

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 14 日現在

機関番号：32682

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420094

研究課題名(和文) 生分解性導電材料の超音波による粘度低下を利用した積層造形法

研究課題名(英文) Additive Manufacturing Process with Viscosity Lowering of Bio-degradable Conductive Material Applied by Ultrasonic Vibration

研究代表者

館野 寿丈 (Tateno, Toshitake)

明治大学・理工学部・准教授

研究者番号：30236559

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、生分解性を持つ導電材料を使った積層造形の実現に向けて、超音波を援用した新たな造形手法の確立を目的としている。提案する超音波の援用方法では、材料となる分散液が加振によって粘性が低下し、静止すると粘性が回復するチキソトロピと呼ばれる性質を用いる。まず、対象とする材料の性質を実験的に確認した後、超音波振動による攪拌機であるホモジナイザーを用いて振動を加えながら微量な材料を吐出できる装置を開発し、生分解性を持つ金属フィラーを含む分散液を材料に使用して吐出実験を行った。この結果、超音波振動を加えることで高粘度の材料を従来よりも低い圧力で吐出できることを確認し、さらに、3次元積層造形にも成功した。

研究成果の概要(英文)：This study aims at constructing a new fabrication method for additive manufacturing with bio-degradable conductive materials. In the present method, ultrasonic vibrations are applied to the material extrusion process for utilizing thixotropic property of the material, in which the viscosity of material becomes lower on vibration-applied conditions and recovers on still conditions without vibrations. After the property of subject materials was confirmed by viscosity measurement experiments with vibration, material extrusion experiments with metal filler suspensions were conducted by using a developed device, which can extrude a small amount of materials with ultrasonic vibrations generated by an ultrasonic homogenizer. The experimental results showed that the ultrasonic vibration enabled the material to be extruded with a lower pressure than conventional conditions. Finally, 3-dimensional shapes could be fabricated by the present method.

研究分野：設計工学

キーワード：積層造形 チキソトロピ 超音波 振動 レオロジー 生分解性材料

### 1. 研究開始当初の背景

積層造形は薄い層を何層も重ねることによって所望の立体形状を作製する方法であり、造形のための型や、組立作業無しに製品を作製できることから、オンデマンド製造のメリットがよく知られている。ここで、全て生分解性材料だけで電気機械製品を積層造形できれば、分解・分別が難しい製品を安全に処理したり、体内に埋め込む検査機器を摘出不要にできるなど、新たな価値を持つ製品をオンデマンドで作製できると考えられる。

生分解性材料や電気回路のプリンティングに関しては、それぞれにおいて研究が進められている。生分解性材料についてはポリ乳酸を用いた積層造形の実績があり、電気回路についてはプリントド・エレクトロニクスとして近年注目されている。しかし、電気的性質を持つ生分解性材料の積層造形はまだ十分に研究されていない。これら両方の性質を持つ材料の積層造形は大きな価値を生み出すので、その実現手段が求められている。

著者らは、研究の第一ステップとして、生分解性ではないものの環境適合性の高いカーボンを含むゲルを導電性材料にし、生分解性のポリ乳酸を絶縁材料に使用して、電気回路を含む構造物の積層造形に関する研究を行った。しかし、塗布後すぐには冷却・硬化されず形状が整わないという問題が明らかになった。多くの積層造形法では光硬化樹脂などが採用され、急速に硬化させる工夫がされているが、光硬化樹脂は生分解性が無く、冷却による温度低下のみの硬化では、十分な速度を得ることが難しい。そこで、多様な性質を持つ材料に対して共通に利用できる硬化法が必要になる。

### 2. 研究の目的

本研究では、多様な材料を扱える積層造形の方式として材料押し出し方式を採用し、その硬化法としてチキソトロピ性に着目する。チキソトロピ性は、微粒子の分散液に多く見られる性質で、振動を与えると粘度が低下し、静止させると次第に回復する性質である。そこで、超音波加振によって一時的に粘度を下げた塗布し、塗布後に振動を与えないことで硬化させる新たな造形法を研究する。

