)部と、TSS からの情報を元に座標を算出し OS と通信を行うタッチスクリーンコントローラ：Touch Screen Controller, (TSC)部とからなる。一般に PCTP の TSS 部には表 4-6 のような方式がある[137]。

表 4-6. タッチパネルの技術の比較

タッチパネル技術	ガラス型	フィルム型	インセル型	カバーガラス一体型	オンセル型
図	4-25	4-26	4-27	4-28	4-29
厚さ(mm) 液晶パネルに導入	2.5~3.2	2.1~2.8	1.9~2.5	1.9~2.5	2.0~2.6
透過率	90%以下	87~90%	90%以上	90%以上	90%以上
PLLA導入可能性	○	○	×	○	×



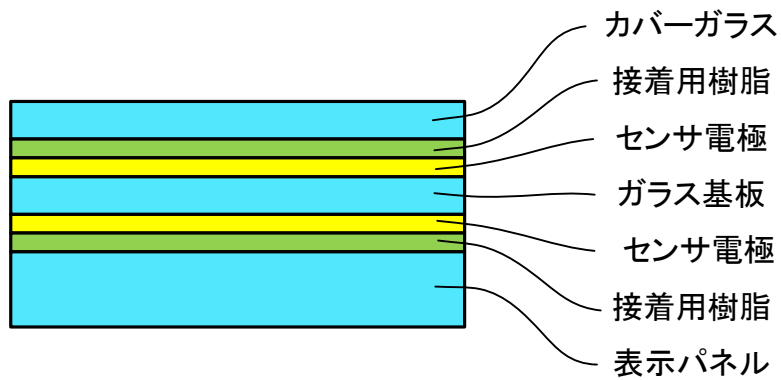


図 4-25. ガラス型タッチパネルの TSS 部の層構造

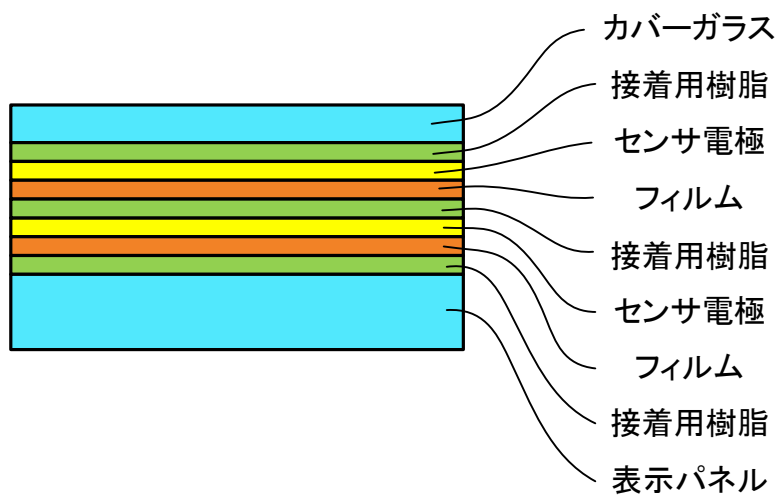


図 4-26. フィルム型タッチパネルの TSS 部の層構造

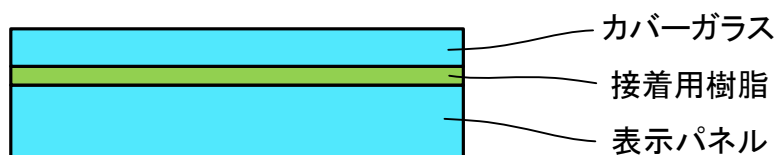


図 4-27. インセル型タッチパネルの TSS 部の層構造

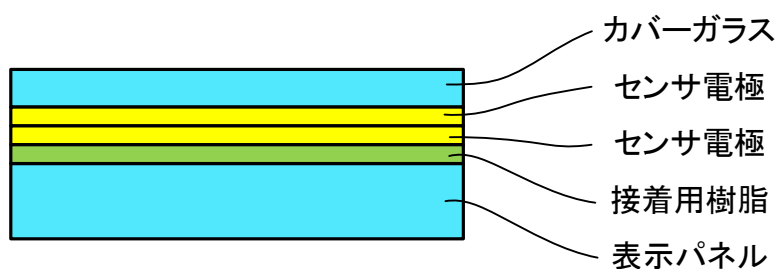


図 4-28. カバーガラス一体型タッチパネルの TSS 部の層構造

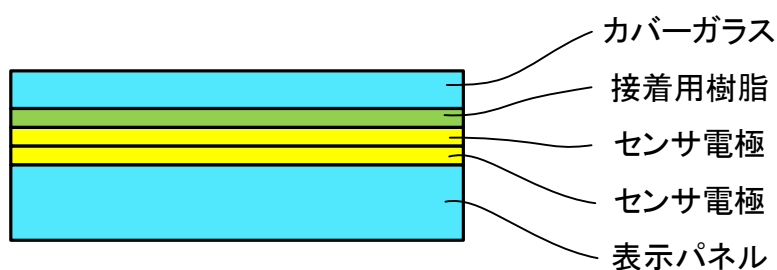


図 4-29. オンセル型タッチパネルの TSS 部の層構造

ガラス型、フィルム型は既に多くの機器で使用されている。またインセル型、カバーガラス一体型は一部の機器で採用され量産化されている。オンセル型は主に OLED のタッチパネルとして採用されている。このうち圧電性 PLLA フィルムをこの層構造の中に内蔵させ押圧力検知が可能な方式は、ガラス型、フィルム型およびカバーガラス一体型である。ここではフィルム型タッチパネルに圧電性 PLLA フィルムを追加することで試作を進めた。

図 4-25, 4-26, 4-28, 4-29 に示すように基本的に電極は 2 層構造となる。一般的に良く使用される相互容量方式では一方の電極はドライブ側電極 (TX 電極)、他方の電極はセンシング側電極 (RX 電極) である。投影型静電容量方式のタッチパネルは、TX 電極と RX 電極の間の容量の変化を捉えて、その部分に指が

触れられていることを検出する。

TSS 部の電極の構造は、図 4-30 に示すように TX 電極と RX 電極が交差するようにマトリックス状に配置されており、TSC により容量検知のスキヤニングが行われている。TX 電極 (Y) に順次電圧を加え (スキヤニング)、RX 電極 (X) の容量を測定する。TSS としてはダイヤモンド型、田型等の構造が一般的である、図 4-30 はダイヤモンド型の一例である[136, 137]。

静電容量方式のタッチパネルには投影型静電容量式の他に表面型静電容量方式がある。また投影型静電容量方式においては2種類の検知方法があり、ここでは相互容量方式について説明したが、これ以外の方式として自己容量方式がある[136, 137]。現在のスマートフォンやタブレット型 PC 市場では、検知精度がよく、マルチタッチ入力にも容易に対応ができ、構造的な信頼性も高い投影型静電容量—相互容量方式が用いられる場合がほとんどである。

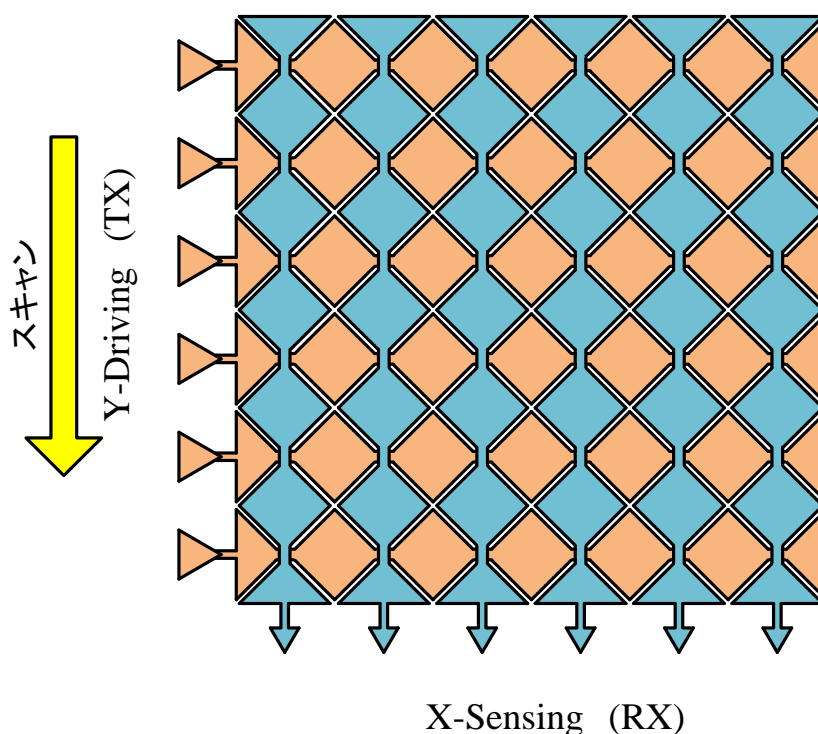


図 4-30. 投影型静電容量方式の TSC の電極構成

タッチパネルの透明性をできるだけ高く保つため、TSSの電極層はできるだけ少ない方が良い。圧電性 PLLA フィルムによる押圧センシングのためには、圧電性 PLLA フィルムの両面に電極を形成する必要があるが、タッチパネルに電極付き圧電性 PLLA フィルムを組み込むとさらに電極層が2層増えてしまう。TSSの電極層を極力少なくするために、押圧検知用の電極と投影型静電容量方式の電極とを一部複合させる構造とした。

図4-31は電極3層型フィルム型TSSの電極の層構造平面図である。図4-30に示したダイヤモンド型のTSSを基本とし、1層目のRX電極（青）の直下には、2層目のTX電極（橙）と並行して押圧検知電極1（黄）が配置されている。さらにその下層には全面に押圧検知電極2（緑）が配置されている。

図4-32は電極3層型フィルム型TSSの層構造断面図である。カバーガラス、接着層、表示パネルは図示を省略した。透明電極はITOを用いており、通常は光学用PETフィルムに予めITOが成膜されたものをパターニングして用いる。圧電性 PLLA フィルムは押圧検知電極1と押圧検知電極2との間にある。尚圧電性 PLLA フィルムは PLLA<sub>45</sub> フィルムであり、分子の配向方向はTX電極が伸びる方向に対して45°となるようにされている。各層は厚さ10~30 $\mu$ mのOCAで貼りあわされている。カバーガラスに押圧力が加わり操作面がわずかにたわむと PLLA<sub>45</sub> フィルムに伸長力が加わり、電荷が発生する。この電荷は押圧検知電極1および2で捉えられて検知回路から押圧信号として出力される。押圧検知電極2がTSSの表面からわずかに見えるだけで（実際には透明電極なので視認できない）、表面上は図4-30に示したダイヤモンド型のTSSと同じである。このような構成とすることによりX-Y検知感度をほとんど低下させることなくタッチパネルに押圧検知センサを加えることができる。押圧検知電極2はほぼ全面に形成された電極であり、タッチパネルの下にある表示パネル（通常はLCD）から発生するノイズをシールドする役目を果たす。現状のTSSでもノイズシールドのための電極を備えたものもあり、これと比較すれば電極の層数は全く同じになるため、透明度に関しても全く支障がないと言える。押圧検知感度を高めるため、実際には押圧検知電極2もパターニングするが、これ

については後述する。

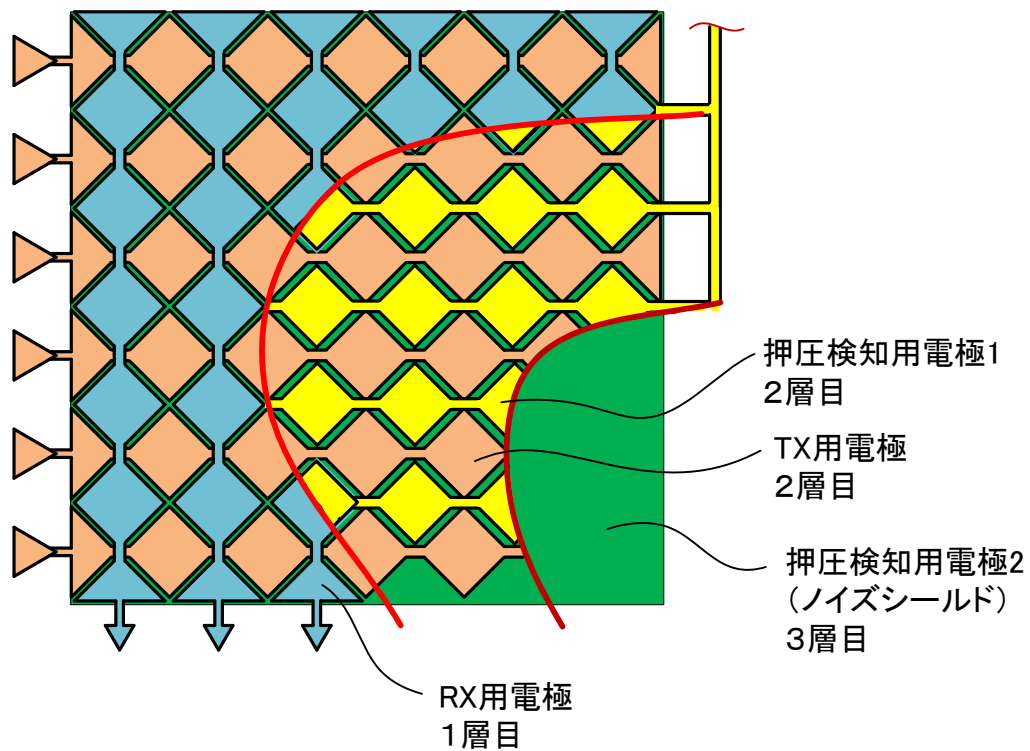


図 4-31. 電極 3 層型フィルム型 TSS の層構造平面図

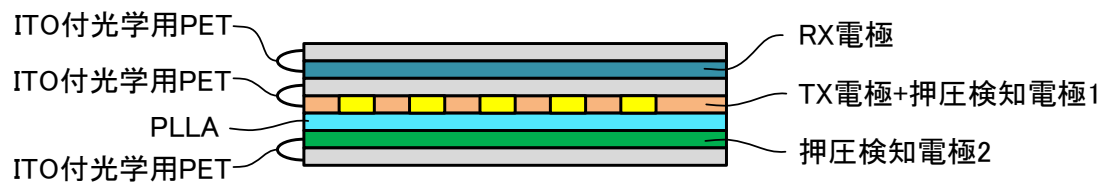


図 4-32. 電極 3 層型フィルム型 TSS の層構造断面図

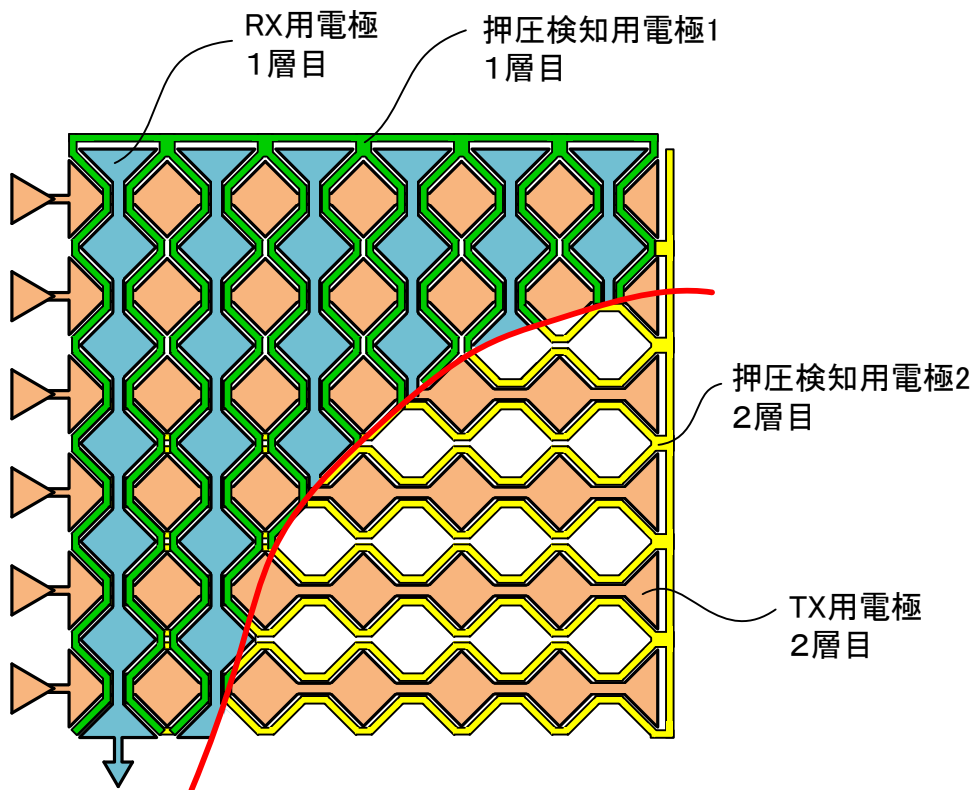


図 4-33. 電極 2 層型フィルム型 TSS の層構造平面図

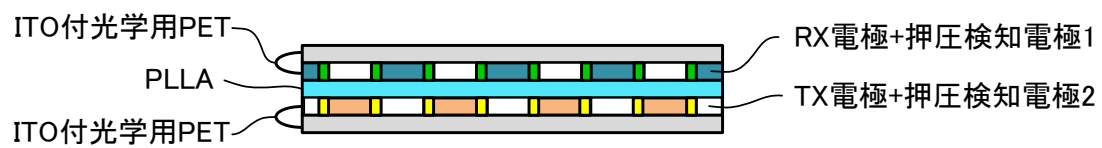


図 4-34. 電極 2 層型フィルム型 TSS の層構造断面図

図 4-33 は電極 2 層型フィルム型の TSS の電極の層構造の平面図である。図 4-30 に示したダイヤモンド型の TSS を基本とし、1 層目の RX 電極（青）の縁を沿うように押圧検知電極 1（緑）が形成されている。同様に 2 層目の TX 電極（橙）の縁を沿うように押圧検知電極 2（黄）が形成されている。押圧検知電極 1 と 2 は斜辺部分で対向している。

図 4-34 は電極 2 層型フィルム型 TSS の層構造断面図である。図 4-32 と同様にカバーガラス、接着層、表示パネルは図示を省略した。前述の電極 3 層型の場合と同様に、電極はパターンニングされた ITO 付き光学用 PET フィルムで形成されている。1 層目と 2 層目の電極の間に PLLA<sub>45</sub> フィルムがあり、先と同様に OCA で貼り合わされている。この構成では TSS を構成する部材は現行のタッチパネルとほぼ同じで、透明度の高い押圧力検知タッチパネルが低コストで実現できる。TX 電極と RX 電極間で容量が形成される部分に別機能の電極が挿入されているため、X-Y 検知感度は現行のタッチパネルよりやや低下するが、実際に作製した試作機はストレスなく機能し、マルチタッチも正常に機能した。また押圧力検知も問題なく機能した。図 4-35 は実際の試作機（タッチプレッシャーパッド：Touch Pressure Pad）である[138]。



CEATEC JAPAN 2011 展示品：Touch Pressure Pad

図 4-35. タッチプレッシャーパッド

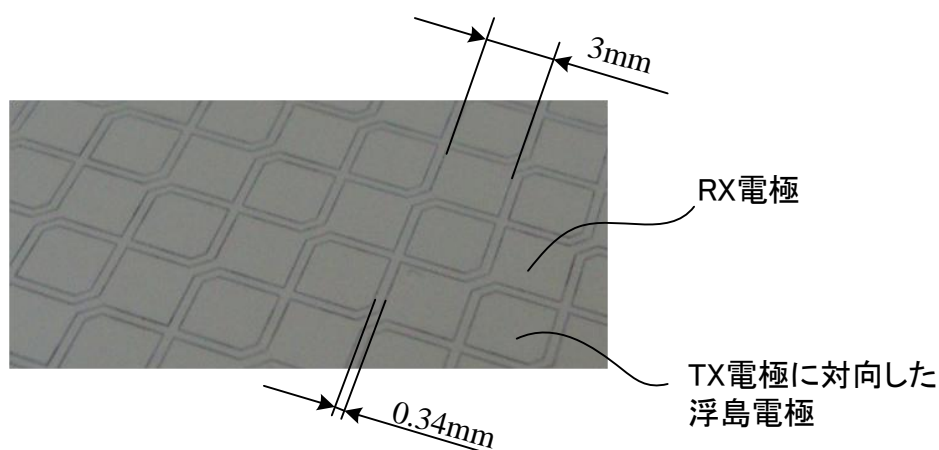


図 4-36. 電極 2 層型フィルム型 TSS の操作面拡大図

試作機の電極は銀ペーストのスクリーン印刷でパターンニング形成した。そのため電極が視認できる。図 4-36 は図 4-35 に示した試作機の操作面の拡大図である。このタッチパネルは操作面の短辺 2 辺が固定されている。つまり操作面は両持ち梁の状態になっている。操作面に押圧が加わった時は単純なたわみとなるため、PLLA<sub>45</sub> フィルムには単純な伸長力が加わり、確実に電荷が発生する。しかしながらスマートフォンのように 4 辺を固定した場合には、カバーガラスの変形は複雑になり、PLLA<sub>45</sub> フィルムには単純な伸長力が加わらないため発生電荷が低下する。これに関する改善は次項にて述べる。

#### 4.5.3 カバーガラス 4 辺固定時の押圧検知感度改善

スマートフォンやタブレット型 PC において、カバーガラスは通常筐体に全辺（4 辺）が固定されている。剛性の維持、防水、異物侵入防止を考慮すればこのような構造にするのが当たり前となっている。カバーガラスの表面に押圧が加えられたとき、4 辺が固定してあるガラスにはたわみが生じにくく、その変形の様子も押す場所により大きく異なる。矩形上の PLLA<sub>45</sub> フィルムを、ある 1 対の辺の間隔が広がるように伸長した時に発生する電荷と、他方の対の辺



