

平成 30 年 6 月 20 日現在

機関番号：34416

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05881

研究課題名(和文) 高分子固体の実使用条件下における粘弾性を正確に測定する装置の開発

研究課題名(英文) Development of device for measurement of viscoelastic characteristics in high frequency range under the actual pressure condition.

研究代表者

小金沢 新治 (KOGANEZAWA, Shinji)

関西大学・システム理工学部・教授

研究者番号：60634681

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、固体の粘弾性特性を、高周波数領域までこれまでよりも精度よく測定できる装置の開発を行った。本装置は、実使用状態に圧力を変更することも可能である。また、粘弾性特性の周波数応答関数の周波数範囲を高めるために、固有振動モードの影響を補正する方法を提案し、その補正法を用いた場合の誤差率を求めた。開発装置を用いて天然ゴムの粘弾性特性を測定し、従来の測定装置であるRheogel E-4000による測定結果と比較を行った。その結果、Rheogel E-4000の測定可能範囲である1kHzまでは、測定結果はよく一致した。また、開発装置では6kHzまで、6倍に測定周波数を拡大することができた。

研究成果の概要(英文)：In this research, we propose a device that can directly measure the complex shear modulus and  $\tan \delta$  values of solid-state VE materials at high frequencies under pressure conditions. We also propose a method for compensating for the shear deformation mode resonance of VE materials based on the mass of the moving part, to gain a more accurate understanding of viscoelasticity in the high-frequency range, and discuss the causes of errors in the compensation method.

The VE properties of natural rubber (NR 65 IRHD) were measured using the proposed device and compensation method, and compared to those measured by commercial VE measurement equipment, the Rheogel E-4000. The shear modulus and  $\tan \delta$  could be measured reliably using the developed device in the frequency range from 300 Hz to 6 kHz, and they agreed in the frequency range from 300 Hz to 1 kHz. The prototype of the proposed device was able to enlarge the measurement frequency 6 times compared to the conventional equipment.

研究分野：機械工学

キーワード：粘弾性 レオロジー 測定装置 高周波数 加圧

## 1. 研究開始当初の背景

自動車のタイヤでは、制動性や燃費といった主要な性能が、直流成分から数十 MHz に及ぶ広い周波数範囲での粘弾性特性の影響を受ける。したがって、タイヤ開発においては、このような広い周波数帯において材料の粘弾性を把握することが重要である。このように、系の固有振動数と比べても非常に高い MHz 以上の周波数の材料の特性が、機械的な性能に大きく影響を与える例は少なくない。

粘弾性特性の計測において、測定できる最高周波数は、おもに次の二点によって制限される。一つは、測定装置あるいは測定系の固有振動数である。天然ゴムの測定を例としてあげれば、現行の粘弾性測定装置で測定した場合、装置の固有振動のため高くても 1kHz までしか測定することができない。そのため、より高周波数領域の特性については、温度を変えての測定結果に、時間-温度変換則を適用して求める方法が取られている。このとき、材料固有のガラス転移点によって測定温度の下限を決めることになる。低温での測定結果は、時間-温度変換において、高周波数の特性に相当するので、粘弾性を推定できる最高周波数は、ガラス転移点によって制限されることになる。これが二つ目の要因である。天然ゴムにおいては、ガラス転移点が約 $-25^{\circ}\text{C}$ であり、それに近い温度で 1kHz まで測定した場合でも、約 8MHz が測定の上限となる。

一方で、超音波測定法では 1 ~ 50 MHz の周波数範囲での測定が可能である。この方法では、原理上フィラーなどが混ぜられた不均一な材料においては、測定精度が低下してしまうはずである。しかし、それを比較して検証できるような別の測定手法がないため、測定精度については机上検討のみにとどまっておき、得られた測定結果はそのまま受け入れざるを得ない。したがって、この測定結果の正確さの検証のためにも、数十 MHz までの範囲で測定ができる別の手段の登場が期待されている。

## 2. 研究の目的

我々は、おもにゴムを念頭に置き、固体材料の動的粘弾性特性を、温度や加圧力をパラメータとして変化させて、10kHz 以上の高周波数まで測定できる装置を開発することを目的とした。これが実現すれば、例えば天然ゴムやブチルゴムでは、時間-温度変換則を用いて 100MHz に近い高周波領域の測定が可能となる。また、ゴムは一般に圧力を受けた状態で使用されることが多いが、無加圧状態とは粘弾性特性が異なるため、実用状態に近い加圧状態で測定しなければならない。こういった加圧環境下での粘弾性特性の測定が容易になる。さらに、開発する装置は、タイヤのようにフィラーが混在する材料であっても正確に測定ができるため、超音波測定法に変わる手段として期待できる。また、超音波測定法と相互的に精度を検証する手段となり得る。