具体的には、まず、チキソトロピ性を有する生分解性材料を対象に振動による粘性低下の程度、および静止後の粘性回復速度を明らかにすることを第一の目的とする。次に、積層造形に向けた超音波援用の塗布装置を作製し、これによる積層実験を行うことで、塗布時および積層時の形状精度について評価することを第二の目的とする。

### 3. 研究の方法

上述した二つの研究目的に沿って、それぞれ次の方法により研究を実施した。

#### (1) チキソトロピ性の評価

チキソトロピ性を有する材料に、振動を与

え、その時の粘度低下を測定する。対象とする材料は、微粒子の分散液であるベントナイト分散液とした。これは、ベントナイトの微粒子の代わりに、導電性や生分解性などの所望の特性を持つ材料を微粒子とすれば、任意の材料を積層造形用の材料として利用でき、本研究での測定結果を応用できるからである。

ただし、測定において、適切な振動を与えながら粘度を測定する装置は存在しないので、装置を新たに開発して実験する。

#### (2) 超音波援用による積層造形

超音波の加振をしながら押し出しによる積層造形ができる実験装置を開発し、その装置を用いてチキソトロピ性を有する材料を塗布および積層造形する実験を行う。

本実験により、超音波振動が微粒子分散液の塗布や積層造形にどの程度の有用性をもたらすのか評価できる。また、多様な材料を微粒子分散液として使えるので、これまで困難であった生分解性導電材料の塗布や積層造形の実現性を評価することができる。

### 4. 研究成果

#### (1) チキソトロピ性の評価

##### ① 実験装置の作成

試料に振動を与えながら粘度を測定するための実験装置を作成する。粘度測定は回転式粘度計によるものとし、ボイスコイルモータによる振動台の上に、試料を入れたビーカを載せ、その試料の粘度を測定する。ただし、チキソトロピ性を有する材料を測定するには、計測用のロータを上下に移動させながら測定する必要がある。そのため、昇降台の上に、ボイスコイルモータによる振動台、および、試料を入れるビーカが設置されるよう実験装置を開発した。

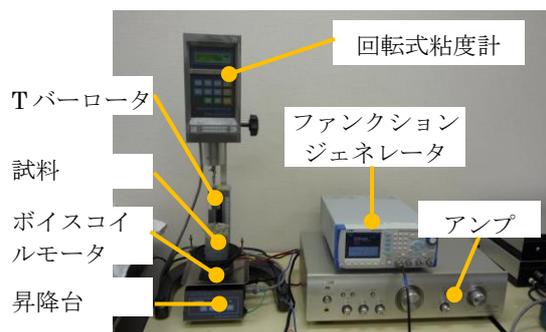


図1 加振しながら粘度測定する実験装置

図1に作成した実験装置を示す。回転式粘度計(東機産業、VT-10)を用いた。ロータはTバーロータを採用し、昇降台は市販のステージ(東機産業、Tバーステージ)を使用する。昇降台の上には、振動台として使用できるように作成したボイスコイルモータ(最大出力60W)を設置し、その上に試料を入れたビーカ(200ml)

が載るようになっている。振動の信号はファンクションジェネレータによって任意の周波数の正弦波として発生され、アンプを通してボイスコイルモータが駆動される。

## ②振動による粘度変化測定実験

試料をベントナイト分散液（ベントナイト 27wt%，水 7wt%，KOH 0.15wt%）とし、ボイスコイルモータにより振動を与えながら粘度測定を行った。

まず、周波数の違いが粘度低下に及ぼす影響を調べるため、周波数を変えた実験を行った。図2に、周波数を10Hz、50Hz、100Hzにした時の実験結果を示す。横軸は時間であり、縦軸が測定された粘度である。図中の2本の破線の間において振動を発生させた。この結果、10Hzの振動において、振動による粘性の低下が確認できた。この理由はビーカー内の分散液の表面波が比較的大きく発生し、試料内が攪拌され、粘性が低下したためと考えられる。また、粘性の低下と回復は比較的早く、5秒から10秒程度で変化が大よそ完了している。これらのことから、振動により粘性を低下させるには、試料全体を振動させる工夫が必要であること、粘性の低下と回復の速度は積層造形での効果が期待できる程度であることが分かった。