に対して同様のことを行った時に発生する電荷は符号が逆転する。ガラス全面に PLLA フィルムが貼られている場合、その変形のモードによっては PLLA フィルムに発生する電荷はキャンセルされる可能性がある。

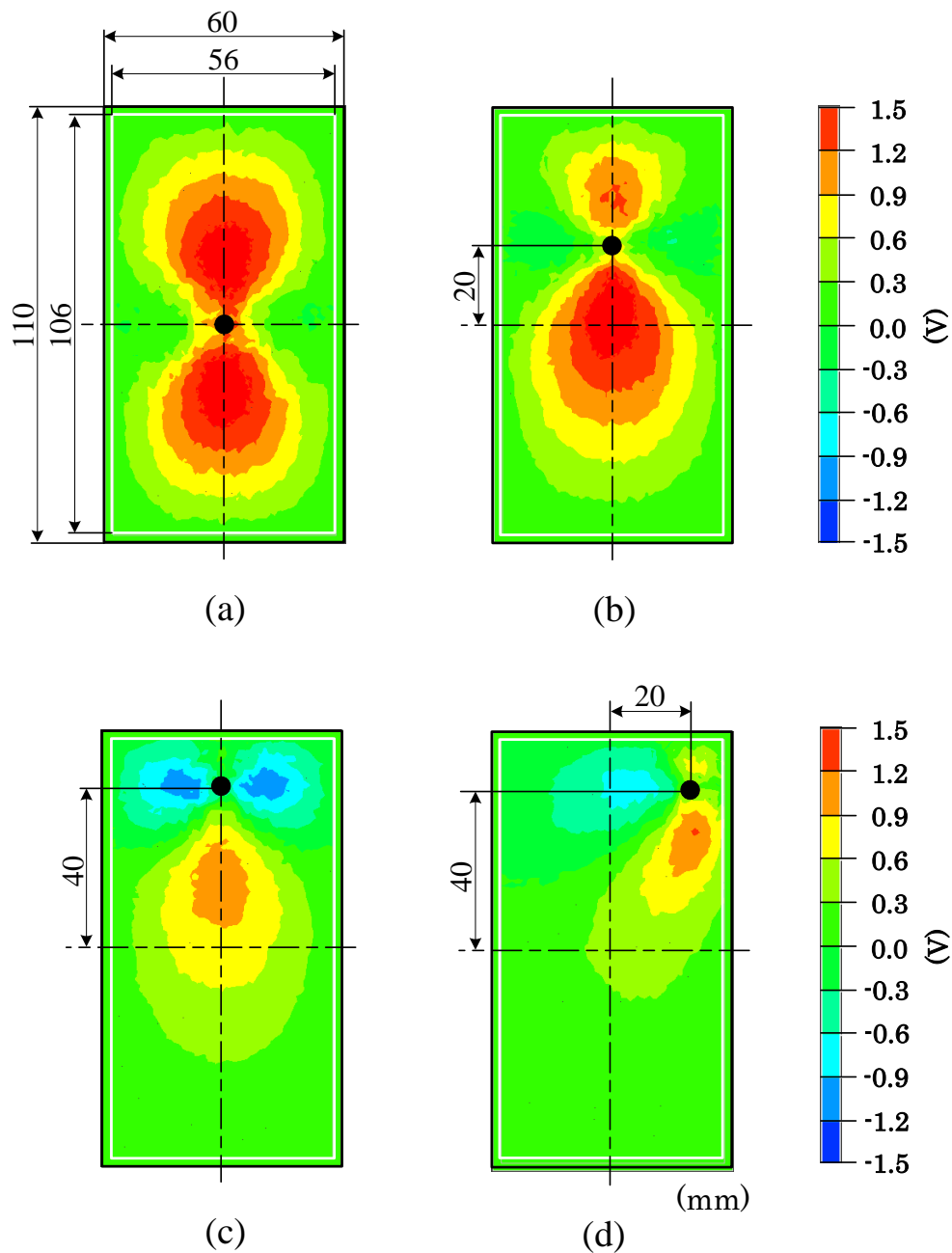


図 4-37. スマートフォンガラスの押圧位置と PLLA の電荷発生分布

図 4-37 は 5inch サイズのスマートフォンを想定し、ガラスの押圧位置と圧電性 PLLA フィルムからの発生電圧の分布の関係を FEM で計算し、等高線図で表したものである。FEM シミュレーションでは電極を形成せずに計算を行い、圧電方程式等から物質表面の電位が計算される。各計算要素の電位は内部の分極を根拠とする電場と関連づけられるため、この電位の分布は電荷の分布とほぼ一致する。

ガラスは 0.5mm であり、50 $\mu$ m の厚さの PLLA<sub>45</sub> フィルムがガラス全体に貼り付けられているモデルとした。PLLA の圧電定数は  $d_{14}=6\text{pC/N}$  とした。PLLA の分子の配向方向(延伸方向)はガラスの長辺に対して斜め 45° とされている。黒い点で表された部分が荷重を与えた点であり、荷重点のサイズは直径 4mm の円である。与えた荷重は 500g であり、このとき荷重点には 0.4MPa の圧力が加えられていることとなる。押圧に関しては指で軽く押したときの事を想定した。フィルム式タッチパネルを構成するために必要な他の部材は省略した。

色が赤くなる程、正の電位が高くなっており、色が青くなる程、負の電位が高くなっている。緑色の部分は発生電圧がほぼ 0V である。上述したように電位の分布は電荷の分布と一致すると考えられるため、これ以降、電位の分布を電荷の分布とみなして記述する。

ガラスの中央部を押したときは、短辺方向の伸長に対する変形が支配的となり、全体的に正の電荷が発生する。押圧位置が端に寄るに従い負の電荷が発生する領域が広がる。これは、短辺から隣接する長辺に向かう伸長のモードが生じるためであり、図 4-37.(c)では発生する電荷はほとんどキャンセルされてしまう。(d)でも同様である。

発生する電荷の総量は非常に小さいため、検知感度を維持するためには、図 4-37.(c)や(d)のような場合の電荷のキャンセルは極力起こらないようにしなければならない。このような電荷のキャンセルを防止するために、逆符号の電荷が発生する領域の電極を予め切り離しておけばよい。図 4-37 に示したシミュレーション結果を基にすれば図 4-38 に示すような電極の分割が有効であると考えられる。電極を分割する領域の大きさについては、実際のガラスの形状や

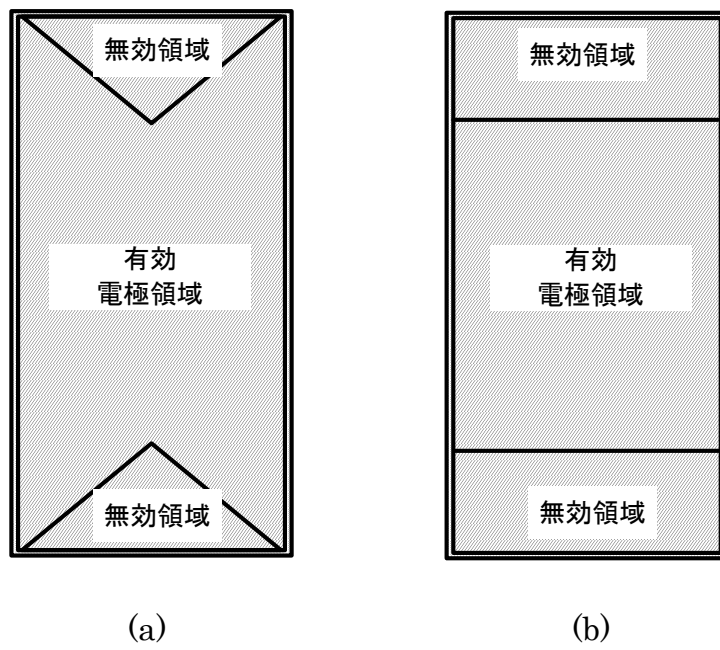


図 4-38. 分割電極の例

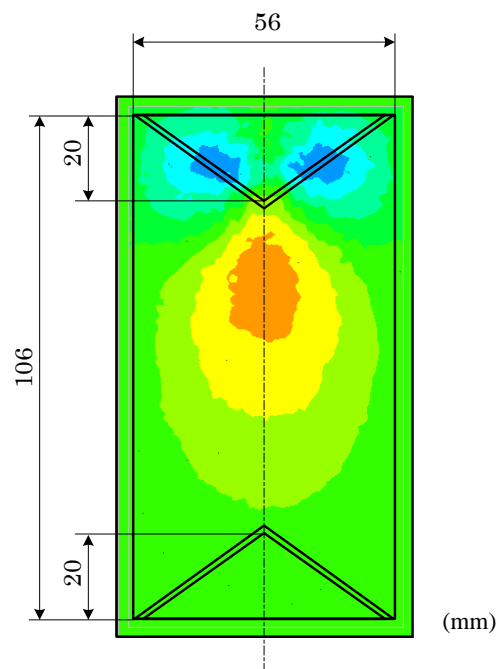


図 4-39. 分割電極の寸法と発生電荷分布の一例

その固定方法によるため、それらの設計に応じて個別に計算を実施し、寸法を決定する必要がある。図 4-39 は図 4-37 のシミュレーションで示したモデルに対しての分割電極の寸法の例と、図 4-37.(c)の計算結果を重ねて表示したものである。逆符号の電荷が発生する領域の一部が切り離されていることが分かる。

実際にこのような電極のパターニングは、図 4-31 に示した電極 3 層型 TSS の押圧検知用電極 2 (3 層目) に対して施される。電極 3 層型 TSS では 3 層目の電極は全面電極であるためパターニングの自由度が高い。電極 2 層型 TSS では図 4-38.(a)のような領域分割はできないため、図 4-38.(b)のような領域分割となる。

実際にガラス面に荷重をかけた時と、これに対応して発生する電荷を測定するために図 4-40 に示すような実験機を作製して測定を行った。図 4-39 に示すようなパターニングを施した電極を PLLA に成膜し、0.5mm のガラスに OCA で貼り合わせた。電極は PeDOT で形成した。用いた PLLA の厚みは 70 $\mu$ m であり、圧電定数は  $d_{14}=6\text{pC/N}$  である。

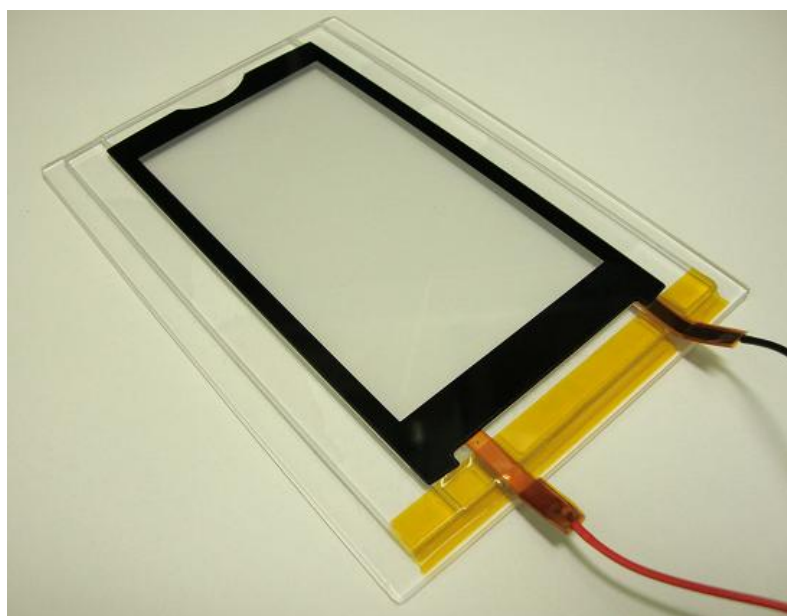


図 4-40. 分割電極を用いた押圧検知実験機

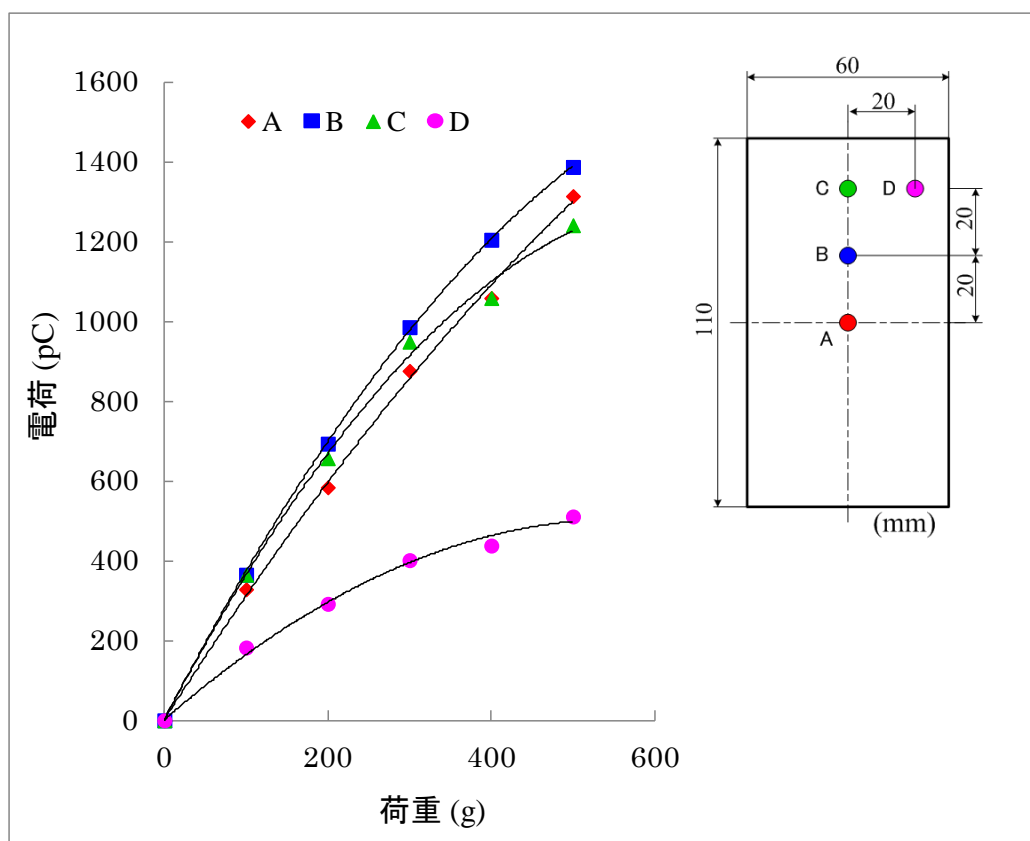


図 4-41. 押圧個所による荷重と発生電荷の関係

図 4-41 は、図 4-40 に示した実験機の操作面（ガラス表面）に実際に荷重を加えて発生電荷量を測定した結果である。C,D の位置においても十分な電荷が発生していることが分かる[139]。

#### 4.5.4 押圧レベル検知積分回路とその問題点

4.3.3 項で述べたとおり圧電体は変位が生じた瞬間しか電荷を発生しない。従って、これを押圧レベル検知に用いた場合、押しっぱなしであってもそれが変化の無い状態であるならば PLLA から電荷は発生しない。押しっぱなしの検知、即ち押圧のレベル検知をする際には積分回路が必要である。積分回路は簡易的には図 4-42 のように構成できる。

この回路ではオペアンプの内部抵抗をそのまま回路上の抵抗素子として用いている。オペアンプ自体の端子間抵抗は数  $T\Omega$  あり、PLL A から発生した電荷はほとんど逃げずにそのまま留まる。従ってあたかも電荷量が積分されたような電圧出力が得られる。しかしながら、通常の回路基板上で保証される抵抗はせいぜい数百  $M\Omega$  クラスであり、このような回路構成では湿気等の影響により端子間抵抗が低下すると電荷が逃げ積分できなくなってしまう。従って実際には図 4-43 のような構成の回路とし、ソフトウェアにより積分を実行する[117]。

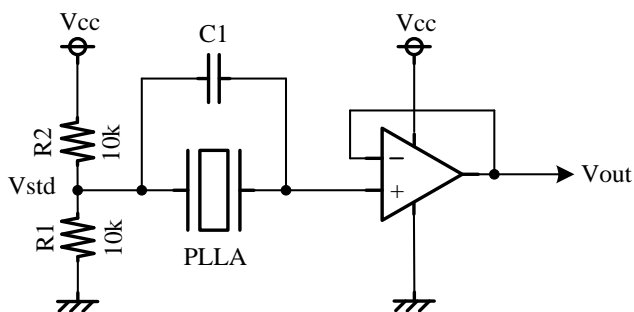


図 4-42. 簡易積分回路

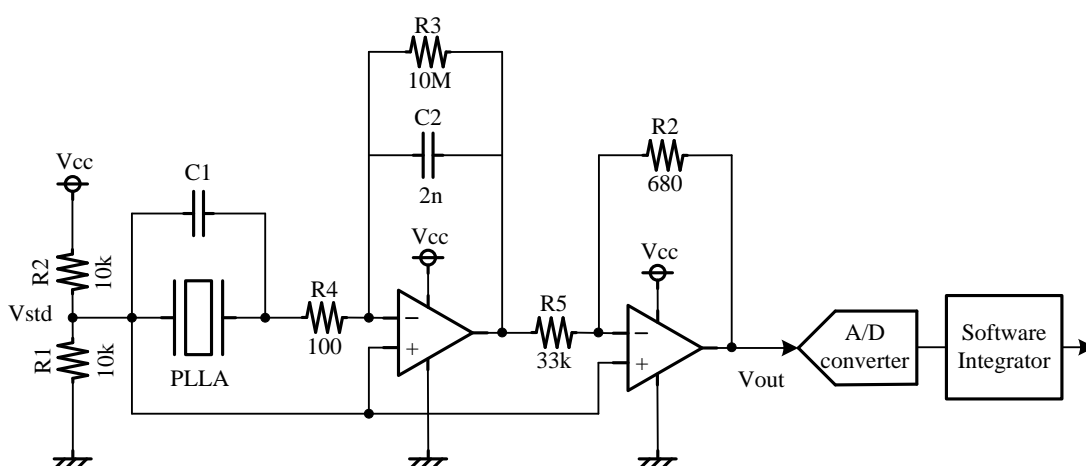


図 4-43. 実際の検知回路

積分回路はノイズやオペアンプのドリフトもそのまま含めて積分してしまうため、実際には押圧がなくても徐々に押圧レベルが増加したり、継続的に押圧された状態であってもその押圧レベルが増加もしくは減少したりする場合があります。圧電フィルムを用いたセンサを用いて継続的な変位量を検出するにはこの点において非常に難点があり、これまでこのような用途では用いられてこなかった。しかしながらこれをタッチパネルと組み合わせた場合、TSCの制御と押圧レベルの検知の制御とを組み合わせることにより、以下のような方法でこのような不正な積分値のドリフトをキャンセルすることができる。

- ①: TSC が指の接触を検出していない間は、押圧検知の積分値を常にキャンセルする。
- ②: TSS 上を指が動いている間は、押圧検知の積分値を常にキャンセルする。
- ③: 押圧を検出した瞬間に TSC を間欠動作にし、押圧量の積分を開始する。  
指が離れたことを検知した瞬間に積分値をキャンセルする。

スマートフォンやタブレット型 PC においてユーザーが押圧を加える時間は短時間（数秒～十数秒）であると考えられ、押しっぱなしの状態のドリフトに関してはあまり問題とならない。

#### 4.5.5 押圧力検知タッチパネル

図 4-44 はスマートフォンを模して実際に試作した 5inch サイズの押圧力検知タッチパネルである。疑似筐体(アルミ:A7075)を作製し、この筐体に 0.5mm の強化ガラスの外周を両面テープで固着した。ガラスの内側には電極 3 層型 TSS が OCA で貼り合わされている。電極のパターンと層構造は図 4-30, 4-31 に示した通りである。また 3 層目の電極は図 4-39 に示す通りにパターンニングされており、無効領域は浮き電極とされている。TSS の電極は全て ITO で形成されており透明である。タッチパネルからは筐体の内部構造がそのまま見えている。TSC は Micro Chip 製のタッチパネル評価用のマイコンを用いた。



図 4-44. 押圧力検知タッチパネル（スマートフォン）

図 4-41 に示したように、同じ荷重であっても押圧する位置によって感度が変わる。実際の使用状態では押す位置によって反応が異なると使いにくいいため、位置検出データと合わせて押圧レベルを補正する。具体的には検知した押圧レベルに係数をかけ、検出された(X, Y)座標に基づいて予め設定されている係数テーブルもしくは、(X, Y)座標から関数で求められる係数を、直接得られた押圧レベルに乗ずることによりこれを補正する。

図 4-45 は図 4-44 のタッチパネルの左上 1/4 領域において、所定の位置に順次 300g の荷重をかけた時に発生する電荷量のマトリックス分布図である。電荷の発生分布はガラスを縦方向に 2 等分する線に対して対称となる。また、同様にガラスを横方向に 2 等分する線に対して対称となるため、これらの 2 等分線で分割される領域（1/4 領域）を測定した。電荷の発生量は各辺に近いほど小さくなり、隅の部分ではほとんど検出できないレベルとなった。図 4-46 は