## 3. 研究の方法

### (1) 固有振動数の高い測定装置の開発

従来の測定機よりも高い周波数領域における測定を正確に行うための装置は、固有振動数が高いことだけでなく、力と変位の間に僅かな時間の遅れも生じないように、摩擦や接触剛性の影響を取り除く必要がある。我々は、玉軸受のように摩擦やヒステリシスを有する案内機構を用いず、被測定材料の変形そのものを利用し、また非接触式の力・変位の検出手段を用いることで僅かな位相遅れも除外することとした。これらの改善策を取り入れて、従来よりも精度よく粘弾性特性を測定できる装置を開発した。

### (2) コンプライアンス特性の補正法の提案

動的測定法で力と変位の周波数応答を求めるとき、動作として期待する変形形状が支配的なモードシェイプである固有振動モードの影響を大きく受ける。特に粘性作用の強い材料では、固有振動数の  $1/5 \sim 1/10$  程度の周波数であっても、無視出来ないほど位相が遅れてしまうこともあり、損失弾性率や  $\tan \delta$  を大きく評価してしまう傾向がある。この問題を改善し、より高周波数まで精度よく測定するために、動的測定法によって得られた周波数応答関数の補正する方法を提案した。また、この補正法を用いて粘弾性特性を求めた場合の測定誤差の大きさを定量的に示した。そして、提案する補正法を用いたとき、DC から固有振動数までの周波数範囲において、一定の誤差範囲で貯蔵弾性率、損失弾性率、損失正接を求めることができることを示した。

## 4. 研究成果

### (1) 高周波粘弾性測定装置

本研究で提案する測定装置の写真および構造説明図をそれぞれ図 1 ~ 3 に示す。図 3 に示すように、被測定物である粘弾性材料は可動板の上下面に貼り付けられており、そしてそれら三層の積層体は、上下の固定部に貼り付けられている。可動板にはコイルが取り付けられており、そのコイルは磁気回路に挿入されている。コイルに電流を印加することで可動板が並進力を受け、それが粘弾性体をせん断変形させる力となる。このとき、上下の固定部は土台に対して剛に固定されており、理想的にはコイルで発生する外力に対して変位しない。コイルで発生する外力の大きさは、センス抵抗により測定された電流から、後述の方法で換算するので、非接触で力を測定できる。また、力が加えられたときの可動板の変位を LDV で測定することにより、粘弾性体のせん断剛性が測定できる。可動板を支持する部品は粘弾性体しか存在しておらず、接触剛性や摩擦の影響を完全に排除できているので、可動板の変位は、粘弾性体のせん断変形のみによって引き起こされている。したがって、高周波数領域の粘弾性の高精度測定が可能となる。

## (2) 周波数応答補正方法

上述の手順で測定した周波数応答関数を  $T(s)$  とする。また、測定した可動部質量（可動板+コイル）を  $m$  とする。ここで、 $U(s)$  を次式のように定義し、 $T(s)$ 、 $m$  を用いて求めれば、近似的に被測定材料のコンプライアンス特性が得られる。また、 $U(s)$  の逆数を取れば、材料の複素弾性率を求めることができる。

$$U(s) = \frac{T(s)}{1 - ms^2T(s)} \cong \frac{1}{cs + k} \quad (1)$$

$$K(s) = \frac{1}{U(s)} = k + j\omega c \quad (2)$$

本研究において提案した周波数応答補正法を用いて求められた貯蔵弾性率  $k$ 、損失弾性率  $\omega c$ 、損失正接  $\tan \delta$  の誤差率について見積もった。直流成分から可動板の並進モードの固有振動数までの周波数範囲における最大の誤差率は以下のようにあらわすことができる。なお、以下の式には、変位  $x$ 、力換算係数  $C_f$ 、電流  $I$ 、被測定材料の厚さ  $t$ 、面積  $A$ 、可動部質量  $m$  の、それぞれの誤差率を用いており、いずれも誤差の最大値を表している。上記の各項目の誤差確率が正規分布に従うとすれば、各項目の二乗和の平方根を用いたほうが、実際の誤差確率としては有効であり、以下の式では、誤差を大きめに見積もってしまうことになる。