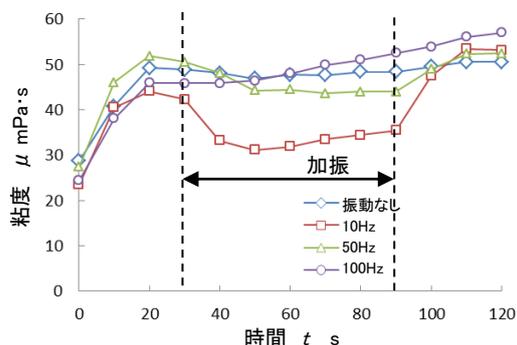


図2 振動数の違いによる粘度低下の比較

次に、振動数を10Hzとし、加振と静止を繰り返すことで、再現性の実験を行った。30秒間の静止状態、60秒間の加振状態、30秒間の静止状態、の120秒間のプロセスを1回の実験とし、6回の実験を繰り返した結果を図3に示す。図中のNo.は、繰り返し回数を示し、破線は加振された時間を示している。この結果、1回目と2回目では加振による粘性低下が少ないが、3回目で低下量が増え、4回目～6回目では比較的大きく低下する結果となった。この理由は、実験を開始した初期では、材料の微粒子分散にむらがあり、振動による液の動きが不十分であったため、粘度低下を起こしにくかったためと考えられる。実験を繰り返すことによって、次第に分散がされ、振動が液全体を攪拌する動きとなることで、大きな粘度低下が得られたと考えられる。この結果から、試料中の微粉末を十