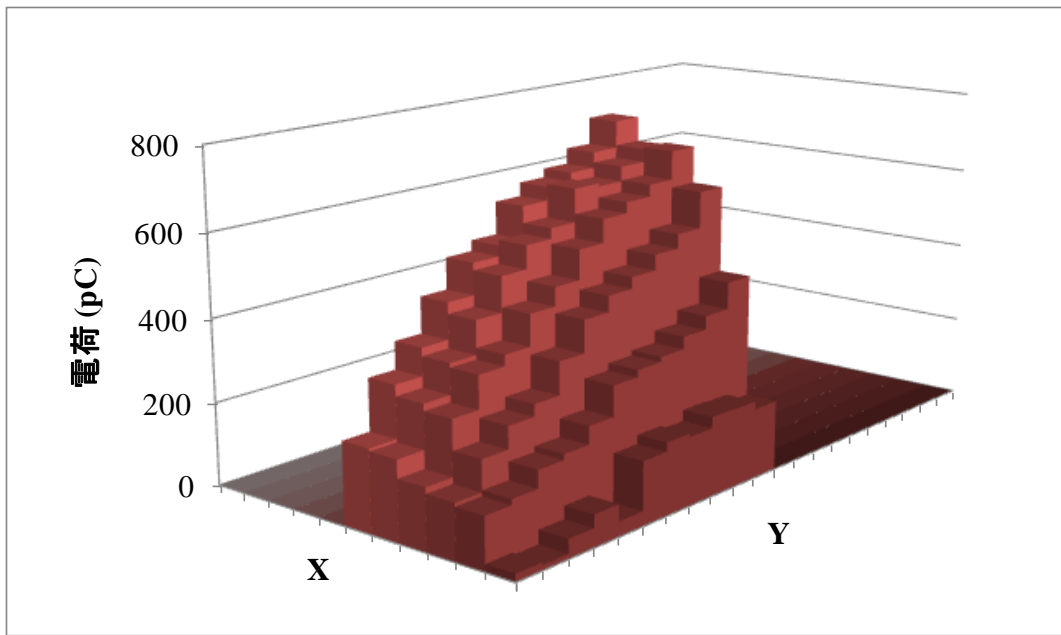


図 4-45. 押圧により発生する電荷のマトリックス分布

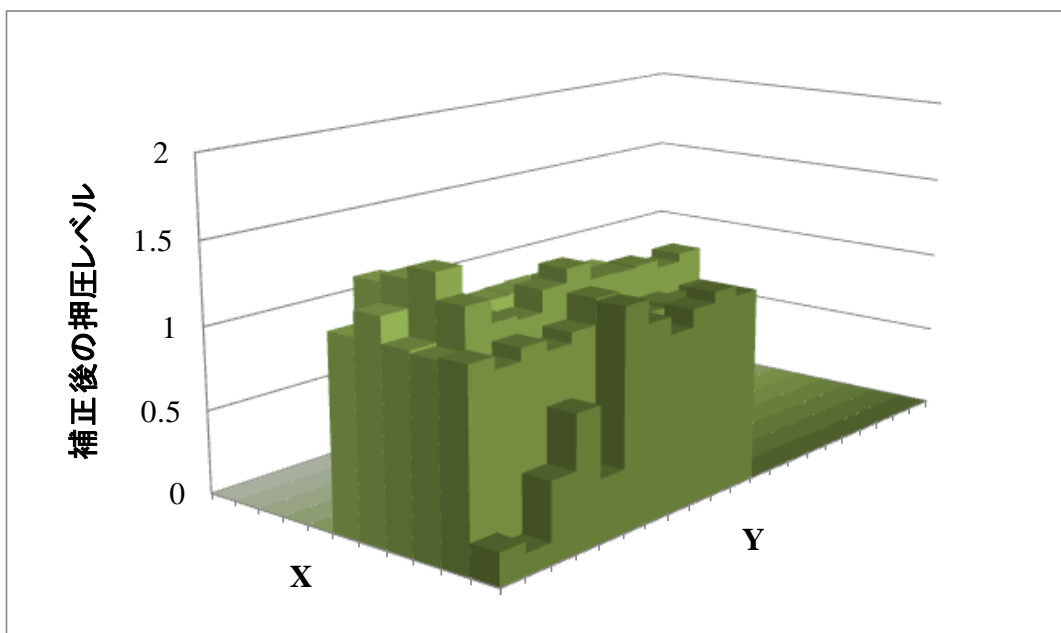


図 4-46. 補正後の押圧レベルのマトリックス分布

予め定めておいた補正関数を用いて、電荷分布を補正し、押圧レベルに読み換えた場合のマトリクス分布図である。この例では 3N (300gW) の押圧に対してレベルが 1 となるように補正されるようになっている。隅部を除いて押圧力がよく補正できていることが分かる[139]。

スマートフォンの実際の使用時において、タッチパネルの操作エリアは使い勝手を考えてほぼ中心部に集中している。従って、隅部の押圧レベルを正確に求めるような要求はほとんどないと考えられる。押圧レベルを正確に検知できない領域では、ソフトウェア自体がその部分の押圧を検知しないようにすればよい。

これまでも何度か言及したが、圧電性 PLLA フィルムには焦電性がないためこのような検知が可能である。圧電性 PVDF フィルムを利用した場合は指で触れただけで電荷が発生し、これが積分回路により積分されるため正確な押圧量を測り知ることができない。

## 4.6 フレキシブルデバイス向けタッチパネル

### 4.6.1 応用デバイス

現在セットメーカーが新規に検討を進めているものの中にフレキシブルデバイスがある。OLEDの開発により、ディスプレイのフレキシブル化は既に実用化に近い。これまで電子機器と言えば硬いものが当たり前であったが、常識を覆すような電子機器が求められる今、“柔軟性”、“フレキシビリティ”は多方面において非常に重要なキーワードとして捉えられている。電池や電子回路のフレキシブル化等、まだまだ解決すべき課題は沢山あるが、近い将来の実現を目指して開発が着々と進められている[140~143]。

スマートフォンがフレキシブルになると、腕に巻きつけての携帯が可能となる（ウェアラブル）等、新しいコンセプトの商品開発が期待される。また、これに合わせて曲げやねじりといった機能を何らかの制御に使うということが考えられ始めている[143]。このようなコンセプトのスマートフォンは2011年10月に開催された Nokia World 2011 (London) において “Kinetic Devices” という形で発表された（同時期に CEATEC JAPAN 2011 においてリーフグリップリモコンが発表されている）。フレキシブルと言うとぐにゃぐにゃというイメージに捉えられがちであるが、これまでのものに比べて、少し曲げることができる、或いは少しねじることができるというものも含まれる。図 4-47 はフレキシブルなスマートフォンのイメージである。

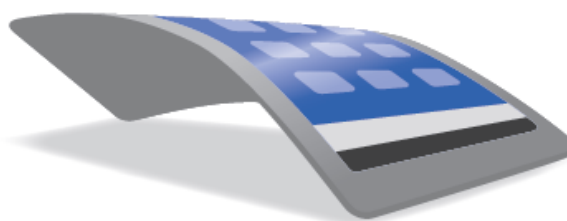


図 4-47. フレキシブルスマートフォンのイメージ

このようなデバイスにおいても操作の主役はタッチパネルであると考えられる。例えばこのデバイスにおいて、曲げおよびねじりを検知するためにそれ専用のセンサデバイスを単独で組み込むよりは、タッチパネルに曲げとねじりを検知する機能が既に組み込まれている方がメーカーとしては使い勝手が良い。ここでは、フレキシブルデバイスに向けた曲げ・ねじりを検知するタッチパネルについて述べる。

#### 4.6.2 曲げ・ねじり動作の検知と電極設計

3.3.2 項及び 4.4 節で述べたように、圧電性 PLLA フィルムを用いた曲げ・ねじり検知に関しては PLLA<sub>45</sub> と PLLA<sub>0</sub> の 2 種類のフィルムを用いてきた。4.5 節で述べた押圧力検知タッチパネルはフィルム型であり、これに PLLA<sub>45</sub> と PLLA<sub>0</sub> の 2 種類のフィルムを用いて TSS を構成し、フレキシブルなカバー（例えば PC や PMMA 製）に貼り付ければ、曲げとねじりを検知できるフレキシブルなタッチパネルとできることは容易に想像できる。しかしながら、PLLA<sub>45</sub> フィルムにさらに PLLA<sub>0</sub> フィルムを加えるとそれだけで電極が 2 層加えられることになり、タッチパネルの透明度を低下させてしまう。実際には ITO の色度により  $b^*$  値が増加し黄色みが増すこととなる。

PLLA<sub>45</sub> フィルム、或いは PLLA<sub>0</sub> フィルムのいずれか一方で曲げもねじりも検知できれば、PLLA は一層で済み、電極の構成は 4.4 節で述べた押圧力検知タッチパネルとほぼ同様の構成とできる。3.3.2 項で述べたように PLLA<sub>45</sub> フィルムが貼り付けられたプレートは曲げ方向のたわみを検知するが、ねじりは検知しない。これは、ねじられた時には元々圧電性 PLLA フィルムに電荷が発生しないか、局部的に発生した電荷がマクロ的に打ち消されていることによる。PLLA<sub>0</sub> フィルムが貼り付けられたプレートで曲げが検知できない理由も同様である。そこで PLLA<sub>45</sub> フィルムのみで曲げとねじりの双方のアクションを捉えるために次のような検討を行った。

図 4-48 は FEM シミュレーションのモデルを示している。プレートは PC であり、この表面に PLLA<sub>45</sub> フィルムが貼り付けられている。このモデルにお

いて PLLA<sub>45</sub> フィルムはプレートに理想的に貼り付けられており、接着層の厚みは 0 でその弾性率は無限大である。つまり界面での応力緩和はない。

図の4隅の“○”で示した位置、およびその矢印の方向に応力が加わり、プレートにねじり変形が加わる。加えた応力は直径 4mm の円の領域に対して  $8E+4Pa$  であり、各ポイント当たりおよそ 100gW である。図 4-49 は、前述したような応力により図 4-48 に示すプレートモデルが変形した際に PLLA<sub>45</sub> フィルムの上面の電極に現れる電圧の分布を示したものである。4.5.3 項でも述べたように、この電圧の分布は電荷の分布とほぼ一致する。変形量は各応力ポイントで約 1mm である。PLLA<sub>45</sub> フィルムの4隅に小さな電荷が現れている領域があり、その領域の大きさはほぼ同じで隣り合う領域同士で極性が逆転している。電極は全面に形成されているので発生した電荷はキャンセルされ実際には電圧は観測されない。このシミュレーション結果からすれば、図 4-50 に示すように電極を領域 A, B, C, D に4分割し各電極から発生する電荷を個別に観測すれば、PLLA<sub>45</sub> フィルムでねじりを検出できる可能性があることが分かる[144, 145]。

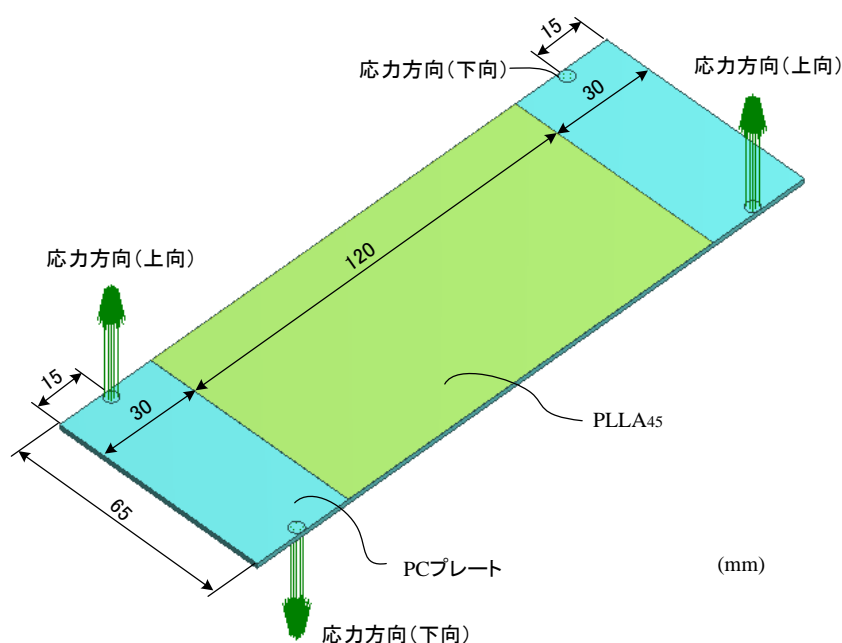


図 4-48. FEM シミュレーションモデル

実際に、回路上で A と C、B と D を接続しそれぞれに発生する電圧の極性を確かめたところ、シミュレーションと同様に極性の異なる符号の電圧が観測できた。図 4-49 に示したねじりを正のねじり、また曲げに関しては中心部が凹形状となる状態を正の曲げと規定すれば、この状態で各電極領域に現れる電圧の符号の組み合わせは表 4-7 に示すとおりとなる。

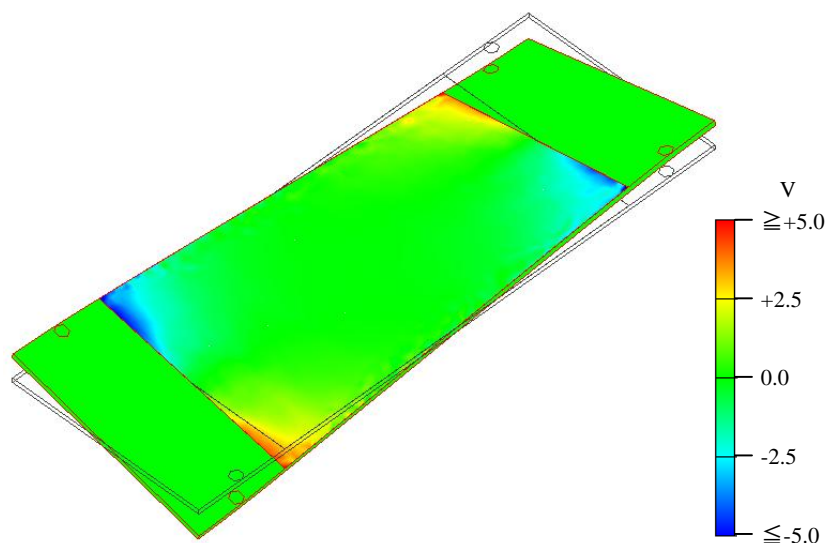


図 4-49. プレートのねじりで PLLA<sub>45</sub> フィルムに発生する電圧の分布:1

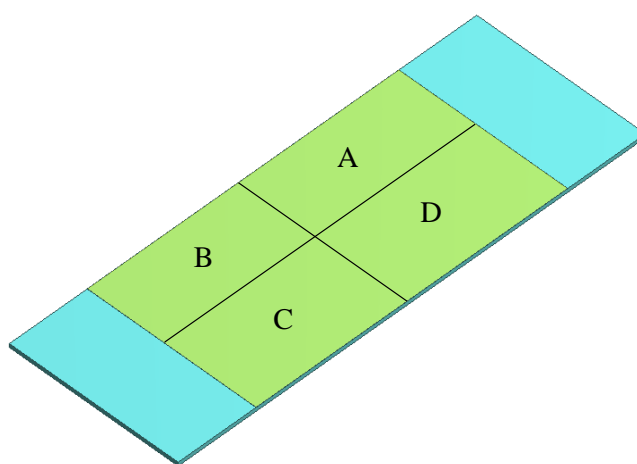
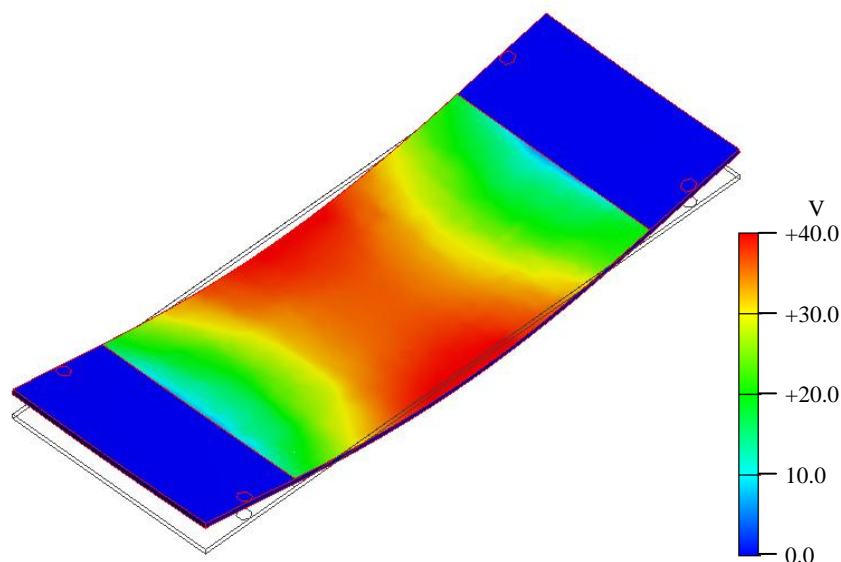


図 4-50. 分割電極

表 4-7. プレートの変形と各電極に現れる電圧の符号

	電極A	電極B	電極C	電極D
曲げ(正)	+	+	+	+
曲げ(負)	-	-	-	-
ねじり(正)	+	-	+	-
ねじり(負)	-	+	-	+

このように現れる電圧の符号（電荷の符号）を認識することで、変形のモードと変形を検出することができる。また、発生する電荷の総量を測定することにより変形の大さを知ることもできる。図 4-51 は図 4-48 に示すモデルにおいて、応力の加わる方向を全て上向きにした場合のシミュレーションの結果である。変形量は各応力ポイントで約 1.5mm である。ねじりの場合に比べて非常に大きな電圧が発生していることが分かる。

図 4-51. PLLA<sub>45</sub> フィルムに対する曲げで発生する電荷

曲げ（延伸方向に対して  $45^\circ$  の方向に伸長・圧縮される変形）により PLLA<sub>45</sub> フィルムに発生する電荷と比較すると、ねじりによる変形では発生電荷が非常に小さいことが分かる。このような小さな電荷は非常に捉えにくく、また実際の構成では両面テープ（粘着剤）の応力緩和により検知電圧がさらに小さくなり変形を確実に捉える事が難しい。

図4-52はプレートをねじった時に PLLA<sub>45</sub> フィルムの表面に現れる応力の分布を表している。青いベクトルは、圧縮方向の応力を表しており、赤いベクトルは伸長方向の応力を表している。矢印の長さは応力の大きさに対応している。この図から PLLA<sub>45</sub> フィルム表面（=プレート表面）では全面に亘ってフィルムの延伸軸と同じ方向（もしくは延伸軸と直交する方向）に応力が生じていることが分かる。1.1.4 項で述べた通り圧電性の原理、もしくは 3.3.2 項で述べた通り圧電性の利用方法から考えると、圧電性 PLLA フィルムは延伸軸に沿う方向に引っ張り応力をかけても電荷を発生しない。従ってこのような応力のかかり方では PLLA<sub>45</sub> フィルムには電荷がほとんど発生しないことが分かる。

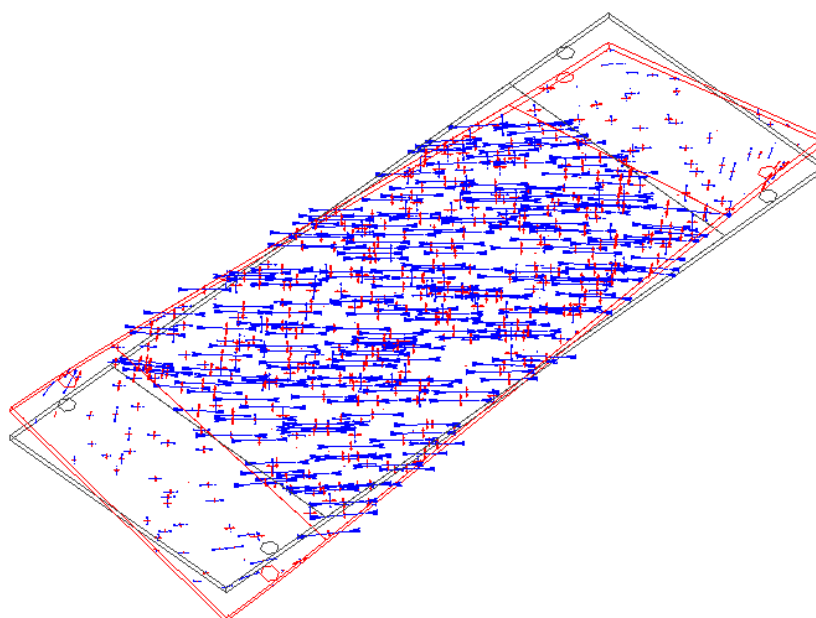


図 4-52. ねじりによるプレート表面の応力の分布



PLLA<sub>45</sub> フィルムを貼り付けたプレートをねじった時に電荷分布を明確に出現させるためには、少なくともプレートの長手方向に沿う応力ベクトルもしくはこれと直交する方向の応力ベクトルが発生するような機構的な工夫が必要である。このような工夫は割合容易であり以下のような方法で実現できる。

図 4-53 は図 4-48 に示したシミュレーションモデルのプレートにおいて、PLLA が貼り付けられていない部分に剛体（アルミ板：厚み 1mm）を貼り付けたプレートの側面図を示している。

