

令和 5 年 6 月 1 日現在

機関番号：11501

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19H02019

研究課題名（和文）圧電高分子マルチプリンタによる3次元折り紙構造センサデバイスの開発

研究課題名（英文）Development of piezoelectric polymer printer for 3D origami structure sensor device

研究代表者

村澤 剛（Murasawa, Go）

山形大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号：90348467

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）：3次元任意形状に造形可能な高分子センサデバイスの創成をするために、(1)圧電高分子フィルムセンサデバイスの作成技術を確立するとともに、(2)圧電高分子フィルムセンサデバイスの高性能化を試みた。さらに、(3)3次元構造の圧電高分子センサデバイスを開発するとともに、その性能を評価した。最終的に、本技術により、材料創成という視点からのみでは到達不可能な超高性能センサ・アクチュエータデバイスを開発することを目指す。

研究成果の学術的意義や社会的意義

プリントに最適な圧電高分子インクを創成するとともに、独自開発の圧電高分子プリンターを用いてプリンテッド圧電高分子フィルムセンサデバイスの開発をおこなった。新規材料の創成と任意構造に印刷可能なセンサデバイスの作成の成果は、先端的かつ独自性が高い研究である。また、本研究成果から得られた印刷可能なセンサデバイスを社会実装することで、SDGsにかかる環境発電技術などに大きく貢献していくことができる。

研究成果の概要（英文）：To develop a polymer sensor device capable of shaping into arbitrary three-dimensional forms, we aimed to (1) establish the fabrication technique for piezoelectric polymer film sensor devices and (2) enhance the performance of piezoelectric polymer film sensor devices. Additionally, we developed (3) a three-dimensional structured piezoelectric polymer sensor device and evaluated its performance.

研究分野：実験力学，スマートマテリアル

キーワード：圧電高分子材料

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

本提案研究の着想は、これまでに申請者が受けてきた以下の科学研究費補助金の助成が礎となっている。

『若手研究 (B)』新しい圧電高分子のβ型結晶構造化手法の発見:

申請者は、Poly(vinylidene fluoride) (以下、PVDF) にナノ Clay を均一分散化させた溶液を乾燥するだけで結晶構造をβ型結晶化 (センサ・アクチュエータ化) させる方法を発見した。また、研究過程で、PVDF のみの溶液だけでも液滴を滴下・乾燥するだけで結晶構造をβ型に変化させられることも発見した。(Murasawa G. et al., *J Mater Eng Perform* **26**, 2017)

『基盤研究 (B)』圧電高分子フィルムマルチプリンタとその場結晶構造測定システムの開発に成功:

若手研究 (B) の成果をもとに、液滴の滴下・乾燥で任意形状のフィルムを造形可能な Piezoelectric Polymer プリンタ (P-p プリンタ) を開発し、圧電高分子フィルムを任意形状にプリントすることが可能となった。さらに、P-p プリンタにシリンジポンプとインクジェットヘッドを Dual 搭載させた圧電高分子マルチプリンタを開発した。一方で、プリント中の PVDF 液滴の結晶構造変化をその場観察可能な結晶構造測定システムも開発した。この成果により、飛躍的に材料創成技術 (PVDF インク作成技術) が進歩した。(Murasawa G., *IUTAM symposium on Mechanics of Electro/Magneto-active Materials and Structures*, 2018-8)

本申請提案は、「2次元構造作成の P-p フィルムプリンタを発展させることで、任意形状に造形可能な3次元構造センサデバイスの開発が可能になるのではないかと」という着想から発案された。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、3次元任意形状に造形可能な高分子センサデバイスの創成を新提案技術により達成することである。具体的には、(1) 圧電高分子フィルムセンサデバイスの作成技術を確立するとともに、(2) 圧電高分子フィルムセンサデバイスの高性能化を試みる。さらに、(3) 3次元構造の圧電高分子センサデバイスを開発するとともに、その性能を評価していく。最終的に、本技術により、材料創成という視点からのみでは到達不可能な超高性能センサ・アクチュエータデバイスを開発することを目指す。