分に分散させることで、振動による攪拌が液全体に行きわたり、大きな粘度低下を起こすことが分かった。

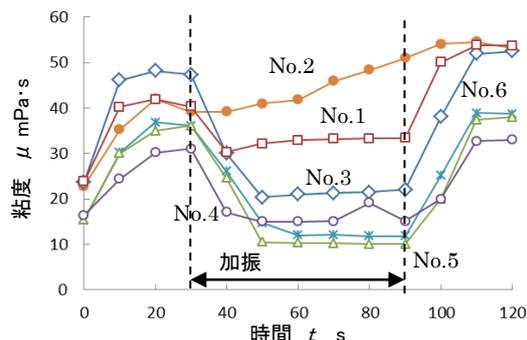


図3 繰り返し回数による粘度低下の比較

## (2)超音波振動援用による積層造形

### ①実験装置の作成

超音波で加振しながら押し出しによる積層造形ができる装置を作成した。図4に実験装置全体の構成を示し、図5に作成したシステムの外観を示す。

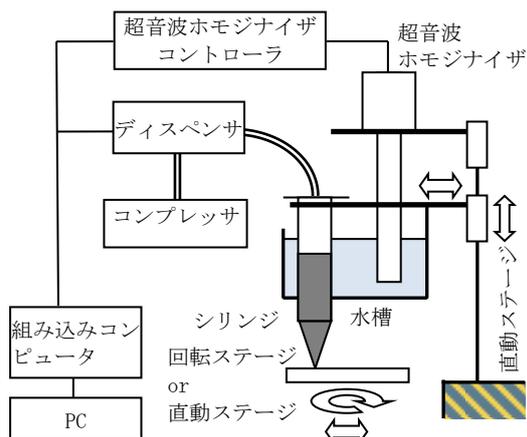


図4 超音波援用積層造形システムの構成

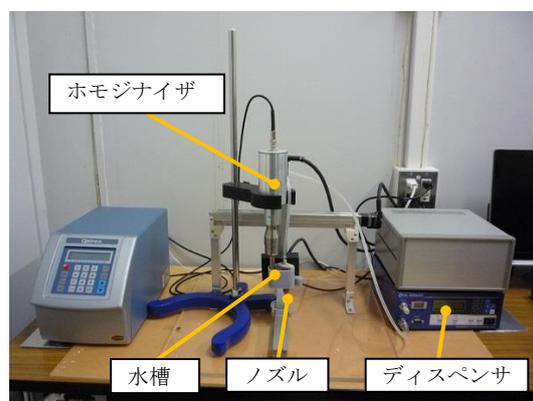


図5 超音波援用積層造形システムの外観

押し出し装置は空気圧式のディスペンサ（武蔵エンジニアリング、ML-808GX）を使用した。シリンジの周囲を囲うように水槽が取

り付けられており、水槽の水中に超音波ホモジナイザ (Qsonica, Q500) の先端が入るように設置されている。超音波ホモジナイザによって発生された超音波 (20kHz, 200WMax) は、水槽内の水を通して伝播し、シリンジ内の試料を振動させる仕組みになっている。シリンジおよび水槽は直動ステージに設置されており、10mm 程度の上下 z 軸の動作と、水平 x 軸の動作が可能である。シリンジからの吐出は、水平 y 軸の直動ステージに載せられたシャーレにさせる。3 軸の直動システムとディスペンサを同期させることで、任意の立体形状を創成する動作が可能である。

## ②吐出実験

開発したシステムを用いて、微粒子分散液を吐出させ、振動の有無が、吐出量に及ぼす影響を測定した。

微粒子は平均粒径  $22 \mu\text{m}$  の鉄粉 (SANDVIK, 316L) とし、チキソトロピ性を発生させる増粘剤 (EVONIK, AEROSIL200) と共に水の中に分散させて試料とした。鉄は生分解性の材料と言える。使用した増粘剤は生分解性の材料ではないが、測定する上で安定したチキソトロピ性を発生させるため選択した。実際には、生分解性を有する他の材料に置き換えることができる。

吐出実験の方法は、試料をシリンジの中に入れ、一定時間 (1 秒間)、一定圧力 (100kPa) を加える。これを 1 回の吐出として、繰り返し、吐出回数と吐出量との関係を計測する。ノズルは 0.4mm 径のテーパノズルとし、試料は、水 10g に対し、鉄粉 30g、増粘剤 1.0g もしくは 1.4g の混合比とした。

図 6 に吐出実験の結果を示す。横軸に吐出回数、縦軸に 1 回目からの累積吐出量を示している。

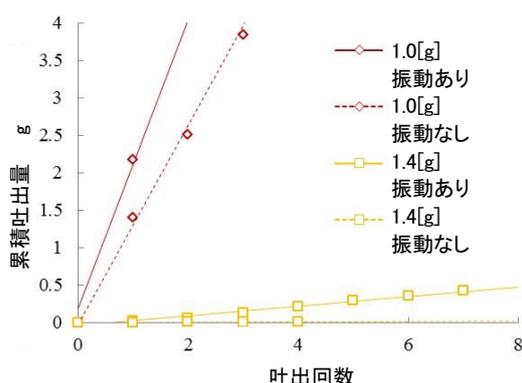


図 6 吐出回数に対する累積吐出量

微粉末を多く含む試料 (増粘剤 1.4g) と、少ない試料 (増粘剤 1.0g) のいずれの場合も、吐出回数に比例して累積吐出量が増えており、毎回の吐出で一定の吐出量になっていることが確認できる。ただし、増粘剤 1.4g の試料で振動がない場合は、4 回目までの吐出量はほとんどなく、5 回目からは全く吐出さ

れなかった。増粘剤 1.0g の試料で振動がある場合は、図 6 にはプロットの記載がないが 2 回目以降も一回目と同量吐出された。試料の違いによる吐出量の違いは、増粘剤の量により粘性が異なるからであり、粘度が低いほど吐出量が増えることが確認できる。