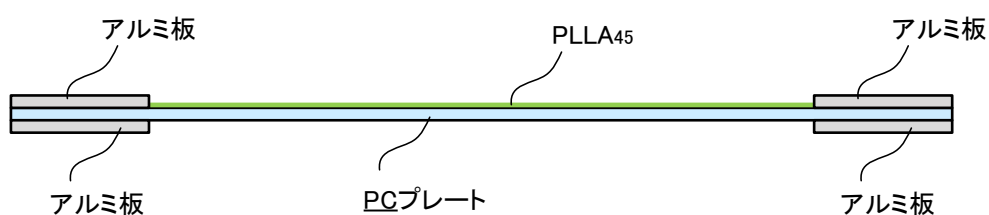


図 4-53. 応力方向を変化させたプレートの側面図

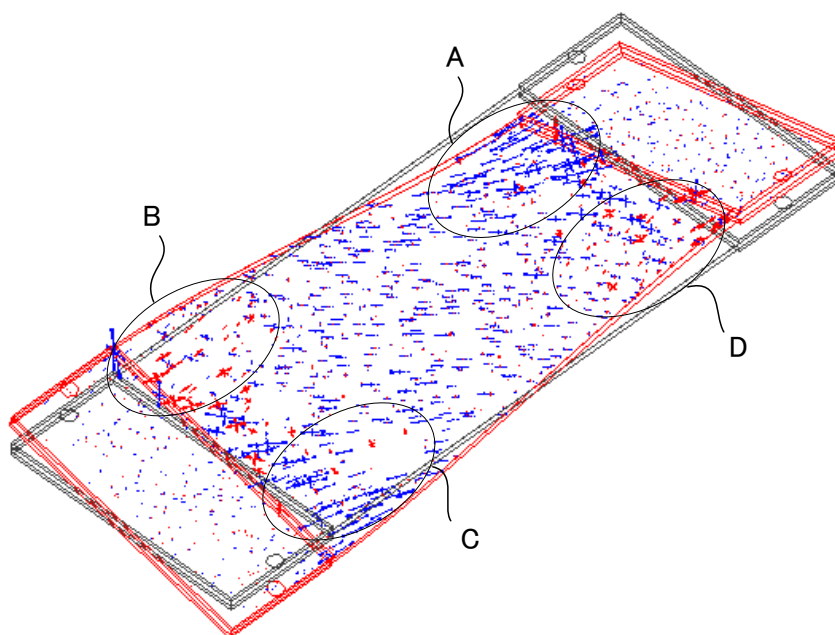


図 4-54. 剛体付きプレートのねじりによるプレート表面の応力の分布

図 4-54はこのプレートをおねじった時に PLLA<sub>45</sub> フィルムの表面に現れる応力の分布を表している。図 4-52 と比較して図示された領域 A, B, C, D で、プレートの側面に沿う方向の成分を持つ応力が現れていることが分かる。また、領域 A, C では圧縮方向の応力が現れているのに対して、領域 B, D では伸長方向の応力が現れていることが分かる。図 4-55 はこの状態で PLLA<sub>45</sub> フィルムの上面の電極に現れる電圧の分布をシミュレーションして示したものである。

図 4-49 の時と比べて電荷が発生する領域は格段に広がり、領域のメリハリもついた。発生電圧の最大値は 46.97V、また最小値は-49.86V となり、曲げの際に発生する電圧と遜色のないものとなっている。発生する電荷の総量は、電荷が発生する領域が曲げの場合に比べて小さいので少なくなる。しかしながら、1mm 程度の小さな変形でもしっかりと電荷が現れており図 4-50 に示す分割電極により変形のモードを確実に捉える事が出来る。変形の大きさに応じて変動する電荷量も大きくなり、積分回路を用いて電荷量を積算することも容易になる。これにより、変形の大きさを知ることができるようになる。

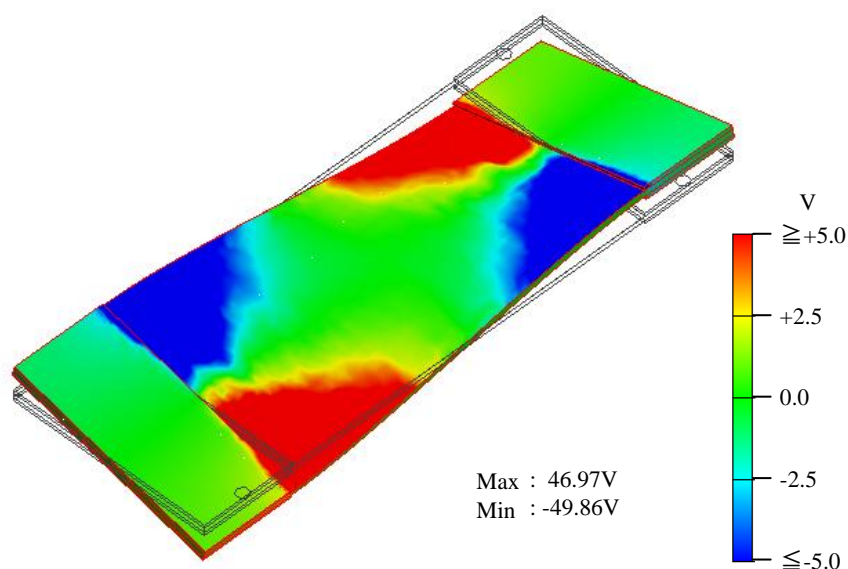


図 4-55. プレートのねじりで PLLA<sub>45</sub> フィルムに発生する電圧の分布:2

### 4.6.3 曲げ・ねじり検知タッチパネル

曲げ・ねじり検知タッチパネルの基本的な電極構成および層構造の模式図を図 4-56 に示す。電極構造は 4.5.2 項、図 4-31 に示した電極 3 層型押圧力検知タッチパネルのものと同様である。ただし、前項で説明したように PLLA<sub>45</sub> フィルムのみで曲げとねじりの双方の変形を捉えるために 3 層目の電極（変形検出用電極 2）は図 4-50 で説明したように 4 つの領域に分割されている。2 層目の電極は分割されておらず、これらに対して共通の基準電位電極となる。TX 電極や RX 電極の分割数は実際にはもっと細かい。表 4.7 のような変形モードとその大きさを捉えるためには必ずしも 4 分割の電極が全て必要ではなく、例えば、領域 A と領域 B、或いは領域 A と領域 D、或いは領域 B と領域 C 等の 2 箇所電極の符号の組み合わせと、電荷量を測定することによっても可能である。

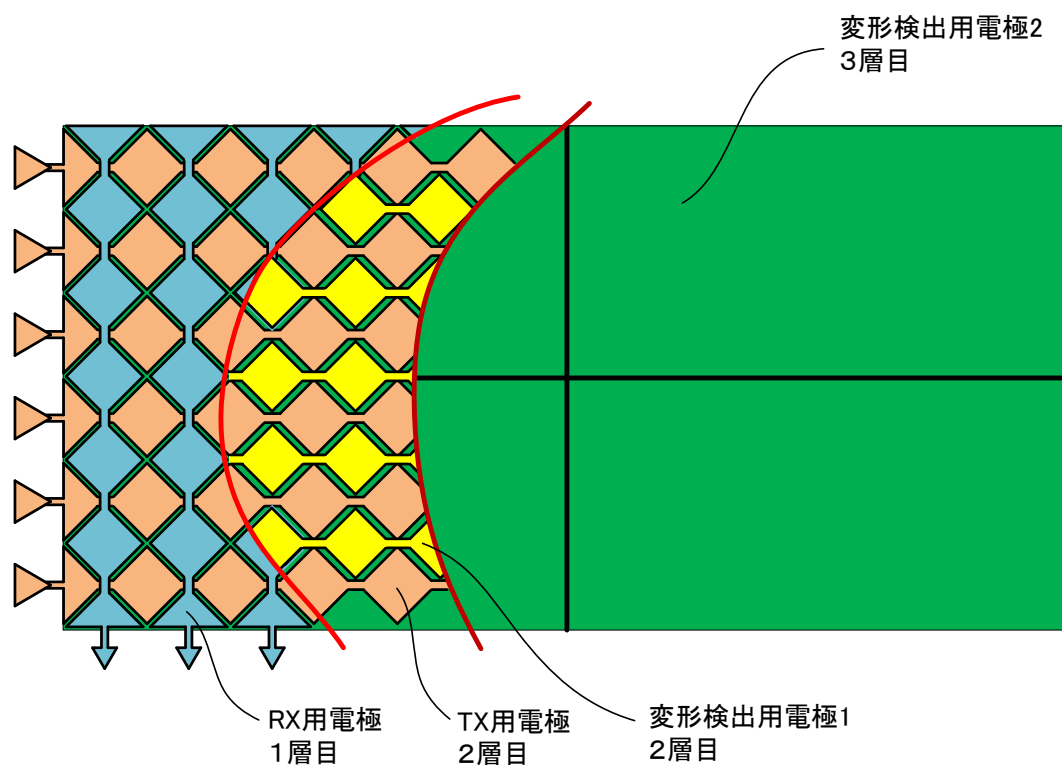


図 4-56. 曲げ・ねじり検知タッチパネルの電極構造



CEATEC JAPAN 2012 展示品 : Leaf Grip Touch-Panel

図 4-57. 曲げ・ねじり検知タッチパネル

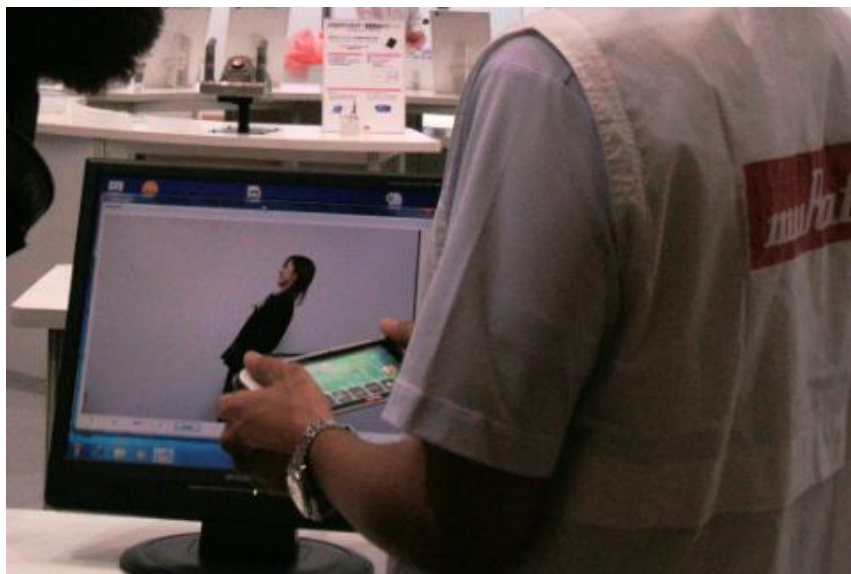


図 4-58. デモンストレーションの様子

図 4-57 は実際に作製した曲げ・ねじり検知タッチパネル（リーフグリップタッチパネル：Leaf Grip Touch-Panel）である。画像の部分は LCD もしくは OLED ではなく、ダミーの写真が入れてある。実際にはここに OLED 等のフレキシブルディスプレイを入れることを前提としている。左側のグリップ部に TSC 等の回路部分が収納されている。図 4-58 はこのデバイスのデモンストレーションの様子である。画像部分をモニタに表示させ、それをリーフグリップタッチパネルで操作をしている（デバイスを曲げたり、ねじったりすると画面の女性の姿勢が変わる）。デモンストレーションとして公開した機能としてはこの他に、画面に写真を表示させておき、タッチパネルをねじることで写真のページを切り替える、タッチパネルを曲げることにより写真を拡大する、或いは縮小する等の機能がある[146]。このタッチパネルは 4.5 節で述べたとおり基本的には PCTP であり、従来のタッチパネルが備える基本的な操作である、フリック、ピンチング等の操作はもちろん可能である。これまでの PCTP の機能を全て備えた上で、タッチパネル自体が曲げとねじりを検出するという画期的なデバイスである。この機能を一体化することについてはデバイスの制御面でも大きな意味がある。曲げ・ねじりを検出する回路部とタッチパネルを制御する TSC は協調して動作するようにされている。PCTP では電極が大きく変形すると電極間の静電容量が変化し、指のタッチがあったと誤検知する場合は頻繁に生じる。タッチパネルを曲げた時、もしくはねじった時に PLLA センサからの変形信号を検知した時点で TSC を休止させることにより、このような誤作動を大幅に減らすことができる。このようなデバイスは今後誕生するフレキシブルデバイスに非常に有用であると考えられる。

## 4.7 本章のまとめ

ポリエステル系樹脂である PLLA は非常に表面が不活性であり、数種の電極を成膜しても実用に耐えうる十分な密着強度が得られない事が分かった。また密着強度改善の有効な手段として知られているプラズマ処理は PLA に対しては有効ではないことが既に報告されている。圧電性 PLLA フィルムをセンサとして用いるためには電極が成膜された他のフィルムを貼り付ける方法が実用的であることを示した。また、この方法を用いて設計した微小変位量検知センサを作製しその特性について検証を行った。

その他の有効なデバイスとして、曲げ・ねじり検知を用いた全くボタンの無い新しいコンセプトの TV リモコンの例を示した。このリモコンには色素増感型光電池を内蔵し、電池交換をも不要とした。このアプリケーションは圧電性 PLLA フィルムの柔軟性、ずり圧電利用による曲げ・ねじりの検知性、光電池との組み合わせ可能な透明性といった圧電性 PLLA フィルムの特徴的な長所を全て利用したものである。

また、スマートフォン等に非常に有効なアプリケーションであると考えられる押圧力検知タッチパネルの例を示した。このタッチパネルは従来の XY 座標を検知する機能に加えて、押しこみ方向の力を検知できるためこれを Z 座標とすれば 3次元タッチパネルという事ができる。現在のスマートフォンやタブレット型 PC では誤作動防止のためや他と差別化できる新しい機能のために押圧力検知が求められることがよくあり、これらの要求に対して非常に有用なデバイスである。

最後に今後到来するフレキシブルデバイス向けのアプリケーションとしてタッチパネル自体が曲げとねじりを検知する機能を持ったデバイスの例を示した。電極層を出来るだけ減らすために、圧電性 PLLA フィルム 1 枚で曲げとねじりの双方を検知できる画期的なデバイスである。

## 第5章 今後の展望

### 5.1 はじめに

ここでは今後の展望として、主に第4章で検討したもの以外の圧電性 PLLA フィルムの応用に関して述べる。最初に、ずり圧電性を直接利用したセンサに関して簡易的な例を示す。また、アクチュエーターとしての利用可能性について現在既に検討されているものについて簡単に紹介する。

PLA (PLLA、PDLA 両方を含む) は巨大な  $d_{33}$  を発現させられるポテンシャルを持っている。この研究を進めていけばセラミックス圧電体と肩を並べる圧電率を持つ PLA フィルムの創出が期待できる。セラミックス圧電体として非常によく用いられている PZT は鉛を含有しており、環境負荷の面から昨今問題視され始めている。PZT の代用として PLA を用いることができれば、例えばそれが部分的なものであっても環境問題を解決の方向に導くことができる。

ここでは、上記に加え PLA の巨大圧電定数発現の可能性と、これを実現するためのマイクロ波を使った分子配向技術に関する初期検討についても述べる。

### 5.2 ずり変形を直接利用したラビングセンサ

第3章において、PLLA を変位センサとして用いるための基本的な構成について述べ、第4章ではその具体的な例を示した。PLLA はその分子構造によって「ずり」という特異的なモードを示す。本論文で示した主な例は、フィルムのカット角を分子の配向方向に対して  $45^\circ$  とすることにより、ずりの変形を圧縮伸長という単純な変形を検知するセンサとして利用し易い形にしたものである。或いは、ねじりという変形はずり圧電と相性がよく、このような変形を正確に検出するのにずり圧電は非常に適していることを示した。これら何れの場合もずり変形を直接的に利用したセンサではない。

圧電性 PLLA フィルムを弛みの無いように2辺で固定し、フィルムの主面に図の矢印のように摩擦力を加えれば、フィルムにはずり変形が生じる。図 5-1 は摩擦力により生じるフィルムのずり変形の様子を示した模式図である。フィルムの分子の配向方向を摩擦力方向に対して垂直な方向（フィルムの長手方向の向き）にしておけば、この変形によりフィルムの両主面には電荷が生じる。生じる電荷の量は変形の度合いによって変化する。また、生じる電荷の符号は摩擦をかける方向によって反転する。従ってこのような構造ではフィルムの面に加わる摩擦力の大きさと方向を検出することが出来る。図 5-1 の例では、摩擦力を加えた部分の左側と右側でずり変形の方法が反転しているため、それぞれの領域で逆符号の電荷を生じる。そのため、このような構造では電極を予め分割しておくか、一方側のみを検知部とする必要がある。

例えば現状のタッチパネルのフリック動作では、ユーザーがタッチパネルを指で擦る速さを検知することは可能であるが、擦る強さを検知することはできない。PLLA のずり圧電をここで示したように用いることにより擦る強さの検知(ラビング検知)を可能にすることができる。このような検知は、圧電性 PLLA フィルムのずり変形を直接捉えることが出来るため、極めて感度のよいセンサとすることができると考えられる。フィルムの変形量は僅か数百～数十 nm オーダーでも検知できる可能性がある。結果的にフィルムサイズを非常に小さくできる可能性もある。

図 5-2 はフィルムの端面に摩擦力を加えた場合の例である。このような構造においてもずり変形が発生するためにラビング検知が可能である。実際の使用の際にはフィルムをこのような形で自立させられないため、ゴム状のもので挟み込んでその断面を擦るような構造が考えられる。

ラビング検知はフィルムに直接働きかける場合が多いと考えられ、摩擦によるフィルムの摩耗や、局所的な伸びによるフィルムの変形に十分留意する必要がある。このような懸念点に対して効果的な対策が取ればラビング検知は HMI の新しい操作方法として十分に価値のあるものとする事ができると考えられる。



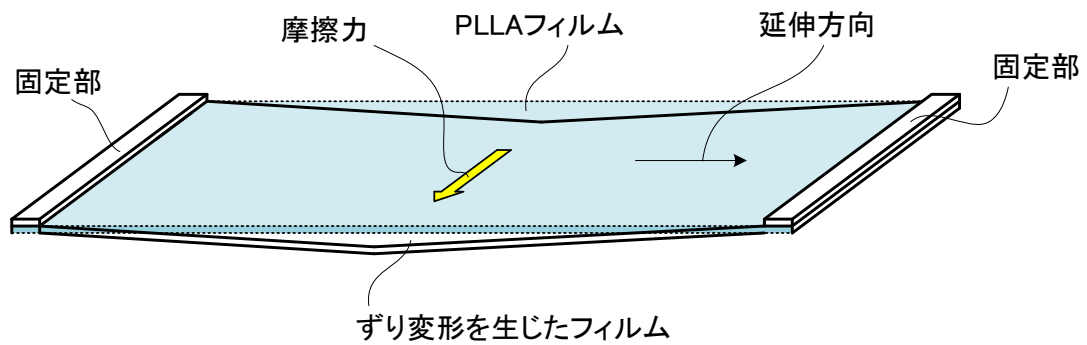


図 5-1. 摩擦力により生じるフィルムのずり変形

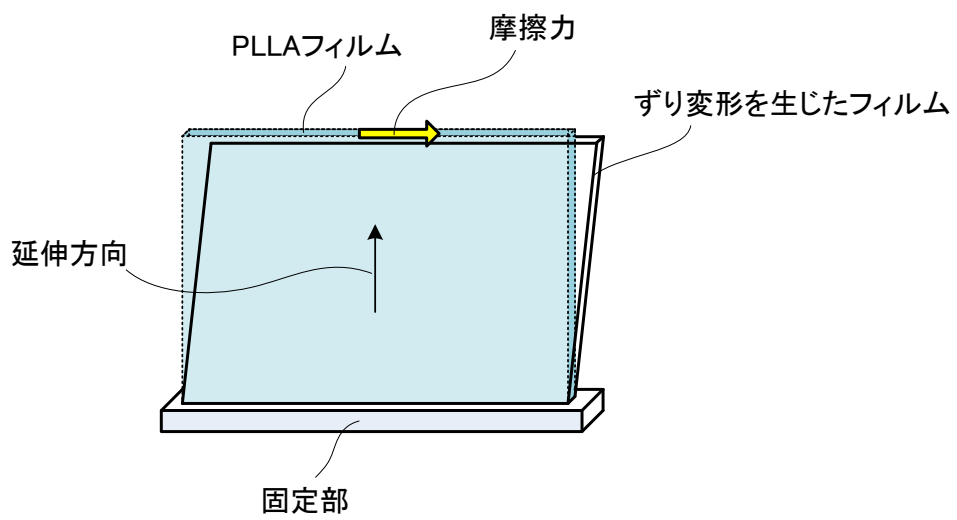


図 5-2. フィルム端面の擦りによるずり変形

### 5.3 PLLA のアクチュエーター利用

開発した圧電性 PLLA フィルムの圧電率は市販の圧電性 PVDF フィルムと比較すると約 1/6 ( $d_{31}$  換算) しかない。アクチュエーターへの応用としては、そのままでは PVDF には及ばない。PLLA の圧電定数は、配向度と結晶化度を高めれば、現在より幾分高められると考えられる。しかしながら、PVDF と同程度の圧電率を目指すとなると、かなりの困難性を伴うと予想される。圧電定数  $d_{14}=6\sim 10\text{pC/N}$  程度で膜厚が数  $\mu\text{m}$  程度の圧電性 PLLA フィルムと圧電性 PDLA フィルムを交互に多数積層し、見かけ上の圧電率を高めて PVDF を凌駕する特性を得るという研究が既に吉田らにより行われている [72]。この研究では既に実績として PVDF の圧電率を上回る値が得られている。しかしながら薄膜状のフィルムと電極を交互に積層し、さらに多層化された電極を交互に繋ぎ合わせる必要があり、この構造を低コストで実現する工法がまだ確立していない。また耐久性に関する評価を今後長期間に亘って行っていく必要がある。

PLA の素材そのものの値段は PVDF と比較すると圧倒的に安いとため、低コストで自然に優しいフィルム式アクチュエーターとして期待される技術である。

これとは全く異なるアクチュエーターへの応用として、圧電性 PLLA フィルムのずり圧電による変位と、そのフィルム自体の共振特性による変位を組み合わせることでフィルムの端面にレイリー波を形成し、このレイリー波で別の物体を動かそうという試みが田實らにより行われている [147]。円筒や矩形状の振動体を圧電性 PLLA フィルムで作製し、この振動体の固有物性に基づく信号をフィルムの電極に印加すると端面にレイリー波を生じ、物体を動かしたり回転させたりすることができる。このアクチュエーターは PLLA のずり圧電性を実にうまく応用したものであり、非常に強い力が出せる。回転方向や速度はアクチュエーターに入力する信号の周波数、強度、波の種類でコントロール可能である。例えば円筒状に作製したアクチュエーターの端部ではボールを回転させることができる。電極を有機電極で構成すれば全く金属を使わない有機モーターを創出することも可能である。