$$\frac{\Delta G'}{G'} \cong \max \left( \left| \frac{\Delta X}{X} \right| + \left| \frac{\Delta C_f}{C_f} \right| + \left| \frac{\Delta I}{I} \right| + \left| \frac{\Delta t}{t} \right| + \left| \frac{\Delta A}{A} \right|, \right. \\ \left. \left| \frac{\Delta t}{t} \right| + \left| \frac{\Delta A}{A} \right| + \left| \frac{\Delta m}{m} \right| \right) \quad (3)$$

$$\frac{\Delta G''}{G''} \cong \left| \frac{\Delta X}{X} \right| + \left| \frac{\Delta C_f}{C_f} \right| + \left| \frac{\Delta I}{I} \right| + \left| \frac{\Delta t}{t} \right| + \left| \frac{\Delta A}{A} \right| \quad (4)$$

$$\frac{\Delta \tan \delta}{\tan \delta} \cong \left| \frac{\Delta X}{X} \right| + \left| \frac{\Delta C_f}{C_f} \right| + \left| \frac{\Delta I}{I} \right| + \left| \frac{\Delta m}{m} \right| \quad (5)$$

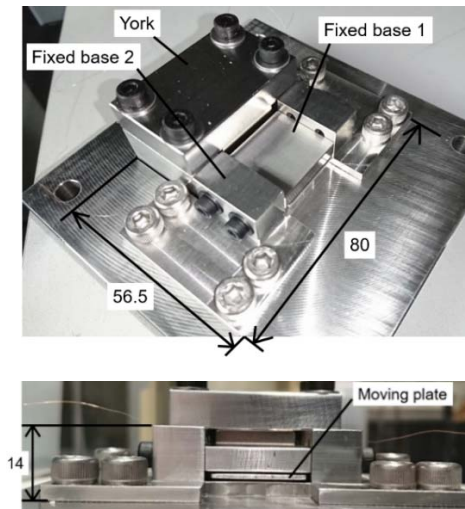


図1 粘弾性測定装置（概観）

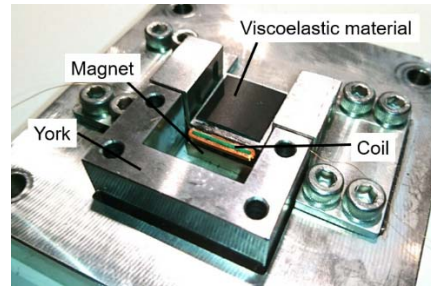


図2 粘弾性測定装置（上ベースを外す）

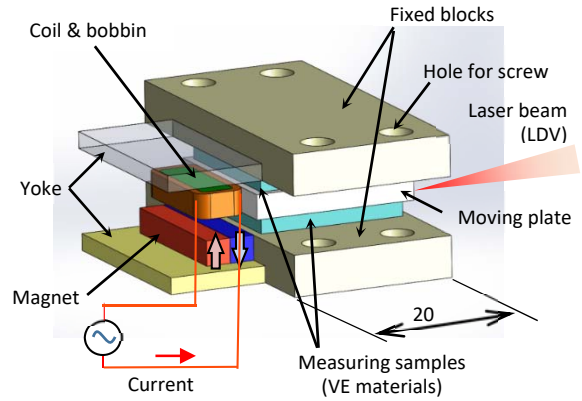


図3 粘弾性測定装置（構造説明図）

## (3) 測定手順

開発した装置、および補正法を用いて、複素弾性率を測定する手順は以下の通りである。

1. 被測定サンプルのサイズ（縦、横、厚さ）を測定する。また、可動部（可動板+コイル）の質量を測定する。測定誤差の推定に用いるために、平均値と標準偏差を得ておく。なお、サンプルのサイズは、固有振動数が 10 kHz 以上になるようにあらかじめ調整しておく。
2. 被測定物を可動板に貼り、図3のように測定装置内に組み込む。
3. 圧力センサを粘弾性体と上ベースの間に挟み、ボルトの締め付けトルクに対する圧力の関係を測定しておく。そして、圧力センサを取り外し、所望の圧力の値になるようにボルトの締め付けトルクを調整する。
4. 次に、電流と力の換算係数  $C_f$  を測定する。まず、図4(a)のようにロードセルと変位計を用いて、直流電流  $I$  をコイルに加えた時のロードセルの受ける力  $f$  と可動板の変位  $x_0$  を測定する。次いで、図4(b)のようにロードセルを取り除き、直流電流  $I$  に対する可動板の変位  $x_1$  を測定する。それらの結果から、次式を用いて  $C_f$  を求める。

$$C_f = \frac{F_{actual}}{I} = \frac{x_1}{x_1 - x_0} \cdot \frac{f}{I} \quad (6)$$