## 3. 研究の方法

3次元任意形状に造形可能な高分子センサデバイスを創成する目標に向けて、申請期間内で、次の3つの課題にチャレンジしていく。

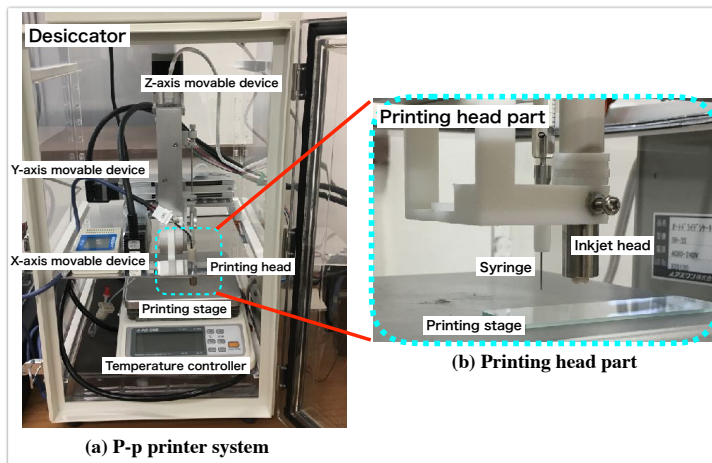
- (1) 電極作成機能付の圧電高分子マルチプリンタを開発し、圧電高分子フィルムセンサデバイスの作成技術を確立する。
- (2) 新提案技術の「帯電分子配向法」により、圧電高分子フィルムセンサデバイスの分極処理技術を確立し、その高性能化を試みる。
- (3) 新提案の「折り紙を応用した3次元構造化の手法」を用いることで、3次元構造の圧電高分子センサデバイスを開発するとともに、その性能を評価する。

## 4. 研究成果

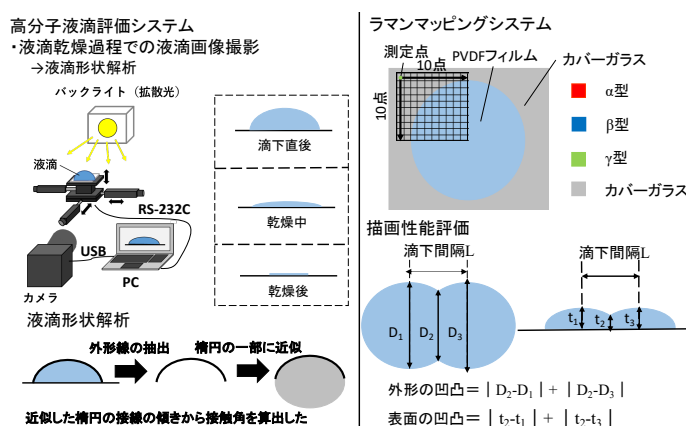
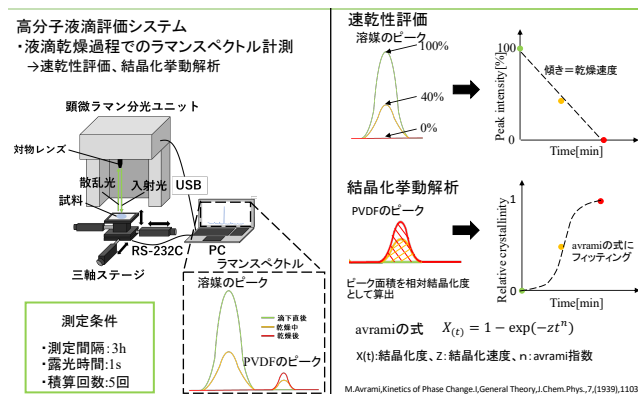
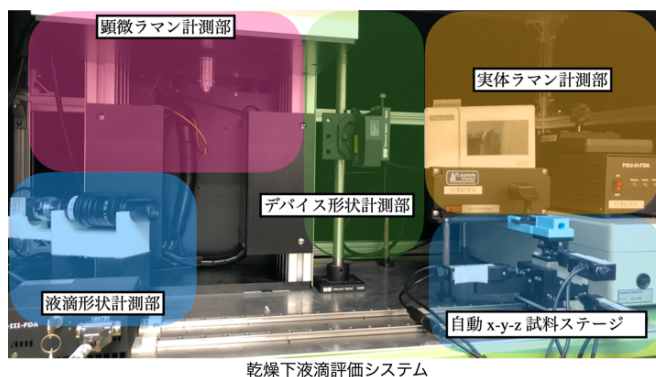
【(1) 電極作成機能付の圧電高分子マルチプリンタの開発と、圧電高分子フィルムセンサデバイスの作成技術の確立】