## 5.4 PLAの巨大圧電定数発現の可能性

### 5.4.1 巨大圧電定数発現の原理

第1章において、PLLAの結晶構造、その高次構造、および圧電性発現のメカニズムについて解説を行った。式(1-2)には圧電テンソルとして $d_{36}$ 成分が存在するが、一軸延伸フィルムの圧電テンソルを示す式(1-3)では $d_{36}$ 成分が0となっている。PLLAの一軸延伸フィルムでは、延伸軸方向に沿って（第3軸方向）に無限大軸が存在し、一軸配向PLLAフィルムのマクロな対称性を表す点群は $D_{\infty}$ となる。 $d_{36}$ は垂直な鏡面の存在により見かけ上消失してしまう。

PLLAはらせん分子であり、主にカルボニル基(CO)が持つ電気双極子が外部からの応力や電場により僅かに回転し、これによりずり圧電性が生じていることは第1章で既に説明した。この電気双極子をらせん分子内で合計すると、らせん軸に沿って非常に大きな電気双極子（らせん軸電気双極子）が存在することとなる。図5-3はらせん軸電気双極子を模式的に示した図である。螺旋分子に付した小さな矢印はカルボニル基が持つ電気双極子である（図1-11参照）。

一軸延伸フィルムでは延伸軸に沿って、らせん軸が向くように分子が配向する。この時、らせん軸電気双極子の方向は、エネルギー的に安定するように隣り合う分子同士でおよそ逆方向に向いて配列される。マクロ的に見ると巨大ならせん軸電気双極子は主に隣り合う分子同士で打ち消され、消失しているように見える。これが、 $d_{36}$ が消失している原因である。このらせん軸電気双極子の

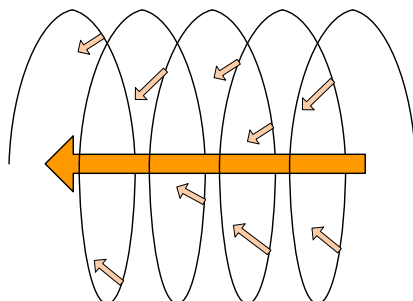


図5-3. らせん軸電気双極子

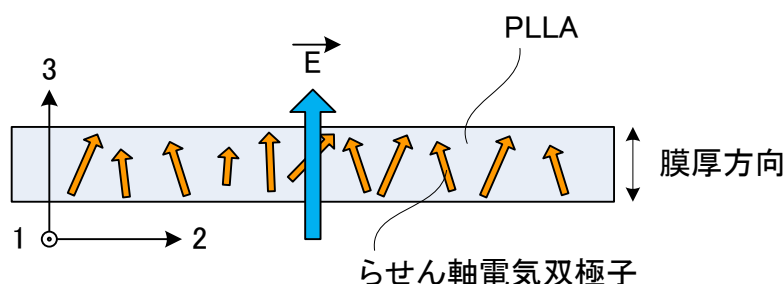


図 5-4. らせん軸電気双極子の配向方向と電場

向きを揃え、できるだけ膜厚方向に向かって配向させたものに対して膜厚方向に電場をかけると、巨大ならせん軸電気双極子が直接電場の作用を受けて巨大な  $d_{33}$  が発現すると考えられる。図 5-4 は PLLA 分子のらせん軸を電気双極子の向きが揃うように膜厚方向に立てたことを想定したフィルムの断面の模式図である。分子は必ずしも PLLA である必要はなく、PDLA でもよい。また、PLLA と PDLA が混合されたステレオコンプレックスフィルムでも圧電定数の発現が可能であると考えられる。このような試みは、物理的方法、化学的方法含め過去に行われたようであるが、現状工業的に利用可能なものとはなっていない [148, 149]。

#### 5.4.2 圧電定数の見積もり

ここでは、らせん軸電気双極子を膜厚方向に理想的に配向させたと仮定したときの圧電定数を大まかな仮定の元に算出する。

1.1.4 項で述べたように PLLA 分子は 10 モノマーで 3 周期を形成する 10/3 構造となっている (図 1-6 参照)。このとき、らせん軸方向の双極子の大きさは 1 周期当たり 3.5~3.7 debye と計算される。通常 PLLA の分子は、その分子量が数十万程度であり、およそ 1000~3000 周期により構成されている。今、これを 2000 周期と仮定し、また 1 周期当たりの双極子の大きさを 3.6 debye と仮定する。また、これが伸びきり鎖となって配向している長さを 100nm (通常のラメラ結晶の厚み程度) と仮定する。

このときの分子の双極子の合計は、 $3.6 \times 2000 = 7200 \text{ debye}$  となる。ここで、 $1 \text{ debye} = 3.336 \times 10^{-30} \text{ C} \cdot \text{m}$  なので  $7200 \text{ debye} = 2.4 \times 10^{-26} \text{ C} \cdot \text{m}$  となる。

2本の分子鎖が配向して平行に並んでいるとすれば、これらの分子は PLLA のらせん半径付近まで近接して結晶化する。この距離は  $0.4 \sim 0.8 \text{ nm}$  と推定される。分子間の距離を  $0.6 \text{ nm}$  と仮定し、 $0.6 \times 0.6 \text{ nm}$  の領域に分布的に2本の分子鎖がパッキングされていると仮定すると、このときの分極率  $P_s$  ( $\text{C}/\text{m}^2$ ) は以下のように計算される。

$$P_s = \frac{2 \times 2.4 \times 10^{-26}}{0.6 \times 10^{-9} \times 0.6 \times 10^{-9} \times 100 \times 10^{-9}} = 1.3 \quad (5-1)$$

マクロ的なポリマーの圧電応力定数  $e_{31}$  は、分極率  $P_s$  とポアソン比  $\rho_{21}$  を用いて以下のように近似的に表すことができる (PVDF の座標系で設定)。

$$e_{31} \cong (1 - \rho_{21}) P_s \quad (5-2)$$

通常の固体の場合一般的に  $\rho_{21}$  はおよそ  $0.3$  として差し支えが無い。よって式(5-2)は式(5-3)と表せる。

$$e_{31} = 0.7 P_s \quad (5-3)$$

式(5-3)に式(5-1)の結果を代入して計算すると  $e_{31} = 0.91$  となる。弾性コンプライアンスを  $s$  としたとき、圧電歪定数  $d_{31}$  と圧電応力定数  $e_{31}$  は以下の関係がある。

$$d_{31} = s \cdot e_{31} \quad (5-4)$$

このような結晶の弾性コンプライアンスは明らかになっていない。仮にこれ

を  $1\text{E-}9\text{m}^2/\text{N}$  と仮定すると、 $d_{31} \doteq 1000\text{pC}/\text{N}$  となる。一般的に  $d_{33}$  と  $d_{31}$  の間には式(5-5)のような関係式が使われることが多い。

$$d_{33} \cong 2d_{31} \quad (5-5)$$

式(5-5)から  $d_{33} \doteq 2000\text{pC}/\text{N}$  と見積もることができる。ここでは多くの仮定を用いているため、この値の確度については不正確な部分が多い。現時点では十分な実証データが得られていないため、これについての議論は今後の研究の結果に委ねることとする。この計算結果に基づくと、仮に分子を完全に配向できれば、オーダー的に見て圧電定数 ( $d_{33}$ ) が数千  $\text{pC}/\text{N}$  もの値を持つ可能性の示唆と捉えることができる。しかしながら完全な配向はエネルギー的に見て非常に不安定であり、完全に配向させることは極めて困難であると考えられる。また分子はある程度折りたたまれるため、この部分ではらせん軸電気双極子の向きが反転し、打ち消しが生じる。仮に完全配向状態に対して 10% の配向がなされたとすれば数百  $\text{pC}/\text{N}$  のレベルの圧電定数を得られるということになる。もう少し低く見積もっても数十  $\text{pC}/\text{N}$  レベルの圧電定数を得られる可能性は十分にありとされる [148]。

#### 5.4.3 マイクロ波を用いた分子の配向制御

分子を配向させるためには、まず分子を動ける状態にする必要がある。分子を動く状態にするためには溶媒に高分子を溶かす方法、熱を加えて分子を動き易くする方法等がとられる。その後、前記の状態に合わせて、機械的な作用（延伸）、電場や磁場の作用、化学的な作用、或いはこれらの作用を組み合わせる分子を配向する方法が知られている [73, 74, 149]。

分子を動く状態にするには、工業的には熱を加える方法が簡便である。PLLA フィルムに対し、広範囲に亘って分子が自由に動ける程度の熱を加えると、無配向な球晶を形成することが分かっており、らせん軸電気双極子を配向させることが困難となる。フィルムの熱伝導性は高くないためヒーター等を用いての

フィルムの加熱は時間がかかる。また加熱範囲も広範囲に亘るため球晶を生じやすい。これが全ての原因ではないと考えられるが、このような方法による過去の検討では、らせん軸電気双極子の配向の結果は得られていない。

電子レンジによる加熱方式として一般的によく知られているように、マイクロ波によって水分子に直接振動を加えて物体を加熱することができる。高分子フィルムに対しても同様にマイクロ波による加熱が可能である。マイクロ波による加熱は急速であり、局所的に加えることができる。またフィルムに対してのマイクロ波の印加を直接金属端子で行えば、マイクロ波と直流電場を同時に印加することが可能である。さらに、分子がマイクロ波で直接、強制的に振動させられることにより、局所的な結晶状態が破壊されて動きやすくなると考えられる。分子が強制的に振動させられている状態で強い直流電場が印加されると、この電場の作用を受けてらせん軸電気双極子が電場の向きに配向することが考えられる。前述したようにこのような処理は局所的に急速に行われるため、PLLA の球晶の成長に先んじて行える可能性がある。

マイクロ波加熱配向装置の回路ブロック図を図 5-5 に示す。マイクロ波が伝送される経路に PLLA が挿入された処理部（コンデンサ）が存在する。マイク

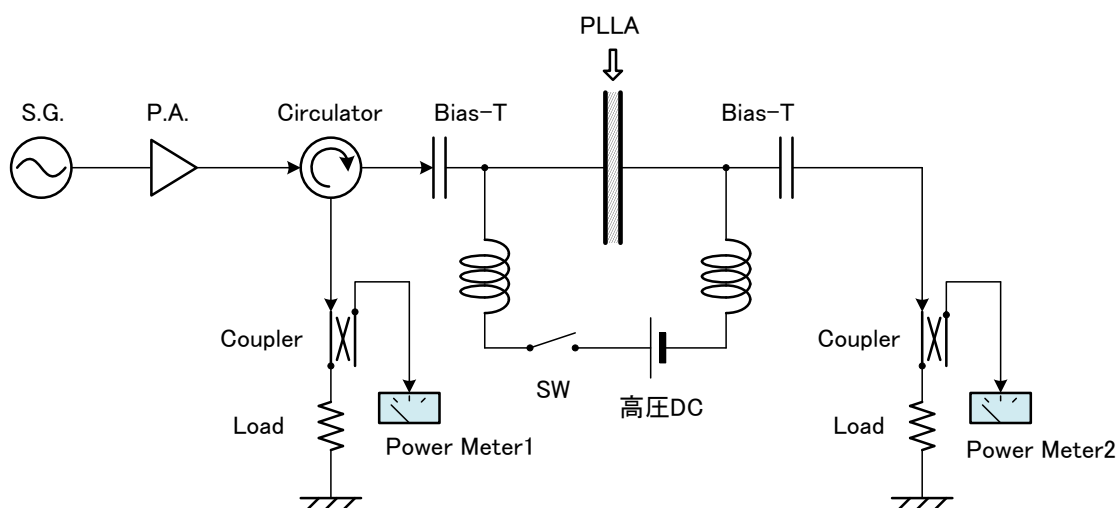


図 5-5. マイクロ波加熱配向装置回路

ロ波はコンデンサを通過するため、PLLA に電場が印加される。PowerMeter1 は処理部からの反射電力を監視しており、この反射電力が最小となるように処理部のインピーダンスを調整する。実際に使用する処理部は単純なコンデンサのみではなく、分布定数回路で形成された空洞共振器や空洞半同軸共振器を用い、パワーアンプ (P.A.) から出力されるマイクロ波電力で形成される交番電場を、共振作用により数十～数百倍に増幅して PLLA に印加する。

#### 5.4.4 実験結果

マイクロ波による加熱を起り易くするために処理部はヒーターを有し、PLLA のガラス転移点近くの  $60^{\circ}\text{C}$  に予熱されている。処理部は4段の空洞半同軸フィルタを用いており、レゾネータの根元にギャップを形成し、ここに直径  $0.4\text{mm}$  のピンを100本並べて、PLLA フィルムを挟み込む構造とした。従って、この装置で処理された各々の部分は直径  $0.4\text{mm}$  の微小な領域である。図5-6 は処理部として作製した空洞半同軸フィルタの断面の模式図である。また、図5-7 に実際の処理部内部の写真を示す。

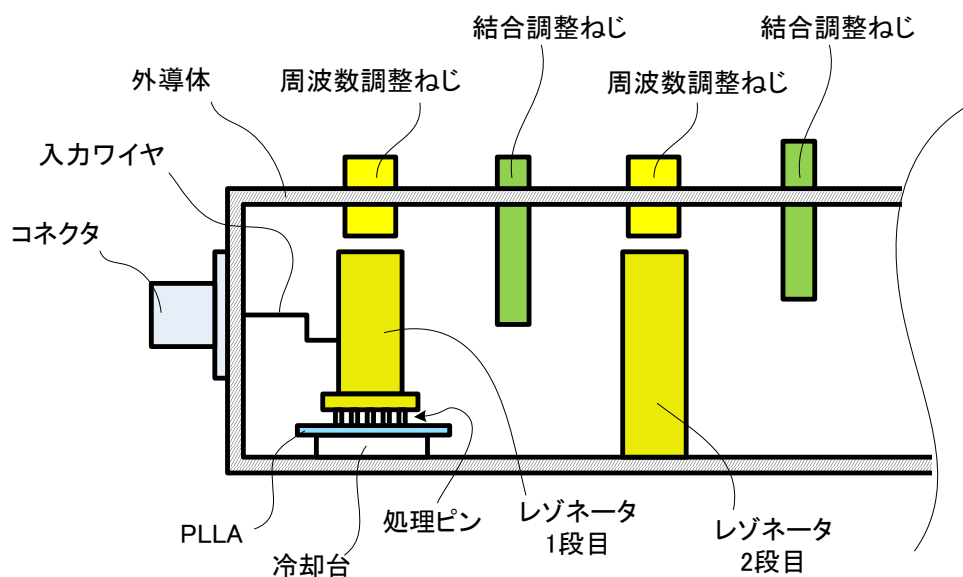


図 5-6. 処理部断面



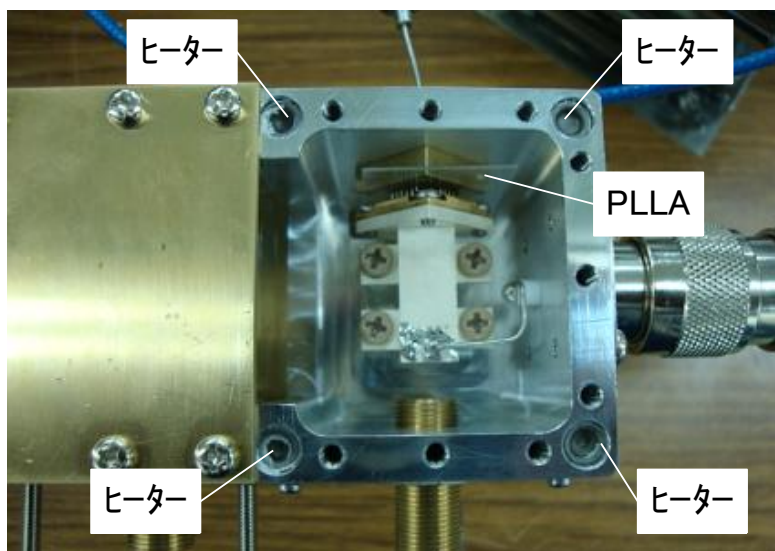


図 5-7. 半同軸空洞共振器を用いた PLLA 処理部

表 5-1. 実験結果

試料	マイクロ波	直流電場	圧電定数( $d_{33}$ )
A	印加せず	印加せず	8~9 pm/V
B	2.45GHz, 70W	印加せず	-8~-3 pm/V
C	2.45GHz, 70W	1kV, 2min	42~57 pm/V

FEM シミュレーションによれば 70W の投入電力によって、PLLA フィルムにはおよそ 70~90MV/m の電場が印加されていることになる。

表 5-1 にマイクロ波加熱配向装置を用いた初期的な実験結果を示す。圧電定数の測定は AFM を使用して行った。PLLA は圧電定数として  $d_{33}$  の成分を持たないが、マイクロ波と直流電場を同時に印加した試料 C において大きな値が確認された。本来試料 A, B では全く圧電定数が観測されない筈であるが、値が観測されているのは AFM による圧電定数測定による誤差と考えられる。従っ

てこの測定には±9pm/V程度の不正確さが内在していると考えられる。

この結果から、マイクロ波印加による配向手法により、厚み方向にらせん軸電気双極子を配向させられる可能性があることが示唆された。AFMによる圧電定数の測定に関しては疑義も残るが、今後実験を進めることによりこの点を明らかにしていきたい。

## 5.5 本章のまとめ

圧電性 PLLA フィルムのセンサ利用に関して、ずり圧電性を直接利用するラビング検知が可能であるということを示した。HMIとして指で擦った強さを検知するようなセンサデバイスは今のところ登場しておらず、タッチパネルを搭載した携帯機器だけではなく、据え置き型の家電製品に対しても新たな操作方法の創出が期待できる。このような操作方法に対しても焦電性が無いということは非常に大きなメリットなるであろう。

また、アクチュエーターへの利用という観点では、PLLA フィルムと PDLA フィルムの積層体を用いることで、PVDF フィルムの圧電特性に近い素子が開発されつつあり今後の開発の進展に大いに期待できる。

また、レイリー波を用いたアクチュエーションデバイスは、PLLAのずり圧電性を非常に巧妙に使ったものであり、全く金属を使用しないモーターの創出が期待できる優れた技術である。

PLLA分子のらせん軸電気双極子を膜厚方向に配向できれば、巨大な圧電定数 ( $d_{33}$ ) を持つ圧電フィルムを創出できる可能性があることを示した。マイクロ波を用いた配向手法による初期的な実験結果において、既に PVDF と同等の圧電定数が得られており、今後の開発の進展が非常に期待できる。PZTの圧電特性に近い有機圧電フィルムの誕生は、これまでからすればまるで夢のような技術であり、応用できるアプリケーションの広がりや想像をはるかに超えるものとなるであろう。

## 第6章 結論

新しい HMI の創出を目指した PLLA の工業的利用に関して種々の検討を行った。ここで検討した PLLA の特徴を活かしたデバイスを提案し、現在市場での採用に向けて具体的な検討が開始されつつある。

第1章では、序論として、近年のデバイスの構成の大きなターニングポイントとなった HMI の変遷とその理由について触れ、今後の HMI 開発において重要なキーワードと、それに対して有機圧電フィルムが有効であることを示した。また、有機圧電フィルムとして PLLA は特に可能性の高い材料であること明確にするために他の有機圧電体との比較を行った。産業界での PLLA 研究の歴史を紐解くために生分解性プラスチックとしての PLLA 研究に触れた。最後に、PLLA の圧電性に関して、その結晶構造に基づいて解説を加え、基礎的検討としてまとめた。

第2章では、圧電性 PLLA フィルムの工業化に関する検討として、まず PLLA フィルムの示差走査熱量測定の結果に考察を加え、PLLA の製造工程での延伸倍率に関する方針を立てた。次に、圧電性を決定づけるための特性要因を検討し、実際のフィルム製造工程において詳細な検討を行った。これに基づいて PLLA の実力を把握し、実際の市場要求を満足させるための目標特性を決定した。また、その目標特性を満足するための実験データを示し、その結果に基づいて決定された処方により作成された PLLA を用いて各種の耐久試験を行った結果を示した。圧電性 PLLA フィルムの工業化に向けての課題として、圧電定数を正確に測定し管理する必要がある。フィルムの圧電定数測定に関し、十分な測定精度を持ち、安定して測定できる装置を検討した。これに基づき、実際に測定システムを構築し、その装置の実力を見極めた。

第3章では、圧電性 PLLA がセンサ用途において優れている点を列挙し、それぞれに関して詳しい検討を加えた。最初に焦電効果による電荷が発生しない点を実験により明らかにし、フィルムの線膨張による見かけ上の焦電性の発生もなく HMI としての実用上問題がないことを示した。次にずり圧電性の利点

とその使い方について解説を行い、PLLAがPVDFよりも優れている点について明らかにした。また、PLLAセンサが曲げとねじりという2つのモードを独立して捉えられるセンサであるということを示した。次に低誘電率性による利点としてセンシング感度が高いことを明らかにし、変位センサとして用いた場合の応力と出力の関係式を導出した。次に透明性に関しての調査を行った。分光光度計を用いて透過率の詳細な測定を行い、圧電性 PLLA フィルムの色度、消衰係数等を明らかにした。次に、日本工業規格 (JIS) に則った実際の測定により、弾性定数、降伏応力等の機械的物性を明らかにし、変位センサとしての実使用上、強度的に全く問題のないことを示した。最後に圧電率、弾性率に関する温度特性評価を行い、現状作成したフィルム自体が温度特性的に非常に優れていること示した。

第4章では、応用アプリケーションの検討として、まず圧電性 PLLA をセンサとして構成するために必要な電極の構成方法に関して検討を行った。次にこの検討結果に基づき、コスト、量産性を考慮した微小変位量検知センサの基本設計について示した。また、このセンサから発生する微小な電荷を確実に捉える検知回路を示した。力の加わり方に対する圧電体の反応と、さらに検知回路からの出力信号の関係について解説を加えた。ここで設計した微小変位量検知センサを数百個レベルで試作し、その測定結果を掲載してこのセンサが安定して機能することを示した。次に曲げ・ねじりのセンシング機能を生かしたアプリケーションについての提案を行った。具体的にはボタンが全くなく、直感的に操作できる TV リモコンの試作例を示した。これは色素増感型の光電池を利用した電力供給システムを内蔵した TV リモコンであり、このために開発したフレキシビリティのある色素増感型光電池の試作結果についても同時に示した。さらに、他のアプリケーションの例としてタッチパネルに圧電性 PLLA を組み込んだ、新機能付きタッチパネルの提案を行った。具体的には、圧電性 PLLA を用いて押圧力検知機能を付加した投影型静電容量方式のタッチパネルの例を示した。これは圧電性 PLLA の非焦電性、透明性が非常に良く活かされるデバイスであり、透明電極層を極力減らすような電極設計、および検知感度を高め

るための電極設計に関しても言及した。また、押圧レベル検知のための積分回路及び、動作アルゴリズムについても示した。実際にスマートフォン型の模擬筐体を作製して押圧力検知タッチパネルを組み込み、反応の分布を測定しこの結果を示した。最後にフレキシブルデバイスに対応したタッチパネルとして、曲げやねじりといった動作をタッチパネルそのものが検出するデバイスの提案を行った。電極の積層数を減らすために、圧電性 PLLA フィルムを一枚だけ使用して、曲げとねじりの双方の動作を検知できる電極構成に関して解説を行った。

第5章では、今後の展望として、最初に圧電性 PLLA フィルムのセンサ応用に関して、前章までに言及しなかったずり変形を直接検知するラビングセンサの方式について示した。次にアクチュエーターへの応用として既に検討されている例を紹介した。この技術を発展させることにより PVDF より低コストのフィルムアクチュエーターや、全く金属を使わない有機モーターを創出できる可能性があることに言及した。最後に PLA が超巨大な圧電率を発現させられるポテンシャルを持つ材料であることを示した。特殊な分子配向を行うことにより、この巨大な圧電定数を発現させることができるという原理を示した。また、圧電定数がどれぐらいの大きさになるかを複数の仮定のもとに算出した。さらにこの分子配向を達成するための手段としてマイクロ波を用いた配向方法を提案し、初期的な実験結果を示した。

PLLA の性能を電気工学的分野において工業的に利用できるまで高めたことにより、センサ応用としての可能性が大きく広がった。PLLA は新しい HMI の創出において非常に有益な材料であり、今後開発される携帯機器、家電製品、自動車向け電子機器等において全く新しい機能の登場を予感させる楽しい材料であるとも言える。また、材料特性についても今後大きな改善の可能性があり、アプリケーション開発と併せて材料特性改善の研究が連綿と続いていくことに期待する。

(余白)

## 付録 (appendix)

### apdx 1 圧電定数の座標変換

#### apdx 1.1 歪みの定義

歪みの定義を図示すると以下のようになる。

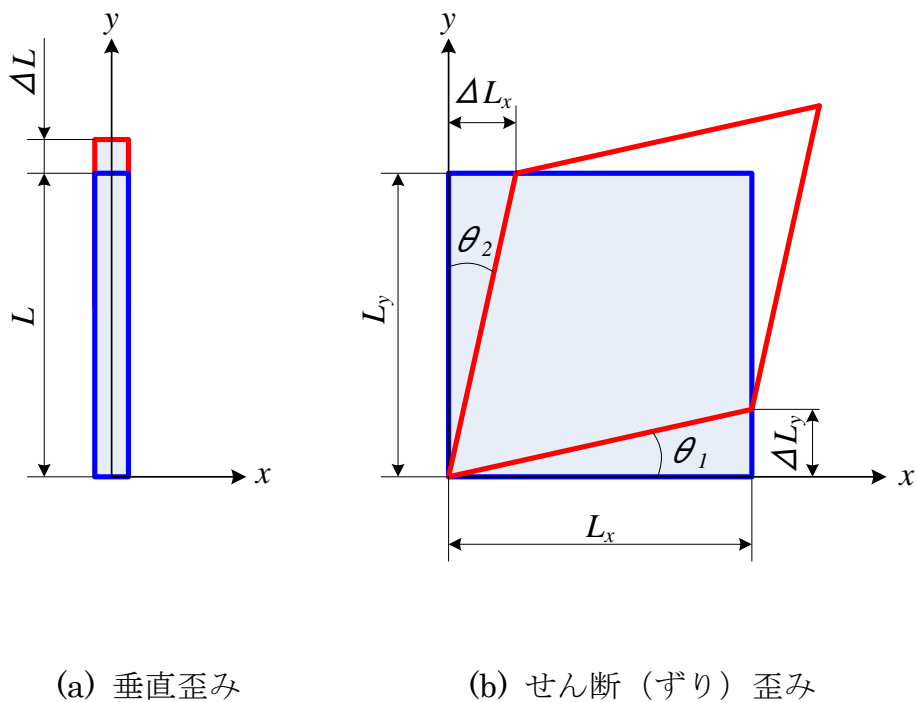


図 apdx1-1. 歪みの定義

図 apdx1-1.(a)において垂直歪みを  $S_y$  とすると、 $S_y$  は式(apdx1-1)のように定義される[150]。

$$S_y = \frac{\Delta L}{L} \quad (\text{apdx1-1})$$

同様に、図 apdx1-1.(b)においてせん断歪みを  $S_{xy}$  とすると、 $S_{xy}$  は式(apdx1-2)のように定義される[150]。

$$S_{xy} = \tan\theta_1 + \tan\theta_2 = \frac{\Delta L_y}{L_x} + \frac{\Delta L_x}{L_y} \quad (\text{apdx1-2})$$

ここで、各方向の歪みをそれぞれ以下のように定義する。

$x$  方向の垂直歪み： $S_x$

$y$  方向の垂直歪み： $S_y$

$z$  方向の垂直歪み： $S_z$

$xy$  方向のせん断歪み： $S_{xy}$

$yz$  方向のせん断歪み： $S_{yz}$

$zx$  方向のせん断歪み： $S_{zx}$

微小変位を考えた時、各方向の歪みは以下のように定義される[150]。(工学の定義による歪み表記)

$$S_x = \frac{\partial u_x}{\partial x} \quad (\text{apdx1-3})$$

$$S_y = \frac{\partial u_y}{\partial y} \quad (\text{apdx1-4})$$

$$S_z = \frac{\partial u_z}{\partial z} \quad (\text{apdx1-5})$$

$$S_{xy} = \frac{\partial u_x}{\partial y} + \frac{\partial u_y}{\partial x} \quad (\text{apdx1-6})$$

$$S_{yz} = \frac{\partial u_y}{\partial z} + \frac{\partial u_z}{\partial y} \quad (\text{apdx1-7})$$

$$S_{zx} = \frac{\partial u_z}{\partial x} + \frac{\partial u_x}{\partial z} \quad (\text{apdx1-8})$$



### apdx 1.2 圧電性 PLLA の圧電定数の変換

図 apdx1-1.(b)に  $z$  軸を加えて 3次元とし、 $xy$  平面に PLLA フィルムを配置し、各軸を  $x \rightarrow 2, y \rightarrow 3, z \rightarrow 1$  と表して図示すると以下のようなになる。

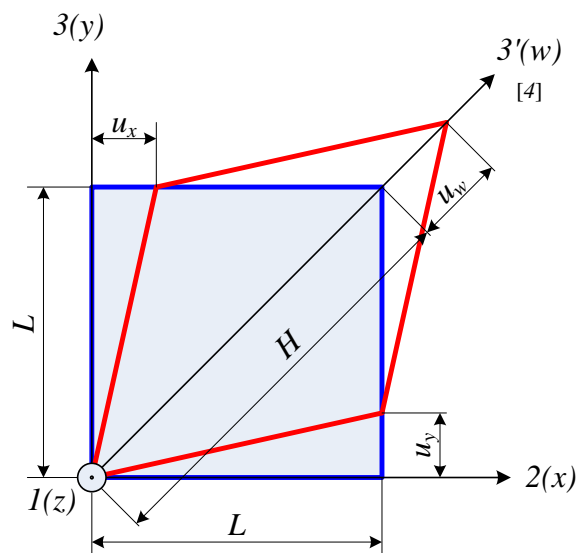


図 apdx1-2. PLLA のずり歪みの定義

2-3 方向の歪み成分は式(apdx1-6)から式(apdx1-9)のように表せる。

$$S_{23} = S_{xy} = \frac{\partial u_x}{\partial y} + \frac{\partial u_y}{\partial x} \quad (\text{apdx1-9})$$

今、PLLA フィルムが圧電定数  $d_{14}$  を持ち、1 軸方向に電場  $E_1$  が加えられたときの歪みは式(apdx1-10)のように表せる。

$$S_{23} = d_{14} \cdot E_1 \quad (\text{apdx1-10})$$

3軸を 3' 軸系に変換すればこの方向の歪みは、式(apdx1-3)を参考にすれば、式(apdx1-11)のように表せる。

$$S_{3'} = S_w = \frac{\partial u_w}{\partial w} \quad (\text{apdx1-11})$$

このとき 3' 軸系で新たな圧電定数  $d_{13'}$  を定義し、1軸方向に電場  $E_1$  が加えられたときの歪みは式(apdx1-12)のように表せる。

$$S_{3'} = d_{13'} \cdot E_1 \quad (\text{apdx1-12})$$

ここで、 $H = \sqrt{2}L$ ,  $u_w = \sqrt{2}u_x$  なので、

$$\frac{u_x}{L} = \frac{u_y}{L} = \frac{u_w}{H} \quad (\text{apdx1-13})$$

よって、

$$\frac{\partial u_x}{\partial y} = \frac{\partial u_y}{\partial x} = \frac{\partial u_w}{\partial w} \quad (\text{apdx1-14})$$

となる。

式(apdx1-9), (apdx1-10), (apdx1-14)から、

$$d_{14} \cdot E_1 = 2 \frac{\partial u_w}{\partial w} \quad (\text{apdx1-15})$$

また、式(apdx1-11), (apdx1-12)から、

$$d_{13'} \cdot E_1 = \frac{\partial u_w}{\partial w} \quad (\text{apdx1-16})$$

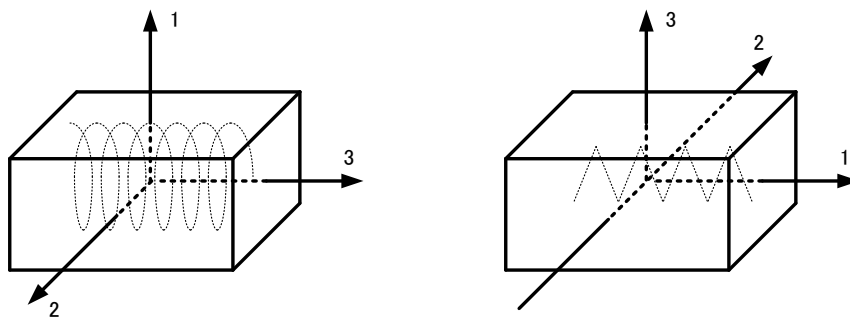
となる。

よって、式(apdx1-15), (apdx1-16)から式(apdx1-17)を得る。

$$d_{14} = 2d_{13'} \quad (\text{apdx1-17})$$

図 apdx1-3は PLLA に対する座標の設定と PVDF に対する座標の設定である。PZT に対する座標の設定は PVDF のそれと同じである。PLLA の座標軸の 1 軸を 3 軸、3' 軸を 1 軸に変換し PVDF の座標設定に変換して表すと、結局以下のように書ける。この場合 PLLA の配向方向は 1-2 方向となる。

$$d_{14} = 2d_{31} \quad (\text{apdx1-18})$$



(a) PLLA に対する座標設定

(b) PVDF に対する座標設定

図 apdx1-3. 各圧電性ポリマーに対する座標設定

## apdx 2 断面 2 次モーメント

図 *apdx2-1* に図心を基準とした任意断面を示す。また、図 *apdx2-1* に図心が回転軸からずれた位置にある任意断面を示す。

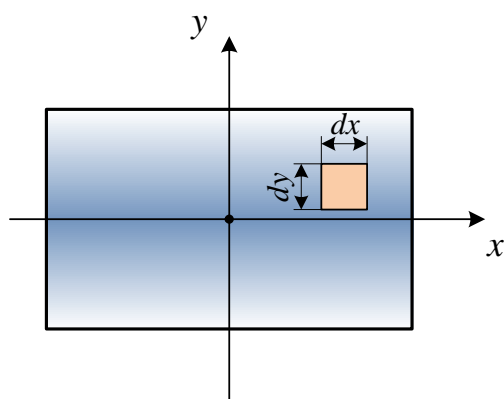


図 *apdx2-1*. 図心を基準とした任意断面

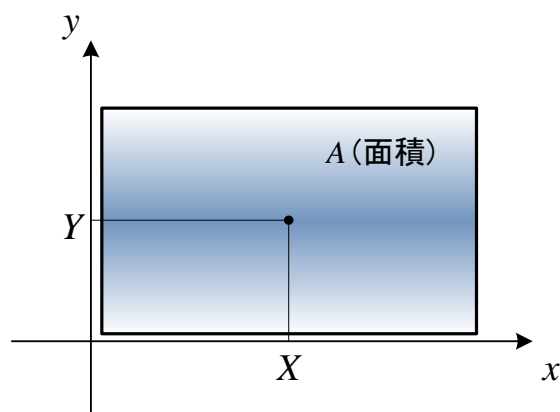


図 *apdx2-2*. 図心が回転軸からずれた位置にある任意断面

図 *apdx2-1* において、 $x$  軸周りの断面二次モーメントを  $I_x$ 、 $y$  軸周りの断面二次モーメントを  $I_y$  とすると、各断面二次モーメントは式(*apdx2-1*), (*apdx2-2*) のように定義される[151]。

$$I_x = \iint y^2 dx dy \quad (\text{apdx2-1})$$

$$I_y = \iint x^2 dx dy \quad (\text{apdx2-2})$$

今、物体が図 *apdx2-2* に示すように、座標軸から離れた位置にあるとき、 $x$  軸周りの断面二次モーメントを  $I'_x$ 、 $y$  軸周りの断面二次モーメントを  $I'_y$ 、物体の断面積  $A$  とすると、各断面二次モーメントは次のように定義される[151]。これを断面二次モーメントの平行軸の定理と呼ぶ。

$$I'_x = I_x + AY^2 \quad (\text{apdx2-3})$$

$$I'_y = I_y + AX^2 \quad (\text{apdx2-4})$$

## apdx 3 圧電体への応力印加と歪み印加の場合の発生電荷

### apdx 3.1 応力印加の場合

今、座標を図 apdx3-1 のように定義する。PLLA は座標系  $1, 2, 3$  の  $2-3$  平面上にあり、延伸方向は  $3$  軸方向である（図 apdx1-2 と同様）。座標系  $1, 2', 3'$  は  $1$  軸を共用して、 $2$  軸および  $3$  軸を  $45^\circ$  時計回り方向に回転したものである。

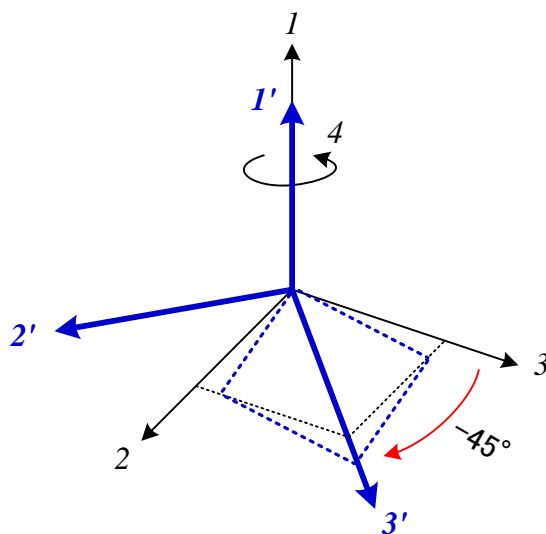


図 apdx3-1. 座標系の定義

ここで  $d_{14}$  は座標系  $1, 2, 3$  で定義されるせん断歪みの圧電歪定数（ずり圧電定数）、 $d_{13'}$  は座標系  $1, 2', 3'$  で定義される垂直歪みの圧電歪定数であるとする。

圧電体に応力  $\mathbf{T}$  と電場  $\mathbf{E}$  が加わった時に生じる電気変位  $\mathbf{D}$  は圧電定数（圧電歪定数） $\mathbf{d}$  と誘電率  $\boldsymbol{\varepsilon}$  を用いて式(apdx3-1)のようになる（ $\mathbf{d}, \boldsymbol{\varepsilon}^T$  はテンソル行列） [89]。

$$\mathbf{D} = \mathbf{d}\mathbf{T} + \boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbf{E} \quad (\text{apdx3-1})$$

これを行列で表記すると、式(apdx3-2)のように表せる。

$$\begin{bmatrix} D_1 \\ D_2 \\ D_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ T_4 \\ T_5 \\ T_6 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{21} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{31} & \varepsilon_{32} & \varepsilon_{33} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-2})$$

電場は加えられていないとして  $E_i=0$  とすれば、式(apdx3-3)のように表せる。

$$\begin{bmatrix} D_1 \\ D_2 \\ D_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ T_4 \\ T_5 \\ T_6 \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-3})$$

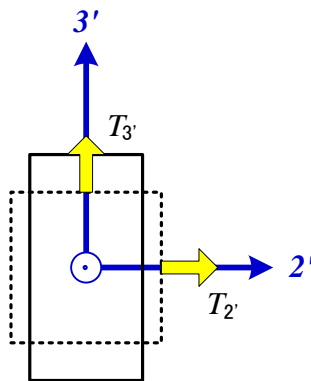


図 apdx3-2. 座標系  $1, 2', 3'$  へのフィルムの配置と垂直応力

今、延伸方向に対して斜め  $45^\circ$  に切りだされた矩形の PLLA フィルムを座標系  $1, 2', 3'$  に、図 apdx3-2 (点線) のように配置したとする。この時 PLLA

の圧電歪定数として、 $d_{13'}$  および  $d_{12'}$  が定義される。ただし  $d_{12'} = -d_{13'}$  である。式(apdx3-3)の圧電歪定数が座標系  $1, 2', 3'$  で定義されているとし、 $1$  方向の電気変位のみを考えたならば、

$$[D_1] = [d_{11} \quad d_{12'} \quad d_{13'} \quad d_{14} \quad d_{15'} \quad d_{16'}] \begin{bmatrix} 0 \\ T_2 \\ T_3 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-4})$$

となり、これを展開すれば、

$$D_1 = d_{12'}T_2 + d_{13'}T_3 = -d_{13'}T_2 + d_{13'}T_3 \quad (\text{apdx3-5})$$

となる。よって、式(apdx1-17), (apdx3-5)より式(apdx3-6)を得る。

$$D_1 = -\frac{1}{2}d_{14}T_2 + \frac{1}{2}d_{14}T_3 \quad (\text{apdx3-6})$$

PLLA の面積を  $A$  とし、発生する電荷を  $Q$  とすれば、式(apdx3-6)より、式(apdx3-7)が得られる。

$$Q = -\frac{1}{2}d_{14}T_2A + \frac{1}{2}d_{14}T_3A \quad (\text{apdx3-7})$$

今、PLLA フィルムの幅を  $W$ 、長さを  $L$ 、厚みを  $t$  とし、図 apdx3-3 に示すように寸法を割り当て、各軸方向へ引っ張る力をそれぞれ  $F_2, F_3$  と定義した時、式(apdx3-7)より、



$$Q = -\frac{1}{2} \frac{d_{14} F_2 A}{Lt} + \frac{1}{2} \frac{d_{14} F_3 A}{Wt} \quad (\text{apdx3-8})$$

となる。

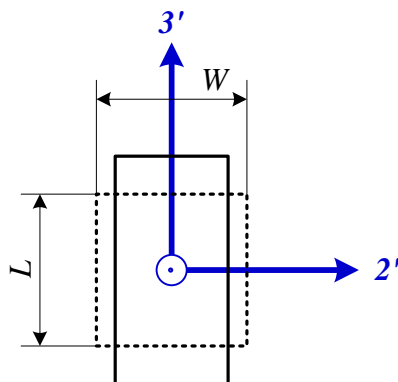


図 apdx3-3. フィルムの寸法

$A=WL$ 、 $F_2=0$  とすれば ( $3'$  軸方向だけにフィルムを引っ張ると仮定する)、

$$Q = \frac{1}{2} \frac{d_{14} F_3 L}{t} \quad (\text{apdx3-9})$$

を得る。式(apdx3-9)を書きなおせば、

$$d_{14} = \frac{2t}{L} \cdot \frac{Q}{F_3} \quad (\text{apdx3-10})$$

となる。この式は、式(2-3)そのものである。

**apdx 3.2 歪み印加の場合**

応力  $T_i$  は、弾性率  $c_{ij}$ 、歪み  $S_i$  を用いて、式(apdx3-11)のように表せる[150]。

$$\begin{bmatrix} T_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ T_4 \\ T_5 \\ T_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ c_{21} & c_{22} & c_{23} & 0 & 0 & 0 \\ c_{31} & c_{32} & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & c_{66} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \\ S_4 \\ S_5 \\ S_6 \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-11})$$

この式より、

$$T_4 = c_{44} S_4 \quad (\text{apdx3-12})$$

となる。また式(apdx3-1)の圧電方程式において外部電場を 0 とすれば、

$$D_1 = d_{14} T_4 \quad (\text{apdx3-13})$$

と表せるので、式(apdx3-12), (apdx3-13)から、 $D_1$  は歪み  $S_4$  を用いて式(apdx3-14)のように表せる。

$$D_1 = d_{14} c_{44} S_4 \quad (\text{apdx3-14})$$

ここで  $S_4$  は理解が困難なので、座標系  $1, 2, 3$  でのせん断歪みを座標系  $1, 2', 3'$  における垂直歪み (図 apdx3-3) に変換することを考える。座標系  $1, 2', 3'$  における垂直歪みを図 apdx3-4 のように定義する。