5. コイルに加える電流に対する可動板速度の周波数応答関数を LDV で測定する。こ

の際、LDVはできるだけカットオフ周波数の高いものを使用し、ローパスフィルタの特性がわかっている場合はその補正をする。

- 前項で示した補正法を用いて、周波数応答関数の補正を行う。式(1)(2)で得られた特性は、それぞれ複素コンプライアンス、複素剛性である。

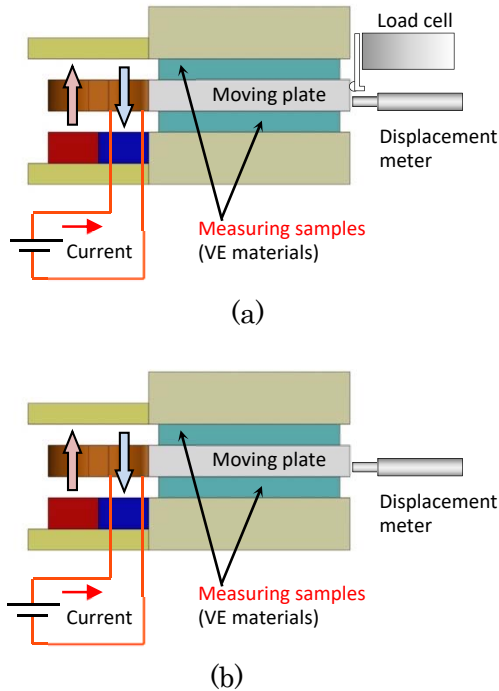


図4 電流-力換算係数の測定

#### (4) 天然ゴムの粘弾性の測定

本研究の測定装置を用いて天然ゴムを測定した結果を以下に示す。図5は、常温における周波数応答関数の測定結果である。黒線が測定した周波数応答関数  $T(s)$  である。また、赤、緑の線は、それぞれ上・下の固定部のコンプライアンス特性を表している。

精度の良い測定のためには、 $T(s)$ よりも上下固定部のコンプライアンスが20dB以上離れていることが望ましい。可動板の並進モードの固有振動数は11kHzであり、この装置では11kHzまでの測定が可能であるはずである。しかし、上ベースの振動モードが約7kHzに現れてしまい、6kHzまでが測定可能周波数の上限となってしまった。それでも、この装置を用いれば、従来の測定装置の6倍の周波数まで測定することが可能である。

図6に周波数応答の補正法を用いる前後の周波数特性の比較を示す。紺色の線は測定した  $T(s)$  であり、図5で示したものと同じである。また、赤線が補正を行った  $U(s)$  の特性を示している。約6kHzまでの周波数で固有振動モードの影響が除去された結果、1kHz以上のゲインがやや低下し、位相遅れが小さくなっていることがわかる。

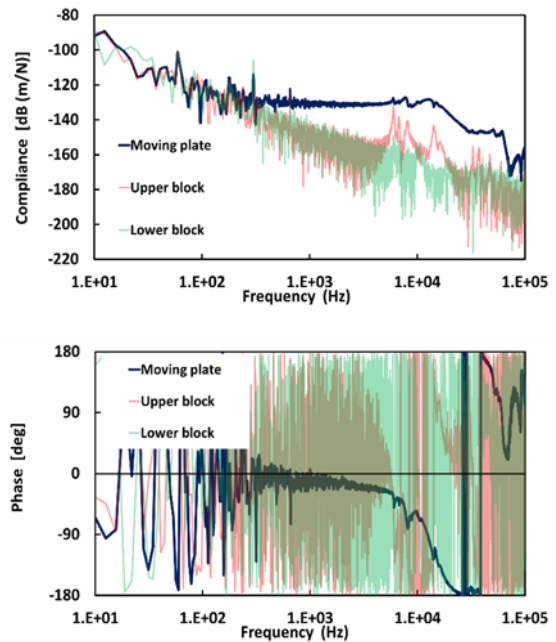


図5 測定した周波数応答関数 (コンプライアンス)

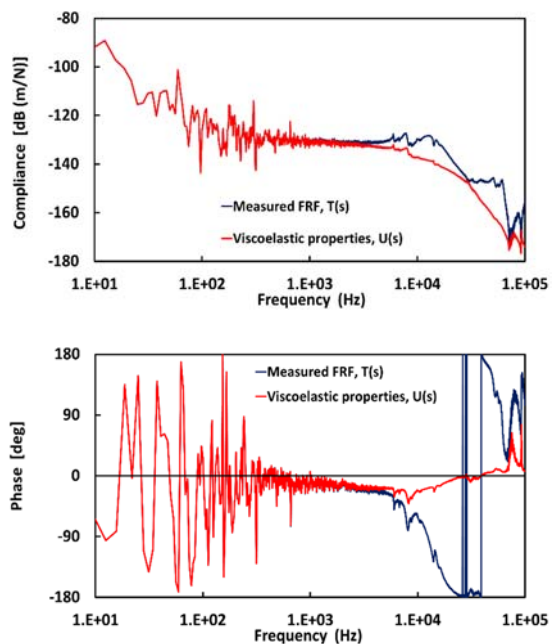


図6 補正法適用前後の比較

図6の  $U(s)$  を用いて、時間-温度変換測によって、高周波数領域の粘弾性特性を求めた。結果を図7~9に示す。これらの図には、UBM社製の粘弾性測定装置 Rheogel E-4000 での測定結果を比較としてプロットした。この装置での測定範囲は1kHzまでである。

本研究で開発した装置では、粘弾性特性を、50.5 MHzまで求めることができた。Rheogel E-4000での測定範囲が8.4 MHzまでであったことから、測定周波数を6倍に高めることができた。

貯蔵弾性率 (図7) は1 MHz以上の弾性率

が、開発した装置での測定結果の方が低く測定されている。Rheogel E-4000 での測定において MHz オーダーの結果を求めるための元となるデータは低温での測定結果であり、ガラス転移点に近い温度での測定結果であったため、やや剛性が高めに測定されたことが原因と考えられる。図 8、図 9 の損失弾性率、 $\tan \delta$  に関しては、Rheogel E-4000 で測定できる範囲において、ほぼ同等の結果が得られた。

この測定における個別の測定誤差要因について、次のように見積もられた。

$|\Delta m/m| < 0.01$ ,  $|\Delta A/A| < 0.01$ ,  $|\Delta t/t| < 0.01$   
 $|\Delta X/X| < 0.01$ ,  $|\Delta I/I| < 0.02$ ,  $|\Delta C_f/C_f| < 0.03$ 。  
 したがって、貯蔵弾性率、損失弾性率、損失正接の DC~6kHz までの誤差率は、それぞれ、8%、8%、7% 以下であるといえる。

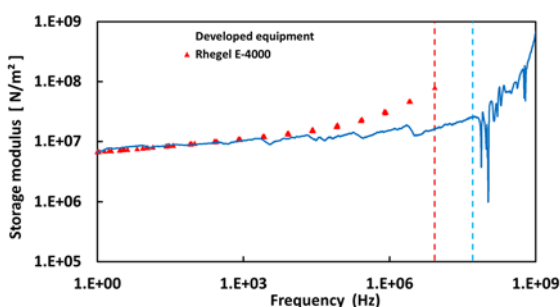


図 7 貯蔵弾性率 (P=0.4MPa)

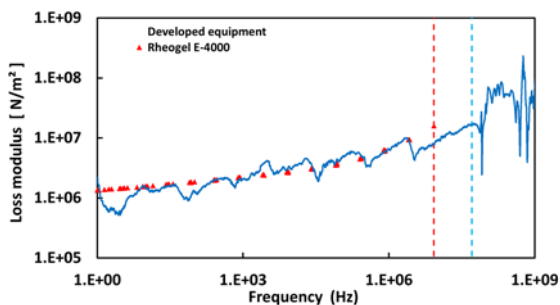


図 8 損失弾性率 (P=0.4MPa)

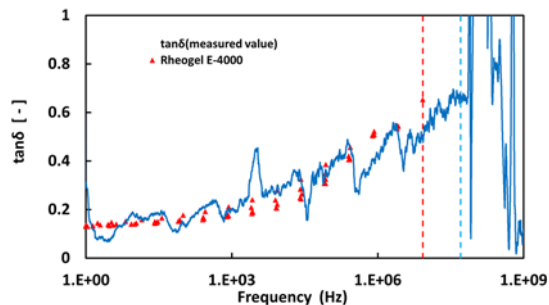


図 9  $\tan \delta$  (P=0.4MPa)

#### (5) 加圧環境下における粘弾性の測定

圧力を変化させて、粘弾性特性の測定を行い、時間-温度変換則によって高周波数までの粘弾性特性を求めた。図 10~図 12 は天

然ゴムの加圧力の変化に対する粘弾性特性を示している。加圧によって、貯蔵弾性率、損失弾性率が増加する傾向が確認できた。一方、 $\tan \delta$  は加圧によって特徴的な変動がなく、概ね一定の値をとることが確認された。

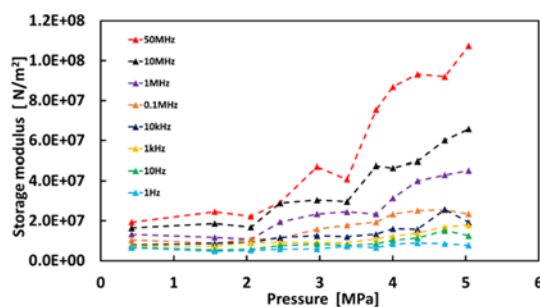


図 10 加圧力と貯蔵弾性率の関係

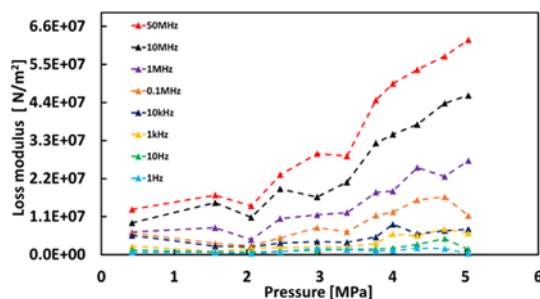


図 11 加圧力と損失弾性率の関係

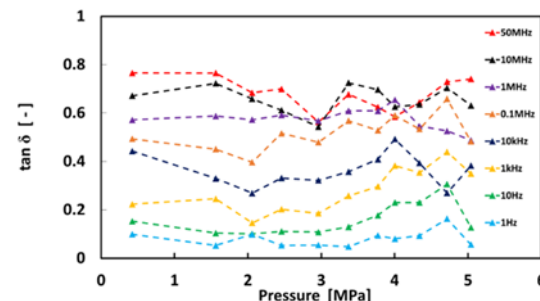


図 12 加圧力と  $\tan \delta$  の関係

#### (6) 成果のまとめと課題

本研究で開発した装置と周波数応答補正法を用いて、天然ゴムの粘弾性特性の測定を行い、従来装置の 6 倍となる 6kHz まで粘弾性特性を直接測定できた。これによって、時間-温度変換則を適用することで 50.5 MHz まで測定することができた。また、測定された値は、従来装置で測定できる周波数範囲においては、その値とよく一致していた。また、加圧力を 0.4 MPa から 5.0 MPa の範囲で変化させながら粘弾性特性の測定も可能であり、実際の使用環境下における特性を、これまでより正確に測定することが可能になったといえる。

目標としていた 10kHz には届かなかったが、この理由は上ベースの振動モードが約 7kHz

に現れてしまったことが原因である。この点を改善することで、さらに1.5～2倍程度まで周波数を高めることが可能となる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

(1) Shinji Koganezawa, Yuta Katsuta, Renguo Lu, Hiroshi Tani, and Norio Tagawa, "Device for direct measurement of dynamic viscoelastic properties of solid-state materials at frequencies higher than 1 kHz," Springer, Rheologica Acta, Volume 56, Issue 5, pp 477–486, May 2017. 査読あり。

〔学会発表〕(計5件)

(1) 勝田 佑太, 小金沢 新治, ほか「高周波粘弾性の直接測定法に関する研究」、日本機械学会 IIP2018 情報・知能・精密機器部門講演会、2018年

(2) 勝田 佑太, 小金沢 新治, ほか「高周波数領域における粘弾性の直接測定法に関する研究」、日本機械学会 IIP2017 情報・知能・精密機器部門講演会、2017年

(3) Shinji Koganezawa, "Study on the direct measurement of viscoelastic characteristics in the high-frequency range," euspen's 16<sup>th</sup> International conference & exhibition, 日本機械学会 2016 年度年次大会、2016年。

(4) 小金沢 新治, ほか「高周波数領域における粘弾性の直接測定法に関する研究」  
2016年

(5) Shinji Koganezawa, "Development of equipment for direct measurement of viscoelastic characteristics in high-frequency range," The 6th TSME International Conference on Mechanical Engineering、2015年

〔その他〕

ホームページ:

<http://www2.kansai-u.ac.jp/sekkei1/>

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

小金沢 新治 (KOGANEZAWA Shinji)

関西大学 システム理工学部 教授

研究者番号: 60634681