(富山皓生、山田典靖、村澤剛 "その場ラマンスペクトルの開発と速乾性 PVDF インクの結晶構造解析" 日本実験力学学会 2021 年度年次講演会、青森、2021 年 8 月)

「電極作成機能付の圧電高分子マルチプリンタの開発」と「圧電高分子フィルムセンサデバイスの作成技術の確立」を試みるとともに、「圧電高分子フィルムセンサデバイスの試作」を行うことを目的とした。具体的な研究成果としては、自作の圧電高分子マルチプリンタに電極作成用のインクジェットヘッドを追加することにより、PVDF フィルムの上下面に電極をプリント可能にした(右図)。また、電極用インク(もしくは作成する PVDF インク)に対するインクジェットヘッドの吐出条件を簡易に決定可能な、独自の「インクジェット吐出条件決定システム」も開発した。これにより、任意形状の電極や多種の PVDF フィルムを高精度でプリントすることが可能となった。結果として、15mm×15mm のガラス基盤上に、電極/PVDF/電極の積層構造の圧電高分子フィルムセンサデバイスを作成することができた。デバイスのプリント形状誤差 5%以下であった。

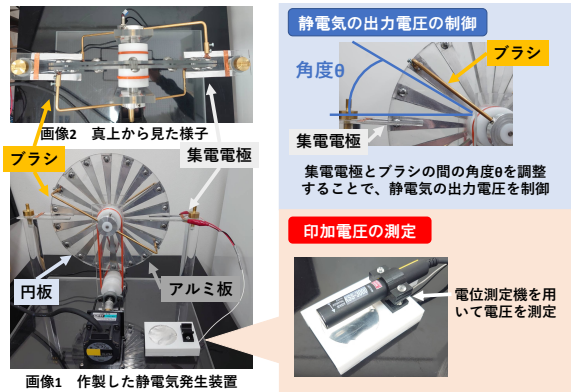


次に、ラマン分光計測を基礎として、PVDF 溶液の乾燥過程での乾燥速度と結晶構造のその場計測システム(右写真)を構築した。このシステムは、3軸ステージとラマン分光器を PC から同時制御することで、乾燥中の PVDF 溶液の 1 液滴に対して計測位置とレーザーの計測条件の自動最適化を行うことができる。また、得られた PVDF 溶液 1 液滴の乾燥中のラマンスペクトルデータを解析することで、乾燥中の「乾燥速度」、「PVDF 結晶の成長」を評価することが可能になった(下図)。また、ラマン分光系以外に、乾燥中の液滴形状を評価することも可能である。これらの制御・計測・解析は、Matlab で作成された独自のソフトウェアで行うことができる。

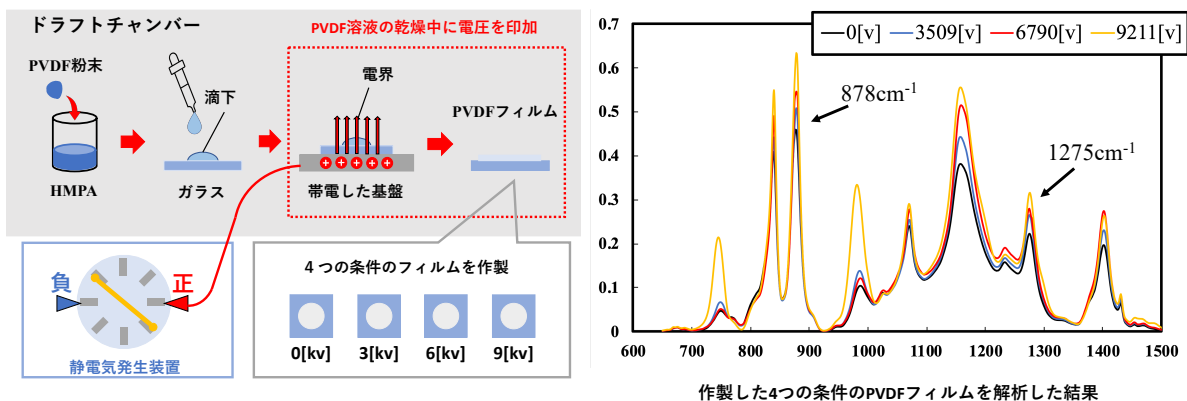


【(2) 圧電高分子フィルムセンサデバイスの分極処理技術の確立】

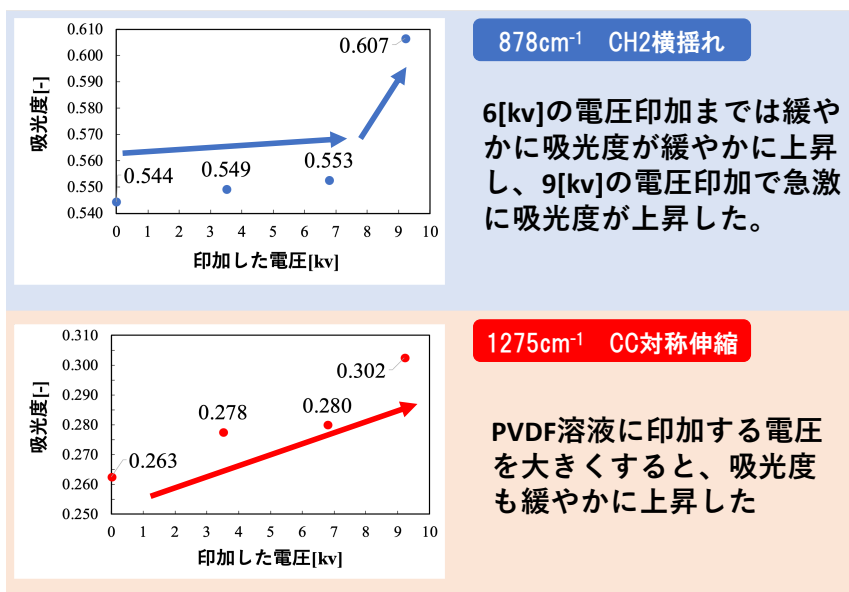
プリントされた PVDF フィルムは、分極処理(ポーリング)を施すことで高い圧電特性を引き出すことができる。この処理は、PVDF 中の分子鎖の H 原子と F 原子の向きを揃えるために行われる。一般的に、作成された β 型 PVDF フィルムに対して、百数十 °C の温度下で数百 V の電圧を印加することにより、分極処理は行われる。しかしながら、この手法では、フィルム作成後に別途の処理が必要となってしまう。そこで、本申請研究では、「帯電分子配向法」を提案した。静電気発生装置と静電気測定器を用いて、任意電圧の静電気を発生させるシステム(帯電分子配向システム)のプロトタイプ(右図)を構築した。



また、帯電させた基盤上に PVDF 溶液を滴下し、溶液を乾燥・固化(溶媒キャスト)することで分極処理された PVDF フィルムを形成させた。さらに、乾燥中の PVDF フィルムに帯電させる方法(基盤と液滴のどちらを帯電させるか?・帯電のタイミングは?・帯電量は?など)を模索した。分極の評価には、FTIR による吸光度を用いた。分極の量が大きいほど、ある波数において大きな吸光度を示す。



作製した4つの条件のPVDFフィルムを解析した結果



878cm<sup>-1</sup> CH<sub>2</sub>横揺れ

6[kV]の電圧印加までは緩やかに吸光度が緩やかに上昇し、9[kV]の電圧印加で急激に吸光度が上昇した。

1275cm<sup>-1</sup> CC対称伸縮

PVDF溶液に印加する電圧を大きくすると、吸光度も緩やかに上昇した

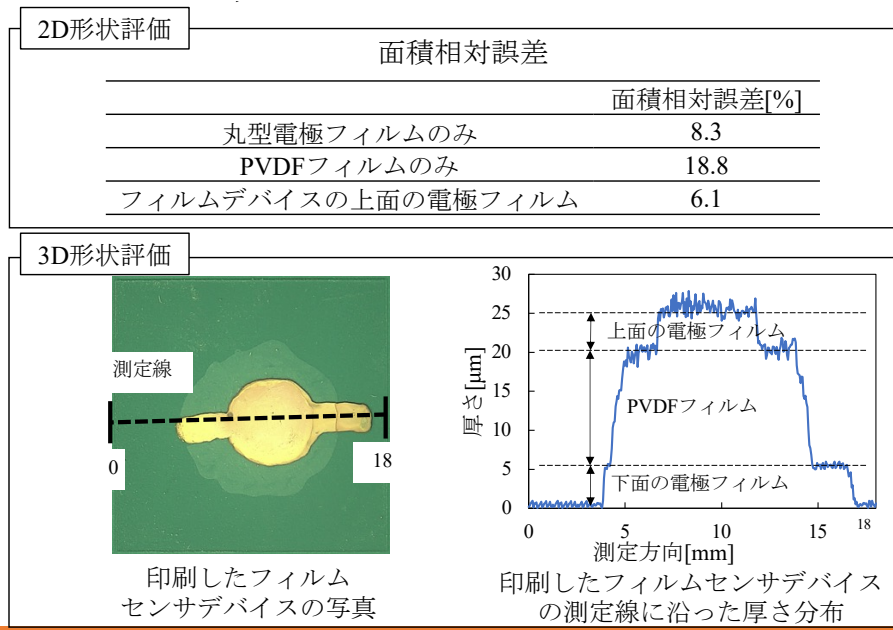
### 【(3) 3次元構造圧電高分子センサデバイスの作成と評価】

(浦山貴行、村澤剛 "インクジェットヘッド搭載圧電高分子プリンタを用いた PVDF フィルムデバイスの印刷" 日本実験力学会 2021 年度年次講演会、青森、2021 年 8 月)

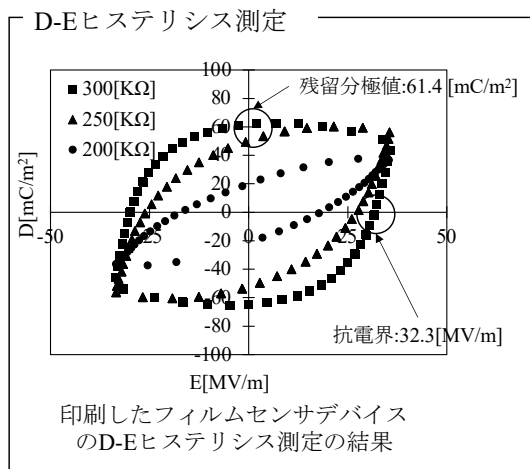
PVDF フィルムと電極を複数積層して 3 次元構造体を造形することを試みた。6 層構造の PVDF 積層デバイスの作成に成功した。

作成した積層圧電高分子センサフィルムデバイスに力学的負荷を与え、生じた電圧を計測するといった、センサデバイスの評価手法の構築を行うとともに、任意形状のプリンテッド積層圧電高分子センサフィルムデバイスの性能評価（形状評価、圧電性評価（D-E ヒステリシス）、振動センシング特性評価）を試みた。下図にその結果を示す。評価手法についてはまだ改善の余地が多いが、作成されたプリンテッド積層圧電高分子センサフィルムデバイスに対して、振動センサとしての機能を確認することができた。

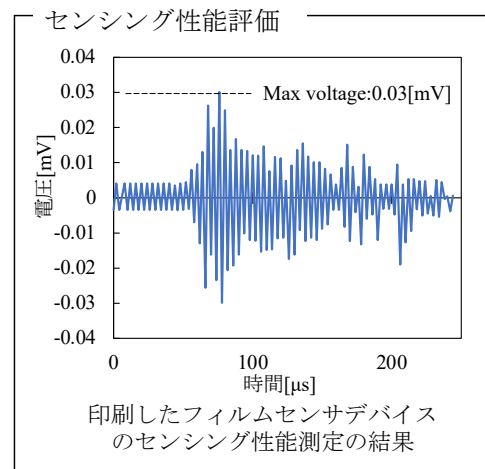
#### 【形状評価】



#### 【圧電性評価 (D-E ヒステリシス)】



#### 【振動センシング特性評価】



## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Manabu Seino, Lixin Jiang, Zhenjun Yang, Kenichi Katabira, Tadaaki Satake, Fumio Narita and Go Murasawa	4. 巻 10
2. 論文標題 Impact energy harvesting by Fe-Co fiber reinforced Al-Si matrix composite	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Materialia	6. 最初と最後の頁 100644
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/psr.202000281	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 Zhenjun Yang, Zhenjin Wang, Manabu Seino, Daisuke Kumaoka, Go Murasawa and Fumio Narita	4. 巻 14
2. 論文標題 Twisting and Reverse Magnetic Field Effects on Energy Conversion of Magnetostrictive Wire Metal Matrix Composites	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physica Status Solidi (RRL)	6. 最初と最後の頁 2000281
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.mtl.2020.100644	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 Yamada Noriyasu, Shiratori Atsuki, Murasawa Go	4. 巻 28
2. 論文標題 A poly(vinylidene fluoride) film printing system using solution droplet casting	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Smart Materials and Structures	6. 最初と最後の頁 044003 ~ 044003
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-665X/ab0842	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 村澤剛	4. 巻 54
2. 論文標題 圧電高分子専用デュアルヘッドプリンタ	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 設計工学 特集（3Dプリンタの現状とものづくりの未来）	6. 最初と最後の頁 356-359
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
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 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 浦山貴行、村澤剛
2. 発表標題 インクジェットヘッド搭載圧電高分子プリンタを用いたPVDF フィルムデバイスの印刷
3. 学会等名 日本実験力学会 2021年度年次講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 富山皓生、山田典靖、村澤剛
2. 発表標題 その場ラマンスペクトルの開発と速乾性PVDFインクの結晶構造解析
3. 学会等名 日本実験力学会 2021年度年次講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山田典靖, 村澤剛, 荒木稚子, 荒居善雄
2. 発表標題 高濃度PVDF溶液を用いた圧電高分子フィルムの作成
3. 学会等名 日本機械学会 M&M2019 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 村澤剛, 鈴木健斗, 山田典靖
2. 発表標題 プリンタブル圧電高分子インクの創成
3. 学会等名 日本機械学会 2019年度年次大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

村澤研究室ホームページ  
<http://smart-lab.yz.yamagata-u.ac.jp/murasawa/>

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	西岡 昭博  (Nishioka Akihiro)  (50343075)	山形大学・大学院有機材料システム研究科・教授    (11501)	

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
---------	---------