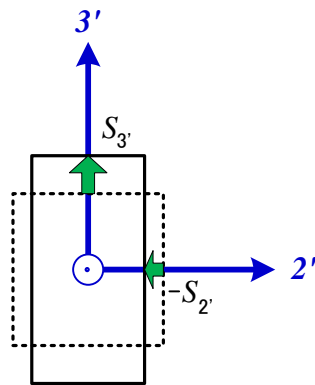


図 apdx3-4. 座標系  $1, 2', 3'$  における垂直歪みの定義

このときの歪みをテンソル表記すると、式(apdx3-15)のようになる。

$$S_r = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & S_2 & 0 \\ 0 & 0 & S_3 \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-15})$$

これを一軸周りに回転して座標系  $1, 2, 3$  に戻す。回転行列は式(apdx3-16)のように定義される[151]。

$$R_\theta = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \theta & -\sin \theta \\ 0 & \sin \theta & \cos \theta \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-16})$$

図 apdx3-1 より  $\theta=45^\circ$  (反時計まわりへ回転) なので、式(apdx3-16)は次のようになる。

$$R_\theta = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{2}/2 & -\sqrt{2}/2 \\ 0 & \sqrt{2}/2 & \sqrt{2}/2 \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-17})$$

歪みテンソルを回転行列により座標変換すると式(apdx3-18) となる[151]。

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_i = \mathbf{R}_\theta^T \mathbf{S}_i' \mathbf{R}_\theta &= \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{2}/2 & \sqrt{2}/2 \\ 0 & -\sqrt{2}/2 & \sqrt{2}/2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & S_{2'} & 0 \\ 0 & 0 & S_{3'} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{2}/2 & -\sqrt{2}/2 \\ 0 & \sqrt{2}/2 & \sqrt{2}/2 \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{S_{2'} + S_{3'}}{2} & \frac{-S_{2'} + S_{3'}}{2} \\ 0 & \frac{-S_{2'} + S_{3'}}{2} & \frac{S_{2'} + S_{3'}}{2} \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (\text{apdx3-18})$$

このテンソルの定義による歪み表記を工学の定義による歪み表記に変換すると、式(apdx3-19)のように表せる。(せん断歪みのテンソル成分は2倍される)

$$\mathbf{S}_i = \begin{bmatrix} 0 \\ (S_{2'} + S_{3'})/2 \\ (S_{2'} + S_{3'})/2 \\ -S_{2'} + S_{3'} \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-19})$$

結果的に、式(apdx3-14), (apdx3-19)より、電気変位  $D_1$  は  $2'$  方向と  $3'$  方向の歪みを用いて、式(apdx3-20)のようになる。

$$D_1 = d_{14} c_{44} (-S_{2'} + S_{3'}) \quad (\text{apdx3-20})$$

$3'$  軸方向に引き延ばすような歪みを受けた時  $2'$  方向に素直に縮むと考えれば、 $S_{2'} = -S_{3'}$  となるので、式(apdx3-20)より  $D_1$  は式(apdx3-21)のようになる。

$$D_1 = 2d_{14} c_{44} S_{3'} \quad (\text{apdx3-21})$$

また、式(apdx3-1)を  $g$  形式で表記すれば、

$$\mathbf{E} = -\mathbf{gT} + \mathbf{D}/\boldsymbol{\varepsilon}^T \quad (\text{apdx3-22})$$

となり、このとき電気変位が加えられていないとすると、

$$\mathbf{E} = -\mathbf{gT} \quad (\text{apdx3-23})$$

となる。圧電性 PLLA フィルムに 4 方向の歪みが加わった時、(apdx3-24)より、

$$E_1 = -g_{14}T_4 = -g_{14}c_{44}S_4 \quad (\text{apdx3-24})$$

となるので、式(apdx3-14)～(apdx3-20)と同様にして、圧電体に生じる電場  $E_1$  は 2' 方向と 3' 方向の歪みを用いて、式(apdx3-25)のようになる。

$$E_1 = -g_{14}c_{44}(S_{3'} - S_{2'}) \quad (\text{apdx3-25})$$

### apdx 3.3 弾性率 $c_{44}$ の算出について

座標系  $1, 2', 3'$  (座標系  $1', 2', 3'$ ) における歪みを以下のように定義する。

$$\mathbf{S}_{i'} = \begin{bmatrix} S_{1'} \\ S_{2'} \\ S_{3'} \\ S_{4'} \\ S_{5'} \\ S_{6'} \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-26})$$

このときの歪みをテンソル表記すると、式(apdx3-27)のようになる。

$$\mathbf{S}_{ij'} = \begin{bmatrix} S_{1'1'} & S_{1'2'} & S_{1'3'} \\ S_{2'1'} & S_{2'2'} & S_{2'3'} \\ S_{3'1'} & S_{3'2'} & S_{3'3'} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{1'} & S_{6'}/2 & S_{5'}/2 \\ S_{6'}/2 & S_{2'} & S_{4'}/2 \\ S_{5'}/2 & S_{4'}/2 & S_{3'} \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-27})$$

これを  $1$  軸 ( $1'$  軸) 周りに回転して座標系  $1, 2, 3$  に戻す。回転行列は式(apdx3-17)を用いる。

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_{ij} = \mathbf{R}_\theta^T \mathbf{S}_{ij'} \mathbf{R}_\theta &= \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{2}/2 & \sqrt{2}/2 \\ 0 & -\sqrt{2}/2 & \sqrt{2}/2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} S_{1'} & S_{6'}/2 & S_{5'}/2 \\ S_{6'}/2 & S_{2'} & S_{4'}/2 \\ S_{5'}/2 & S_{4'}/2 & S_{3'} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{2}/2 & -\sqrt{2}/2 \\ 0 & \sqrt{2}/2 & \sqrt{2}/2 \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} S_{1'} & S_{6'}/2 & S_{5'}/2 \\ \left(\sqrt{2}S_{6'} + \sqrt{2}S_{5'}\right)/4 & \left(2\sqrt{2}S_{2'} + \sqrt{2}S_{4'}\right)/4 & \left(\sqrt{2}S_{4'} + 2\sqrt{2}S_{3'}\right)/4 \\ \left(\sqrt{2}S_{5'} - \sqrt{2}S_{6'}\right)/4 & \left(\sqrt{2}S_{4'} - 2\sqrt{2}S_{2'}\right)/4 & \left(2\sqrt{2}S_{3'} - \sqrt{2}S_{4'}\right)/4 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{2}/2 & -\sqrt{2}/2 \\ 0 & \sqrt{2}/2 & \sqrt{2}/2 \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} S_{1'} & \left(\sqrt{2}S_{5'} + \sqrt{2}S_{6'}\right)/4 & \left(\sqrt{2}S_{5'} - \sqrt{2}S_{6'}\right)/4 \\ \left(\sqrt{2}S_{5'} + \sqrt{2}S_{6'}\right)/4 & (S_{2'} + S_{3'} + 2S_{4'})/2 & (-S_{2'} + S_{3'})/2 \\ \left(\sqrt{2}S_{5'} - \sqrt{2}S_{6'}\right)/4 & (-S_{2'} + S_{3'})/2 & (S_{2'} + S_{3'} - 2S_{4'})/2 \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-28}) \end{aligned}$$

このテンソルの定義による歪み表記を工学の定義による歪み表記に戻すと、式(apdx3-29)のように表せる。

$$S_i = \begin{bmatrix} S_1 \\ (S_{2'} + S_{3'} + 2S_{4'})/2 \\ (S_{2'} + S_{3'} - 2S_{4'})/2 \\ -S_{2'} + S_{3'} \\ (\sqrt{2}S_{5'} - \sqrt{2}S_{6'})/2 \\ (\sqrt{2}S_{5'} + \sqrt{2}S_{6'})/2 \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-29})$$

座標系  $1, 2, 3$  において、歪みと応力の関係は以下のように書ける。

$$\begin{bmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \\ S_4 \\ S_5 \\ S_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} s_{11} & s_{12} & s_{13} & 0 & 0 & 0 \\ s_{21} & s_{22} & s_{23} & 0 & 0 & 0 \\ s_{31} & s_{32} & s_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & s_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & s_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & s_{66} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ T_4 \\ T_5 \\ T_6 \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-30})$$

座標系  $1, 2', 3'$  において  $2'$  軸と  $3'$  軸方向にそれぞれ応力  $T_2, T_3$  がかけられているとした時、これを座標系  $1, 2, 3$  で書き表せば以下ようになる。

$$T_i = \begin{bmatrix} T_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ T_4 \\ T_5 \\ T_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ (T_{2'} + T_{3'})/2 \\ (T_{2'} + T_{3'})/2 \\ (-T_{2'} + T_{3'})/2 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (\text{apdx3-31})$$

→応力テンソルについて式(apdx3-18), (apdx3-19)と同様の操作を行えばよい。  
(せん断方向の応力は工学的表記に書き直しても2倍されない)

式(apdx3-30)に式(apdx3-31)を代入して展開すると、

$$\begin{cases} S_1 = s_{12}(T_{2'} + T_{3'})/2 + s_{13}(T_{2'} + T_{3'})/2 \\ S_2 = s_{22}(T_{2'} + T_{3'})/2 + s_{23}(T_{2'} + T_{3'})/2 \\ S_3 = s_{23}(T_{2'} + T_{3'})/2 + s_{33}(T_{2'} + T_{3'})/2 \\ S_4 = -s_{44}(T_{2'} - T_{3'})/2 \\ S_5 = 0 \\ S_6 = 0 \end{cases} \quad (\text{apdx3-32})$$

となり、これに式(apdx3-29)を対応させると、

$$S_{1'} = s_{12}(T_{2'} + T_{3'})/2 + s_{13}(T_{2'} + T_{3'})/2 \quad (\text{apdx3-33})$$

$$S_{2'} + S_{3'} + 2S_{4'} = s_{22}(T_{2'} + T_{3'}) + s_{23}(T_{2'} + T_{3'}) \quad (\text{apdx3-34})$$

$$S_{2'} + S_{3'} - 2S_{4'} = s_{32}(T_{2'} + T_{3'}) + s_{33}(T_{2'} + T_{3'}) \quad (\text{apdx3-35})$$

$$-S_{2'} + S_{3'} = -(s_{44}T_{2'} - s_{44}T_{3'})/2 \quad (\text{apdx3-36})$$

となる。式(apdx3-34), (apdx3-35), (apdx3-36)より、(apdx3-37)を得る。

$$S_{3'} = \frac{1}{4}(s_{22} + s_{23} + s_{32} + s_{33} - s_{44})T_{2'} + \frac{1}{4}(s_{22} + s_{23} + s_{32} + s_{33} + s_{44})T_{3'} \quad (\text{apdx3-37})$$

ここで、座標系  $1, 2', 3'$  系における歪  $S_{3'}$  と応力の関係は(apdx3-30)を参考に、次のように書ける。

$$S_{3'} = s_{3'1}T_{1'} + s_{3'2}T_{2'} + s_{3'3}T_{3'} \quad (\text{apdx3-38})$$



式(apdx3-37)と式(apdx3-38)の $T_3$ 成分を比較すれば、式(apdx3-39)を得る。

$$s_{3'3'} = \frac{1}{4}(s_{22} + s_{23} + s_{32} + s_{33} + s_{44}) \quad (\text{apdx3-39})$$

ここで、 $s_{23} = s_{32}$ なので、

$$s_{3'3'} = \frac{1}{4}(s_{22} + 2s_{32} + s_{33} + s_{44}) \quad (\text{apdx3-40})$$

となる[152]。最後にこれを変形すると、

$$s_{44} = 4s_{3'3'} - s_{22} - s_{33} - 2s_{32} \quad (\text{apdx3-41})$$

となる。このとき、ポアッソン比を $\rho$ とすれば、 $s_{32}$ と $s_{33}$ の関係は $\rho$ を使って式(apdx3-42)のように表せる。

$$\rho = \frac{s_{32}}{s_{33}} \quad (\text{apdx3-42})$$

延伸軸は $3$ 軸方向としてあるので、 $s_{33}$ はフィルムのMDの弾性コンプライアンス、 $s_{22}$ はフィルムのTDの弾性コンプライアンス、 $s_{3'3'}$ はフィルムのMDに対して $45^\circ$ 方向の弾性コンプライアンスである。圧電性 PLLA フィルムの正確なポアッソン比を求めるのは困難である。田實らの過去の検討から鍛造 PLLA のポアッソン比は 0.38 であることが分かっている。これから類推して $\rho \doteq 0.36$  とすると、弾性コンプライアンスの実測データと式(apdx3-41)、(apdx3-42)から $s_{44}$ を求めることができる。この結果 $s_{44} = 0.703e-9$ となる。逆行列の成分で比較すると、 $c_{44} = 1/s_{44}$ である。従って $c_{44} = 1.422e+9$ となる。

(余白)

## 参考文献

書籍、および特許の表題に関しては斜字体とした。また、論文、寄稿等のタイトルについて、英文の場合は“”で表し、日本語の場合は「」で表した。

書籍の参考部分に関しては行の最後に pp.と記し、参考にしたページの範囲を記載した。論文や寄稿等に関しては行の最後にその論文の開始ページを記した。また Vol-No.は太字で示した。

## 第1章

- [1] H. Kawai: “The Piezoelectricity of Poly (vinylidene Fluoride),” *Jpn. J. Appl. Phys.* **8** (1969) 975.
- [2] M. Lines and A. Glass: *Principles and Applications of Ferroelectrics and Related Materials* (Clarendon, Oxford, U.K. 1979) pp.553-558.
- [3] T. Wang, J. Herbert, and A. Glass: *The Applications of Ferroelectric Polymers* (Blackie, Glasgow, U.K. 1988) pp.312-325.
- [4] P. Galetti, D. DeRossi, and A. DeReggi: *Medical Applications of Piezoelectric Polymers* (Wiley, New York, 1988) pp.247-258.
- [5] H. Nalwa: *Ferroelectric Polymers* (Marcel Dekker, New York, 1995) pp.183-227.
- [6] E. Fukada: “History and recent progress in piezoelectric polymers,” *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **47** (2000) 1277.
- [7] F. Carpi and E. Smela, ed.: *Biomedical Applications of Electroactive Polymer Actuators* (Wiley, Chichester, U.K. 2009) pp.319-332.
- [8] G. Escoto-Mora, C. O. González-Morán, and E. Suaste-Gómez: “Development of Poly(vinylidene fluoride) Polymer Applied in Force Sensors for Gait Analysis in Wistar Mice of Physiology Research Laboratory,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **47** (2008) 4769.
- [9] T. Nakajima, M. Nakamura, T. Furukawa, and S. Okamura: “Switching Dynamics

- in Ferroelectric Vinylidene Fluoride–Trifluoroethylene Copolymer Thin Film with  $\alpha,\omega$ -Dihexylsexithiophene Semiconductor Layer,” Jpn. J. Appl. Phys. **49** (2010) 09MC12.
- [10] Y. Mabuchi, T. Nakajima, K. Chaudhuri, J. E. Evans, N. D. Browning, and S. Okamura: “Investigation on Thickness Effect of Ultrathin Vinylidene Fluoride/Trifluoroethylene Copolymer Films,” Jpn. J. Appl. Phys. **50** (2011) 09NA05.
- [11] 日本国特許公報 特開 1981-114500 (特開昭 56-114500) (1981/09)  
超音波トランスジューサ: 大東弘二、中西俊晴、古賀啓子: 東レ株式会社、  
ダイキン工業株式会社.
- [12] 日本国特許公報 特開 1993-102548 (特開平 5-102548) (1993/04)  
可撓性圧電素子: 佐藤卓、鈴木和元、中村謙一: 呉羽化学工業株式会社.
- [13] 日本国特許公報 特開 1993-335642 (特開平 5-335642) (1993/12)  
圧電素子および製造方法: 中村謙一、鈴木和元: 呉羽化学工業株式会社.
- [14] 日本国特許公報 特開 1994-216422 (特開平 6-216422) (1994/08)  
可撓性積層圧電素子: 佐藤卓、鈴木和元、中村謙一: 呉羽化学工業株式会  
社.
- [15] Y. Tajitsu: IEEE Books, Applications of Ferroelectrics, IEEE Int’l Symposium on  
2002, CH37341 (2002) 291.
- [16] 日本国特許公報 特開 1986-252798 (特開昭 61-252798) (1986/11)  
平面型スピーカ: 浜田章、高橋久男、大平敬一: 呉羽化学工業株式会社.
- [17] 日本国特許公報 特開 2011-123696 (2011/06)  
スピーカ装置: 松岡貴晃、高橋潤: JVC・ケンウッドホールディングス  
株式会社、J&K カーエレクトロニクス株式会社.
- [18] 日本国特許公報 特開 2009-272978 (2009/11)  
フレキシブルスピーカ: 杉本岳大、小野一穂、安藤彰男、原晃、森田雄一:  
日本放送協会、フォスター電機株式会社.
- [19] 日本国特許公報 特開 2008-294493 (2008/12)

- フレキシブルスピーカの音質補正装置および音質補正装置を備えたスピーカシステム：杉本岳大、黒住幸一：日本放送協会.
- [20] 日本国特許公報 特開 2009-278498 (2009/11)  
フレキシブルステレオスピーカ：杉本岳大、小野一穂、岩城正和、安藤彰男、田辺逸雄：日本放送協会.
- [21] 米国特許公報 US3973150 (1976/08)  
*RECTANGULAR, ORIENTED POLYMER, PIEZOELECTRIC DIAPHRAM:*  
M. Tamura, K. Iwama, T. Yoshimi: Pioneer Electronic Corporation.
- [22] 米国特許公報 US4322877 (1982/04)  
*METHOD OF MAKING PIEZOELECTRIC POLYMERIC ACCOUSTIC TRANSDUCER:*  
A. L. Taylor, W. Minn: Minesota Mining and Manufacturing Company.
- [23] 日本国特許公報 特開 2006-163618 (2006/11)  
検出装置、入力装置及び電子機器：小西晃雄：セイコーエプソン株式会社.
- [24] 国際特許公報 WO 01/02823 (2001/01)  
*METHOD FOR THE MANUFACTURE OF A SENSOR ELEMENT, AND A SENSOR ELEMENT:* R. Heikki.
- [25] 国際特許公報 WO 2009/025529 (2009/02)  
*PIEZO-ELECTRIC SENSING UNIT AND DATA INPUT DEVICE USING PIEZO-ELECTRIC SENSING:* O. Eui Jin.
- [26] 国際特許公報 WO 2009/149738 A1 (2009/12)  
*MOBILE ELECTRONIC DEVICE COMPRISING PIEZOELECTRIC MATERIAL:*  
H. Perragnar: HAINZL, Richard, Andreas, Axel.
- [27] 米国特許公報 US 2003/0057808 (2003/03)  
*POINTING APPARATUS USING PIEZOELECTRIC FILM, METHOD FOR PRODUCING THE APPARATUS, APPARATUS AND METHOD FOR DETECTING POINTING INFORMATION THEREOF:* W.-J. Lee, W.-J. Cho, Samsung Electronics Co., Ltd.
- [28] Y. Takahashi, S. Ukishima, M. Iijima and E. Fukada: "Piezoelectric properties of thin films of aromatic polyurea prepared by vapor deposition polymerization," J.

- Appl. Phys. **70**(1991) 6983.
- [29] X.-S. Wang, M. Iijima, Y. Takahashi and E. Fukada: "Dependence of Piezoelectric and Pyroelectric Activities of Aromatic Polyurea Thin Films on Monomer Composition Ratio," Jpn. J. Appl. Phys. **32**(1993) 2768.
- [30] T. Hattori, Y. Takahashi, M. Iijima and E. Fukada: "Piezoelectric and ferroelectric properties of polyurea-5 thin films prepared by vapor deposition polymerization," J.Appl.Phys.**79** (1996) 1713.
- [31] E. Fukada: "New Piezoelectric Polymers," Jpn. J. Appl. Phys.**37**(1998) 2775.
- [32] J. S. Harrison and Z. Ounaies: "Piezoelectric polymers," NASA/CR2001-211422 ICASE Report No.2001-43.
- [33] E. Fukada: "Recent developments of polar piezoelectric polymers," IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul. **13**, No.5 (2006) 1110.
- [34] M. Tabaru, M. Nakazawa, K. Nakamura, and S. Ueha: "Three-Axis Acceleration Sensor Using Polyurea Films," Jpn. J. Appl. Phys. **47** (2008) 4044.
- [35] A. Kubono, M. Murai and S. Tasaka: "High Piezoelectric Activity in Nonpoled Thin Films Prepared by Vapor Deposition Polymerization," Jpn. J. Appl. Phys.**47**, No.7 (2008) 5553.
- [36] B. A. Newman, P. Chen, K. D. Pae, and J. I. Scheinbeim: "Piezoelectricity in nylon 11," J. Appl. Phys. **51** (1980) 5161.
- [37] S. C. Mathur, J. I. Scheinbeim, and B. A. Newman: "Piezoelectric properties and ferroelectric hysteresis effects in uniaxially stretched nylon-11 films," J. Appl. Phys. **56** (1984) 2419.
- [38] K. Meurisch, B. Gojdka, T. Strunskus, V. Zaporozhchenko and F. Faupel: "Vapour phase deposition of highly crystalline self-poled piezoelectric nylon-11," J. Phys. D: Appl. Phys. **45** (2012) 55304.
- [39] V. Bharti and R. Nath: "Quantitative analysis of piezoelectricity in simultaneously stretched and corona poled polyvinyl chloride films," J. Appl. Phys. **82** (1997) 3488.