振動の有無についていえば、いずれの試料においても振動を加えることで吐出量が増えている。これは、加振することで試料の粘性が下がり、吐出量が増えたためと考えられる。言い換えれば、吐出後に形状を維持しやすい粘性の高い材料であっても、加振することで従来よりも低い圧力で安定した吐出が可能になることを意味する。

これらの実験結果から、微粒子分散液を超音波加振することで試料の粘性を低下させ、低い吐出圧力による造形が可能であることが確認された。

## ③積層造形実験

吐出実験で使用した実験装置、および増粘剤 1.4g の試料を用いて積層造形実験を行った。形状は、水平方向に 10mm の直線運動をさせてできる層を、10 層重ねていくものとした。図 7 に、積層造形された造形物を示す。10 層の積層がされているが、おおそ形状を維持していることが確認できる。形状の両端付近で盛り上がりが見えるが、これは吐出の開始と停止をする部分で、動作中の吐出量よりも多くの吐出がなされるためであり、吐出操作の工夫で改善できる。

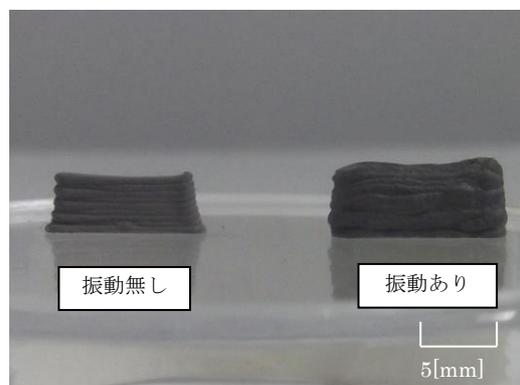


図 7 積層造形実験での造形物

振動の有無による形状の違いについていえば、振動を加えたものの方が大きく造形されている。これは、同じ吐出圧力でも吐出量が増えるためである。加振することで、さらに粘性の高い試料でも造形が可能である。

これらの結果から、超音波援用による積層造形が可能であること、また、加振によって粘性を下げて出力できるので、吐出後の形状を維持しやすい高い粘性を持つ分散液を従来よりも安定した条件で出力できることが分かった。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計 0 件）

〔学会発表〕（計 5 件）

- ① T. TATENO, A. KAKUTA, H. OGO, “Ultrasonic Vibration-Assisted Extrusion of Metal Powder Suspension for Additive Manufacturing”, Int. Conf. on Precision Engineering, 2016 年 11 月 14～16 日, アクトシティ浜松(静岡県浜松市), 発表確定
- ② 大胡疾風, 舘野寿丈, 角田陽, 超音波振動を援用したゲル材料の押し出しによるアディティブ・マニユファクチャリング, 日本機械学会年次大会, 2015 年 9 月 13～16 日, 北海道大学(北海道札幌市)
- ③ T. TATENO, A. KAKUTA, H. OGO, “Material Extrusion on Metallic Powder Suspension with Ultrasonic Vibration for Additive Manufacturing”, Int. Conf. on Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology, 2015 年 8 月 15～19 日, ハルビン(中国)
- ④ T. TATENO, H. OGO, A. KAKUTA, “Additive Manufacturing by use of Thixotropic Materials under Shaking Vibration”, Int. Conf. on Precision Engineering, 2014 年 7 月 23～25 日, ホテル日航金沢(石川県金沢市)
- ⑤ T. URABE, S. TOYOFUKU, T. TATENO, “Segmentation and Connection Design for Parallel Fabrication in Additive Manufacturing”, Int. Conf. on Precision Engineering, 2014 年 7 月 23～25 日, ホテル日航金沢(石川県金沢市)

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

- 出願状況（計 0 件）
- 取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.isc.meiji.ac.jp/~tateno/>

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

舘野 寿丈 (TATENO, Toshitake)

明治大学・理工学部・准教授

研究者番号：30236559

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし