

令和 3 年 4 月 22 日現在

機関番号：32689

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01351

研究課題名(和文) 構造最適化・積層造形・毛管現象による三次元負熱膨張Ti/Mg複合材料の開発

研究課題名(英文) Development of negative thermal expansion composite using structural optimization, additive manufacturing and capillary action

研究代表者

竹澤 晃弘 (Takezawa, Akihiro)

早稲田大学・理工学術院・准教授

研究者番号：10452608

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：近年の産業技術の発達に伴い、熱膨張は極めて重要な現象となっている。熱膨張制御の一つの手法として、温めると弾性的に縮む負熱膨張材料が注目を集めている。負熱膨張材料開発の一つのアプローチとして、熱膨張率の異なる複数の材料と空孔を適切にレイアウトすることで、負熱膨張を生み出す手法がある。申請者らの研究グループは、汎用のマルチマテリアル3Dプリンタを用い、平面的な負熱膨張を生み出す複合材料を開発した。ただし、この複合材料は原材料の温度依存性のため、設計した負熱膨張を実現できる温度帯が極めて狭いという問題点がある。そこで本研究では光硬化性樹脂ではなく熱的に性質が安定した金属で負熱膨張複合材料を作成した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光学機器や半導体製造装置、精密加工機器においては、ナノメートルレベルの熱変形が致命的になる場合があり、その適切な制御は大きな工学的課題である。熱膨張制御の一つの手法として、温めると弾性的に縮む負熱膨張材料が注目を集めている。一部の特殊な化合物は負の熱膨張を示しその探索が盛んに行われてきたが、負熱膨張の大きさや発生する温度帯は化合物自体の本質的な特性に依存する部分が多く、それを意図的に設計することは未だ困難である。これに対し、本研究で取り組んだ、熱膨張率の異なる複数の材料と空孔を適切にレイアウトすることで負熱膨張を生み出す手法は、負熱膨張特性や剛性が弾性力学で議論できるためその設計が可能である。

研究成果の概要(英文)：With the recent development of industrial technology, thermal expansion has become a significant phenomenon. Negative thermal expansion materials, which shrink elastically when heated, are attracting attention as a method of controlling thermal expansion. One approach to developing negative thermal expansion materials is to create negative thermal expansion by appropriately laying out multiple materials with different thermal expansion coefficients and vacancies. We have developed a composite material that produces planar negative thermal expansion using a general-purpose multi-material 3D printer. However, due to the temperature dependency of the raw material, the temperature range in which the designed negative thermal expansion can be realized is narrow. In this study, we prepared negative thermal expansion composites using thermally stable metals instead of photocurable resins.

研究分野：構造最適化

キーワード：負熱膨張材料 積層造形 構造最適化

1. 研究開始当初の背景

近年の産業技術の発達に伴い、「熱膨張」は極めて重要な現象となっている。光学機器や半導体製造装置、精密加工機器においては、ナノメートルレベルの熱変形が致命的になる場合があり、その適切な制御は大きな工学的課題である。熱膨張制御の一つの手法として、温めると弾性的に縮む「負熱膨張材料」が注目を集めている。一部の特殊な化合物は相転移等の現象に伴い、負の熱膨張を示し、その探索が盛んに行われてきた。しかし、負熱膨張の大きさや発生する温度帯は化合物自体の本質的な特性に依存する部分が多く、それを意図的に設計することは未だ困難である。

これに対し、負熱膨張材料開発の全く異なるアプローチとして、熱膨張率の異なる複数の材料と空孔を適切にレイアウトすることで、負熱膨張を生み出す手法がある。代表的なメカニズムは、異なる熱膨張率を有する材料を積層することでバイメタルに似た曲げを生じさせ、さらにその曲げを空孔を含む弾性変形メカニズムを通じ、材料の巨視的な(マクロの、見かけ上の)負熱膨張へと変換することにある。この手法であれば、負熱膨張特性や剛性が弾性力学で議論できるため、その設計が可能である。ただし、優れたメカニズムの設計法やそれを忠実に再現する高度な製造法が必要になる。申請者らの研究グループは、設計を性能の良い部材形状を数値計算により自動で生み出す構造最適化法で行い、製造は汎用のマルチマテリアル樹脂積層造形装置(3Dプリンタ)を利用するという方法で、平面的な負熱膨張を生み出す複合材料を開発した[1]。この複合材料は汎用機器で製造可能という大きな利点があるが、材料である光硬化性樹脂の熱膨張特性は温度依存性が高くかつ不安定なため、設計した負熱膨張を実現できる温度帯が極めて狭いという問題点がある。

2. 研究の目的

以上の背景に基づき、本研究では光硬化性樹脂ではなく熱的に性質が安定した金属で負熱膨張複合材料を作成することを目指す。そして、負熱膨張を実現できる温度帯を拡大する。鍵となる発想は、複合材料を一度のプロセスで造形するのではなく、下地となる金属構造を作成し、それに二段階目のプロセスによりもう一種類の金属を吸着させるという多段階工程をとることにある。

3. 研究の方法

当初の計画では積層造形でチタン(Ti)の下地を作成し、それに溶融時に濡れ性の高いマグネシウム(Mg)を毛管現象により部分的に結合させる多段階プロセスを考えていた。しかし、Ti及びMgは極めて反応性が強く、試作実験を試みる過程でいずれも申請者の研究環境で扱うには安全性に問題があると判断し、代替となる金属を検討した。組み合わせる二種類の金属は、線膨張係数(CTE)に大きな差があることが望ましい。その結果、錫(Sn, CTE: 23.9×10^{-6} [1/K])と亜鉛(Zn, CTE: 39.7×10^{-6} [1/K])を選定した。また、この組み合わせは互いの濡れ性が低いということもなく、複合材料を形成するのに問題はない。

積層造形では、直接対象を造形する他に、造形したい対象と同型の空孔を含む型を造形し、鑄造に用いるという手法も良く用いられている。そこで本研究では積層造形で二種類の型を造形し、二段階の鑄造により錫と亜鉛で構成される負熱膨張複合材料を形成する。

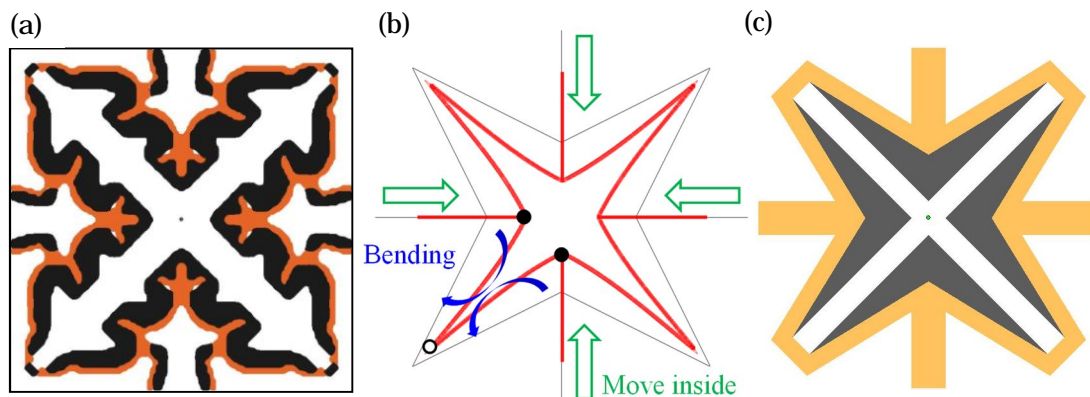


図1 負熱膨張複合材料の構造。(a) 先行研究で用いた構造。(b) メカニズム。(c) 今回の研究で用いる構造。線膨張係数が低い方の材料が橙色で、高い方の材料が黒色である。

4. 研究成果

まず、複合材料の構造設計を行った。申請者らが先行研究で開発した負熱膨張複合材料を図 1(a)に示す。この構造は図 1(b)に示すように、バイメタルのような曲げを生み出す部材がヒンジで結合されたものと考えられる。この機構をなるべく簡易な構造で実現できる構造として、図 1(c)に示す構造を設計した。なお、寸法等は有限要素法を用いた構造最適化により最適な値を決定している。Sn と Zn の物性値は表 1 に示す値を用いた。図 2 に有限要素法で計算したこの構造の熱変形図を示す。確かに継手部分が内側に變形しており、見かけ上の負熱膨張が実現できていることがわかる。なお、このときの実行的 CTE は $-12.3 \times 10^{-6} [1/K]$ である。

表 1 設計に用いた物性値

	Sn	Zn
ヤング率[GPa]	50	108
ポアソン比	0.36	0.25
CTE[1/K]	23.9×10^{-6}	39.7×10^{-6}

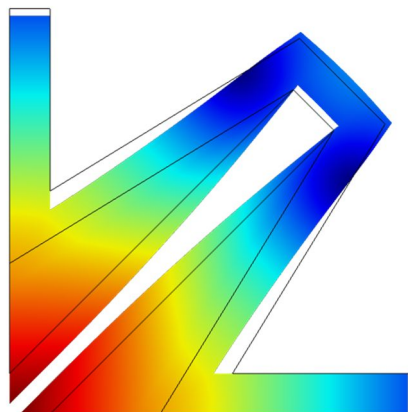


図 2 負熱膨張複合材料の熱変形図。対称性を考慮し 1/4 の領域でのみ解析を行っている。

次に、造形方法について検討を行った。本研究では以下のような手順で二段階での鋳造を行った。1：金属積層造形装置で型を作り、Zn 部を鋳造する。2：光硬化性樹脂による積層造形装置で、耐熱性の材料を用いて Sn 部のための型を造形する。3：手順 2 で作成した型に Zn 部を埋め込み、空孔部に Sn の湯を注ぐ。4：型をばらす。なお、鋳造を容易にするため、ユニットセルの大きさは 40mm とした。図 3 に第二段階目の鋳造を行う前の型と、完成したユニットセルの試験片を示す。二種類の金属で意図した形状が確かに実現できている。

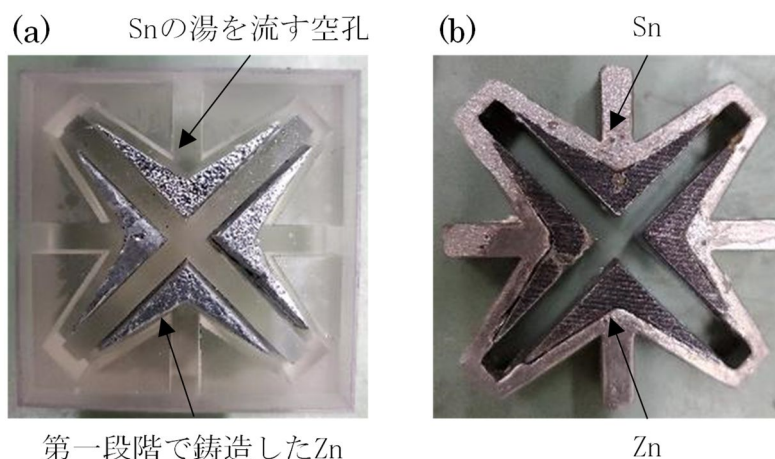


図 3 (a) 2 段階目の鋳造を行う前の型。(b) 完成した試験片。

最後に、作成した試験片をホットプレートで加熱し、レーザー変位計で熱変形を計測した。結果を図 4 に示す。確かに見かけ上の負のひずみが生じており、負熱膨張が実現できていることがわかった。100 を超えた際に挙動が大きく変化しているが、これは Sn のヤング率が温度依存で低下したためと考えられる。しかし、曲げを生み出す原動力となる高熱膨張材料の Zn はこの温度域では物性に大きな影響はなく、依然として負熱膨張は実現できている。直線近似式を求めることにより、低温域での実行的 CTE は約 $-4.8 \times 10^{-7} [1/K]$ 、高温域での実行的 CTE は約 $-2.1 \times 10^{-6} [1/K]$ となった。樹脂での負熱膨張複合材料は室温 ~ 約 45 と負熱膨張域が極めて狭かったのに対し[1]、本研究で開発した金属製負熱膨張複合材料は室温 ~ 約 220 と広い範囲で負熱膨

張を示し、より実用性が向上している。また、本研究では安全性の問題から当初予定していた Ti と Mg との組み合わせでの検証はできていないが、開発した多段階鋳造方式は汎用的な手法であり、原理的にはこれらの金属にも適用できる。このような金属で負熱膨張複合材料を開発するという試みは世界的にも珍しい。しかし、本提案手法では三次元化という目標は未だ達成できていない。今後は三次元化という点に注力し、検討を継続していく必要がある。

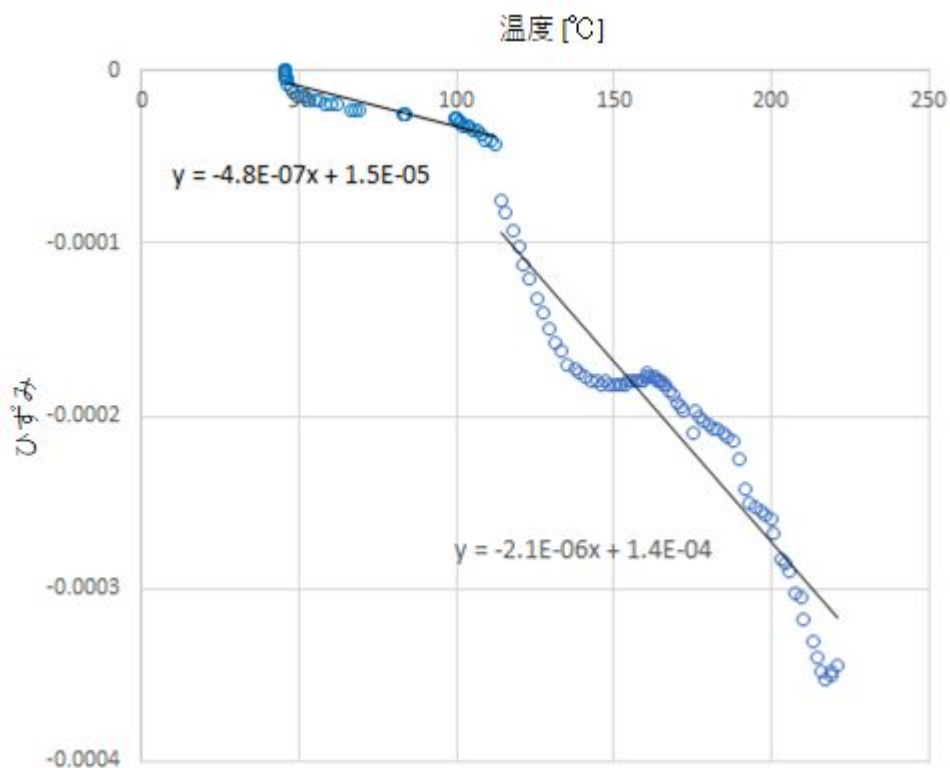


図4 ユニットセル試験片の熱ひずみ計測結果

<引用文献>

- [1] A. Takezawa, M. Kobashi, M. Kitamura, Porous composite with negative thermal expansion obtained by photopolymer additive manufacturing, APL Mater., 3 (7), (2015), 076103.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Takezawa Akihiro, Zhang Xiaopeng, Kato Masaki, Kitamura Mitsuru	4. 巻 28
2. 論文標題 Method to optimize an additively-manufactured functionally-graded lattice structure for effective liquid cooling	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Additive Manufacturing	6. 最初と最後の頁 285 ~ 298
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.addma.2019.04.004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Takezawa Akihiro, Zhang Xiaopeng, Kitamura Mitsuru	4. 巻 143
2. 論文標題 Optimization of an additively manufactured functionally graded lattice structure with liquid cooling considering structural performances	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 International Journal of Heat and Mass Transfer	6. 最初と最後の頁 118564 ~ 118564
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2019.118564	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Takezawa Akihiro, Zhang Xiaopeng, Tanaka Takuo, Kitamura Mitsuru	4. 巻 34
2. 論文標題 Topology optimisation of a porous unit cell in a fluid flow considering Forchheimer drag	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 International Journal of Computational Fluid Dynamics	6. 最初と最後の頁 50 ~ 60
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/10618562.2019.1705968	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Guo Honghu, Takezawa Aikihiro, Honda Masanori, Kawamura Chikara, Kitamura Mitsuru	4. 巻 175
2. 論文標題 Finite element simulation of the compressive response of additively manufactured lattice structures with large diameters	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 109610 ~ 109610
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2020.109610	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takezawa Akihiro, To Albert C., Chen Qian, Liang Xuan, Dugast Florian, Zhang Xiaopeng, Kitamura Mitsuru	4. 巻 370
2. 論文標題 Sensitivity analysis and lattice density optimization for sequential inherent strain method used in additive manufacturing process	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering	6. 最初と最後の頁 113231 ~ 113231
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cma.2020.113231	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計3件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 A. Takezawa
2. 発表標題 Prediction of the nano-scale elastic mechanism of the large negative thermal expansion of $\text{Ca}_2\text{Ru}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_4$ -y ceramics by topology optimization
3. 学会等名 OptoX-NANO 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Takezawa
2. 発表標題 Lattice distribution optimizations for additive manufactured functional structures
3. 学会等名 ACSMO 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 A. Takezawa
2. 発表標題 Porous Composite with Arbitrary Planer Thermal Expansion by Multi-Material Topology Optimization and Additive Manufacturing
3. 学会等名 2018 MRS Spring Meeting & Exhibit (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	竹中 康司 (Takenaka Koshi) (60283454)	名古屋大学・工学研究科・教授 (13901)	
研究 分担者	小橋 真 (Kobashi Makoto) (90225483)	名古屋大学・工学研究科・教授 (13901)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
米国	ピッツバーグ大学			
中国	大連理工大学			