- [40] J. Kim, S. Yun, S. K. Mahadeva, K. Yun, S. Y. Yang and M. Maniruzzaman: "Paper Actuators Made with Cellulose and Hybrid Materials," *Sensors* **10** (2010) 1473.
- [41] プラスチック・機能性高分子材料事典：産業調査会事典出版センター (2004).
- [42] L. Yigui and S. Sugiyama: "X-ray lithography fabrication of Poly-L-Lactides microstructures," *Optelec. Mater.* **663** (2010) 1016.
- [43] 中根和博：「プラスチック廃棄物とごみ問題」：JHAVDC, Month of issue Jun, No.55(1998) 1.
- [44] 中村慎一郎：「廃棄物処理と再資源化の産業連関分析」：産業廃棄物論文誌 **11** (2000) 84.
- [45] 堀田裕久：「循環型社会を築くりサイクル技術」：NKK 技報 No.179 (2002) 126.
- [46] 森口祐一：「循環型社会から廃プラスチック問題を考える」：廃棄物学会誌 WASTE MANAGEMENT RESEARCH **16** (2005) 243.
- [47] 高橋通正、坂本広美：「廃棄物リサイクル施設から発生する大気汚染物質」：第31回環境・公害研究合同発表講演 (2007).
- [48] 常盤豊：「バイオプロセスと生分解性プラスチック」：*Journal of Environmental Biotechnology* **4** (2004) 5.
- [49] 酒井清文：「生分解性ポリマーとバイオマスポリマーの開発」：*科学と工業* **82** (2008) 81.
- [50] 辻秀人、筏義人：「ポリラクチド系高分子の構造と材料特性[ I ]」：*高分子加工* **56** (1996) 222.
- [51] 辻秀人、筏義人：*ポリ乳酸 -医療・製剤・環境のために*：高分子刊行会 (1997).
- [52] 筏義人：*生分解性高分子の基礎と応用*：アイビーシー (1999) pp.292-311.
- [53] T. Kimura, N. Ihara, Y. Ishida, Y. Saito and N. Shimizu: "Hydrolysis Characteristics of Biodegradable Plastic(Poly Lactic Acid)," *Journal of the*

- Japanese Society for Food Science and Technology **49** (2002) 598.
- [54] H.Tsujii: *Biopolymers* Wiley-VCH, Weinheim, Germany, **4** (Polyesters 3), (2002) pp.129-177.
- [55] 西原舞、村瀬繁満：「ポリ乳酸繊維の加水分解速度」：繊維学会誌 **59**, No.9 (2003) 371.
- [56] 辻秀人：ポリ乳酸－植物由来プラスチックの基礎と応用－：米田出版 (2004) pp.147-182.
- [57] 望月政嗣：ポリ乳酸グリーンプラスチックの開発と応用－植物系樹脂の活用化－：フロンティア出版 (2005) pp.174-196.
- [58] 西田治男：「循環型社会の構築に貢献するプラスチックリサイクル/バイオマスプラスチック」：プラスチック **57** (2006) 15.
- [59] 日本国特許公報 特開 2008-30306 (2008/02)  
耐熱性ポリL-乳酸プリフォーム：須貝昌弘、鈴木正人、志村博美、千葉潤一：株式会社吉野工業所.
- [60] 望月政嗣：「高L組成ポリ乳酸(LLA-rich PLA)の結晶化挙動」：繊維学会誌 **66** (2010) 70.
- [61] 金澤進一、木村良晴、川本尚史、酒井敦史、水野渡、嶋川武彦、大目裕千、奥平有三、斉藤英一郎、伊藤公一、岡本正巳：最新 ポリ乳酸の改質・高機能化と成形加工技術、第2章：技術情報協会(2007) pp.13-92.
- [62] F. Ublekov, J. Baldrian, J. Kratochvil, M. Steinhart, and E. Nedkov: "Influence of clay content on the melting behavior and crystal structure of nonisothermal crystallized poly(L-lactic acid)/nanocomposites," J. Appl. Polym. Sci. **124** (2012) 1643.
- [63] J.-X. Xie, and R.-J. Yang: "Preparation and characterization of high-molecular-weight poly(l-lactic acid) by chain-extending reaction with phosphites," J. Appl. Polym. Sci. **124** (2012) 3963.
- [64] 田實佳郎：「ポリ乳酸の光・電気機能 -高分子固有の構造に基づく光・電気機能性の発現-」：未来材料 **3** (2003) 16.



- [65] 田實佳郎：「ポリ乳酸の複合膜の圧電性」：接着 **49** (2005) 114.
- [66] E. Fukada: “Piezoelectric Properties of Poly-L-lactic acid,” Reports on Progress in Polymer Physics in Japan, XXXIV (1991) 269.
- [67] Y. Tajitsu: “Piezoelectricity of chiral polymeric fiber and its application in biomedical engineering,” IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control. **55** (2008) 1000.
- [68] 田實佳郎他：未来を動かすソフトアクチュエーター－高分子・生体材料を中心とした研究開発－、第12章：シーエムシー出版 (2010) .
- [69] J. Shao, C. Chen, Y. Wang, X. Chen, and C. Du: “Structure and surface nanomechanics of poly(L-lactide) from thermally induced phase separation process,” Appl. Surf. Sci. **258** (2012) 6665.
- [70] H. Marubayashi, S. Asai and M. Sumita: “Complex Crystal Formation of Poly(L-lactide) with Solvent Molecules,” Macromolecules **45** (2012) 1384.
- [71] V. Sencadas, C. Ribeiro, A. Heredia, I. K. Bdikin, A. L. Kholkin and S. Lanceros-Mendez: “Local Piezoelectric Activity of Single Poly(L-lactic acid),” Appl. Phys. A, **109** (2012) 51.
- [72] T. Yoshida, K. Imoto, K. Tahara, K. Naka, Y. Uehara, S. Kataoka, M. Date, E. Fukada, and Y. Tajitsu: “Piezoelectricity of Poly(L-lactic Acid) Composite Film with Stereocomplex of Poly(L-lactide) and Poly(D-lactide),” Jpn. J. Appl. Phys. **49** (2010) 09MC11.

## 第2章

- [73] Y. Tajitsu, M. Sukegawa, M. Kikuchi, N. Sudo, M. Kudo, T. Masuko, M. Date and Eiichi Fukada: “Piezoelectric Poly-L-Lactic Acid Film Prepared by a New Method,” Jpn. J. Appl. Phys. **42** (2003) 6172.
- [74] T. Nakiri, M. Okuno, N. Maki, M. Kanasaki, Y. Morimoto, S. Okamoto, M. Ishizuka, K. Fukuda, T. Takaki and Yoshiro Tajitsu: “Piezoelectric Characteristics of Chiral Polymer Composite Films Obtained under Strong Magnetic Field,” Jpn.

- J. Appl. Phys. **44** (2005) 7119.
- [75] K. Imoto, M. Date, E. Fukada, K. Tahara, Y. Kamaiyama, T. Yamakita, Y. Tajitsu: “Piezoelectric Motion of Poly(L-lactic acid) Film Improved by Supercritical CO<sub>2</sub> Treatment,” Jpn. J. Appl. Phys. **48** (2009) 09KE06.
- [76] 日本国特許第 4934235 号 (国際公開番号 WO2012/026494)(2012/05)  
高分子圧電材料、およびその製造方法：吉田光伸、藤井俊介、大西仁志、田實佳郎、西本泰三、谷本一洋、後藤謙一：三井化学株式会社、学校法人関西大学.
- [77] 国際特許公報 WO 2013/054918 (2013/04)  
*POLYMER PIEZOELECTRIC MATERIAL, AND MANUFACTURING METHOD THEREOF:*  
K. Tanimoto, M. Yoshida, S. Nishikawa, M. Shimizu, MITSUI CHEMICALS, INC.
- [78] 吉川泰三：物理学実験：学術図書出版社 (1982) pp.3-33.

### 第 3 章

- [79] B. Jaffe: *Piezoelectric Ceramics* (Academic Press, 1971) pp.136-180.
- [80] B. Jaffe, R. S. Roth and S. Marzullo: “Properties of Piezoelectric Ceramics in the Solid-Solution Series Lead Titanate-Lead Zirconate-Lead Oxide: Tin Oxide and Lead Titanate-Lead Hafnate,” J. Res. Natl. Bur. Stds. **55** (1955) 239.
- [81] Berlincourt, D., C. Cmolik, and H. Jaffe.: “Piezoelectric properties of polycrystalline lead titanate zirconate compositions,” Proc. IRE, **48** (1960) 220.
- [82] Berlincourt, D.: “Recent Developments in Ferroelectric Transducer Materials,” Ultrasonic Engineering, Transactions of the IRE Professional Group on 4.1 (1956): 53.
- [83] M. Adachi, T. Matsuzaki, T. Yamada, T. Shiosaki and A. Kawabata: “Sputter-Deposition of [111]-Axis Oriented Rhombohedral PZT Films and Their Dielectric, Ferroelectric and Pyroelectric Properties,” Jpn. J. Appl. Phys. **26** (1987) 550.

- [84] K. Iijima, Y. Tomita, R. Takayama and I. Ueda: "Preparation of c-axis oriented  $\text{PbTiO}_3$  thin films and their crystallographic, dielectric, and pyroelectric properties," *J. Appl. Phys.* **60** (1986) 361.
- [85] R. Takayama and Y. Tomita: "Preparation of epitaxial  $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$  thin films and their crystallographic, pyroelectric, and ferroelectric properties," *J. Appl. Phys.* **65** (1989) 1666.
- [86] R. Takayama, Y. Tomita, K. Iijima and I. Ueda: "Preparation and characteristics of pyroelectric infrared sensors made of c-axis oriented La-modified  $\text{PbTiO}_3$  thin films," *J. Appl. Phys.* **61** (1987) 411.
- [87] T. Yokoo, K. Shibata, K. Takeuchi, M. Kamino, S. Nakano, Y. Kuwano, M. Tsuji, M. Ikeda and Y. Yamada: "Modulation Type Pyroelectric IR Detector," *Jpn. J. Appl. Phys.* **26** (1987) 1082.
- [88] M. Okuyama, Y. Matsui, H. Nakano and Y. Hamakawa: " $\text{PbTiO}_3$  ferroelectric thin film gate fet for infrared detection," *Ferroelectrics* **33** (1981) 235.
- [89] 圧電セラミックテクニカルハンドブック：株式会社富士セラミックス：  
<http://www.fujicera.co.jp/product/j/01/10.pdf>.
- [90] M. Sawano, K. Tahara, Y. Orita, M. Nakayama and Y. Tajitsu: "New design of actuator using shear piezoelectricity of a chiral polymer, and prototype device," *Polymer International* **59** (2010) 365.
- [91] Y. Inuzuka, K. Onishi, S. Kinoshita, Y. Nakashima, T. Nagata, H. Yamane, T. Nakai, T. Kataoka, S. Ito and Y. Tajitsu: "Fundamental Study of Application of Piezoelectric Chiral Polymer to Actuator," *Jpn. J. Appl. Phys.* **51** (2012) 09LD15.
- [92] S. Yoneyama, N. Tanaka: "Smart film actuators using biomass plastic," *Smart Mater. Struct.* **20** (2011) 045012.
- [93] Y. Tajitsu, S. Kawai, M. Kanesaki, M. Date and E. Fukada: "Microactuators with Piezoelectric Polylactic Acid Fibers—Toward the Realization of Tweezers for Biological Cells," *Ferroelectrics*, **304** (2004) 195.
- [94] Y. Tajitsu, M. Kanesaki, M. Tsukiji, K. Imoto, M. Date and E. Fukada: "Novel

- Tweezers for Biological Cells Using Piezoelectric Polylactic Acid Fibers,” *Ferroelectrics*, **320** (2005) 133.
- [95] Y. Tajitsu: “Development of electric control catheter and tweezers for thrombosis sample in blood vessels using piezoelectric polymeric fibers,” *Polymers for Advanced Technologies*, **17** (2006) 907.
- [96] Y. Tajitsu: “Basic Study of Controlling Piezoelectric Motion of Chiral Polymeric Fiber,” *Ferroelectrics*, **389** (2009) 83.
- [97] 日本国特許公報 特開 1994-142182 (特開平 6-142182) (1994/05)  
骨接合用内固定材：敷波保夫、畑邦広：タキロン株式会社。
- [98] 日本国特許公報 特開 1994-142184 (特開平 6-142184) (1994/05)  
骨形成促進用フィルム：敷波保夫、畑邦広：タキロン株式会社。
- [99] 米国特許公報 US005298602 (1994/03)  
*POLYMERIC PIEZOELECTRIC MATERIAL:*  
Y. Shikinami, K. Hata, Takiron Company, Ltd.
- [100] N. B. Barroca, A. L. Daniel-da-Silva, P. S. Gomesa, M. H. R. Fernandes, S. Lanceros-Méndez, P. Sharma, A. Gruverman, M. H. V. Fernandes, P. M. Vilarinho: “Suitability of PLLA as Piezoelectric Substrates for Tissue Engineering Evidenced by Microscopy Techniques ,” *Microscopy and Microanalysis*, **18**, S5, (2012) 63.
- [101] N. Barroca, P. M. Vilarinho, M. Helena, V. Fernandes, P. Sharma, A. Gruverman: “Stability of electrically induced-polarization in poly (L-lactic) acid for bone regeneration,” *Appl. Phys. Lett.* **101** (2012) 23701.
- [102] N. Barroca, P. M. Vilarinho, A. L. Daniel-da-Silva, A. Wu, M. Helena Fernandes, A. Gruverman: “Protein adsorption on piezoelectric poly(L-lactic) acid,” *Appl. Phys. Lett.* **98** (2011) 133705.
- [103] M. Tsukiji, H. Kowa, K. Muraki, N. Umeda and Y. Tajitsu: “Measurement of Pockels Effect in Piezoelectric Chiral Polymer Film,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **44** (2005) 7115.

- [104] M. Tsukiji, H. Kowa, K. Muraki, N. Umeda, K. Morii, M. Honda and Y. Tajitsu: “Accurate Measurement of Light Modulation Properties of Piezoelectric Polymer,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **45** (2006) 7531.
- [105] M. Honda, K. Hayashi, K. Morii, S. Kawai, Y. Morimoto, and Y. Tajitsu: “Piezoelectricity of Chiral Polymeric Fibers ,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **46** (2007) 7122.
- [106] S. Ito, K. Imoto, K. Takai, S. Kuroda, Y. Kamimura, T. Kataoka, N. Kawai, M. Date, E. Fukada and Y. Tajitsu: “Sensing Using Piezoelectric Chiral Polymer Fiber,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **51** (2012) 09LD16.
- [107] K. Nakamura and Y. Wada: *Journal of Polymer Science Part A-2*: “Piezoelectricity, pyroelectricity, and the electrostriction constant of poly (vinylidene fluoride),” *Polymer Physics* **9** (1971) 161.
- [108] R. G. Kepler and R. A. Anderson: “Ferroelectricity in polyvinylidene fluoride,” *J. Appl. Phys.* **49** (1978) 4490.
- [109] M. G. Broadhurst, G. T. Davis, J. E. Mckinney and R. E. Collins: “Piezoelectricity and pyroelectricity in polyvinylidene fluoride—A model,” *J. Appl. Phys.* **49** (1978) 4992.
- [110] 古川猛夫：「強誘電性」、高分子測定法入門講座 高分子 **38** (1989) 220.
- [111] 浮島禎之, 戸張隆雄, 飯島正行, 高橋善和, 塚原園子, & 深田栄一：「蒸着重合法により作製した芳香族ポリ尿素薄膜の圧電性と焦電性」：真空 **34** (1991) 358.
- [112] *岩波理化学辞典 第3版増補版*：岩波書店 (1983).
- [113] *アルミニウムハンドブック*：社団法人日本アルミニウム協会 (2001).
- [114] *全調査エンジニアリングプラスチック'92-'93*：日経 BP 社 (1992).
- [115] Y. Roh, V. V. Varadan and V. K. Varadan: “Characterization of All the Elastic, Dielectric, and Piezoelectric Constants of Uniaxially Oriented Poled PVDF Films,” *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **49** (2002) 836.
- [116] X. Crispin, F. L. E. Jakobsson, A. Crispin, P. C. M. Grim, P. Andersson, A.

- Volodin , C. van Haesendonck, M. Van der Auweraer, W. R. Salaneck and M. Berggren: “The origin of the high conductivity of poly(3,4-ethylenedioxythiophene)-poly(styrenesulfonate)(PEDOT-PSS) plastic electrodes.” Chem. Mater., **18** (18) (2006) 4354.
- [117] M. Ando, H. Kawamura, K. Kageyama and Y. Tajitsu: “Film Sensor Device Fabricated by a Piezoelectric Poly(L-lactic acid) film.” Jpn. J. Appl. Phys.**51** (2012) 09LD14.
- [118] 須藤亘啓、川嶋美晴、清水武：重要公式活用ブック：東京電気大学出版局 (1980) pp.39-49.
- [119] 日本工業規格 JIS K 7105 (2010).
- [120] 日本工業規格 JIS Z 8781-1 (2008).
- [121] <http://n-colorspace.cool.coocan.jp/index.html>.
- [122] *CIE L\*a\*b\* Color Scale*: Hunter Lab Application Note **8** (2008).
- [123] Y. Okoshi, H. Shirai, Y. Goto, M. Nara: “Intrinsic Birefringence of Poly(L-lactic acid),” SEN’I GAKKAISHI. **55** (1999) 21.
- [124] 日本工業規格 JIS K 7127 (2008).
- [125] 日本工業規格 JIS K 7128-3 (2008).

#### 第4章

- [126] 中川祐一：「プラズマを応用した高分子の表面改質」：スリーボンドテクニカルニュース **26** (1989) 1.
- [127] 稲垣訓宏：「プラズマを利用した高分子の表面改質」：材料の科学と工学 **42** (2005) 2.
- [128] 日本工業規格 JIS D 0202 (2007).
- [129] 関根智江：「年層による差がさらに広がるテレビ視聴」：NHK 放送文化研究所世論調査部資料 (2011) 23.
- [130] B. O’Regan, M. Grätzel: “A low-cost, high-efficiency solar cell based on dye-sensitized colloidal TiO<sub>2</sub> films,” NATURE **353** (1991) 737.

- [131] 柳田祥三、箕浦秀樹他：実用化に向けた色素増感型太陽電池、第2章：NTS (2003) pp.45-69.
- [132] 玉浦裕、坂田功、室園幹夫他：太陽エネルギー有効利用最前線、第4章：NTS (2008) pp.293-306.
- [133] 日本国特許公報 特開 2008-62181 (2008/03)  
酸化亜鉛多孔質電極の製造方法：吉田司、箕浦秀樹、檜森洋輔、塚野祐、渡辺真哉、吉田健：国立大学法人岐阜大学、帝人デュポンフィルム株式会社、北川工業株式会社.
- [134] T. Yoshida, J. Zhang, D. Komatsu, S. Sawatani, H. Minoura, T. Pauprté, D. Lincot, T. Oekermann, D. Schlettwein, H. Tada, D. Wöhrle, K. Funabiki, M. Matsui, H. Miura and H. Yagi: "Electrodeposition of Inorganic/Organic Hybrid Thin Films," *Advanced Functional Materials* **19** (2009) 17.
- [135] 安藤正道「圧電性L型ポリ乳酸フィルムを用いたセンサデバイス」：セラミックス **48** (2013) 546.
- [136] タッチパネル最前線：日経BP社 (2010) 第2章.
- [137] タッチパネル最前線2013-2014：日経BP社 (2012) 第1章、第2章pp.40-74.
- [138] 安藤正道「圧電性ポリ乳酸フィルムによるセンシング技術」、マテリアルインテグレーション **26** (2013) 58.
- [139] M. Ando, H. Kawamura, H. Kitada, Y. Sekimoto, T. Inoue and Y. Tajitsu: "Pressure-Sensitive Touch Panel Based on Piezoelectric Poly(L-Lactic Acid) Film," *Jpn. J. Appl. Phys.* **52** (2013) 09KD17.
- [140] K. Suzuki, K. Yutani, M. Nakashima, A. Onodera, S. Mizukami, M. Kato, T. Tano, H. Tomono, M. Yanagisawa and K. Kameyama: "A 200 ppi All-printed Organic TFT Backplane for Flexible Electrophoretic Displays," *Proc. IDW '09* (2009) 1581.
- [141] 藤岡洋：「無機フレキシブルデバイスの開発」：現代化学 **479** (2011) 50.
- [142] 鵜飼育弘：「フラットパネルディスプレイ概論(5)新規ディスプレイ(フレキシブル、3D)」：THE CHEMICAL TIMES **221** (2011) 2.

- [143] J. Kildal, S. Paasovaara, and V. Aaltonen: “Kinetic device: designing interactions with a deformable mobile interface,” CHI’12 Extended Abstracts on Human Factors in Computing Systems. ACM (2012) 1876.
- [144] M. Ando, H. Kawamura, H. Kitada, Y. Sekimoto, T. Inoue, S. Nishikawa, M. Yoshida, K. Tanimoto and Y. Tajitsu: “A Deformation Detection Touch Panel using a Piezoelectric Poly(L-Lactic Acid) Film,” Proc. IDW ’13 (2013) 1600.
- [145] 椎尾一郎、竹村治雄、安村通晃、安藤正道他：次世代ヒューマンマシンインターフェイス開発最前線：エヌ・ティー・エス (2013) pp.491-493.
- [146] [http://www.tv-tokyo.co.jp/mv/mplus/yamato/post\\_27993](http://www.tv-tokyo.co.jp/mv/mplus/yamato/post_27993): TV 東京 M プラス EX、「ヤマトの匠」(アーカイブ) .

## 第5章

- [147] Y. Tajitsu: “Fundamental Study on Improvement of Piezoelectricity of Poly (l-Lactic Acid) and Its Application to Film Actuators,” IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control **60** (2013) 1625.
- [148] 日本国特許公報 特許第 5318203 号 (2013/07)  
圧電体シート、ならびに圧電体シートの製造方法および製造装置：安藤正道、田實佳郎：株式会社村田製作所、学校法人関西大学.
- [149] 田坂茂：「極性高分子における分子および双極子配向性制御に関する研究」：繊維学会誌 **59**(10) (2003) 340.

## 付録

- [150] 十文字弘道、富川義朗、望月雄蔵：*固体振動論の基礎*：オーム社 (1982) pp.1-32.
- [151] <http://jikosoft.com/cae/engineering/strmat11.html>: CAE 技術者のための情報サイト.
- [152] T. Ochiai and E. Fukada: “Electromechanical Properties Poly-L-Lactic Acid,” Jpn. J. Appl. Phys. **37** (1998) 3374.