

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 29 日現在

機関番号：72608

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21760053

研究課題名（和文） 圧電性多孔質シートを用いた次世代ペーパーにおける筆跡－電気信号変換技術の確立

研究課題名（英文） Development of handwriting - electric signal transformation technology for next generation papers utilizing piezoelectric porous sheets

研究代表者 児玉 秀和 (HIDEKAZU KODAMA)

財団法人小林理学研究所・圧電物性デバイス研究室・研究員

研究者番号：60373198

研究成果の概要（和文）：本研究は機械的入力を電気信号に変換できる圧電性多孔質シートについて筆跡－電気信号変換の基礎技術確立を行った。幾つかの変換手法を検討したところ、電極に直接筆圧を与え、圧電応答による電荷を検出する手法が有効であった。さらに変換機構を物理的に理解するため圧電率・弾性率のテンソル成分を圧電共鳴スペクトルや非線形といった高精度誘電測定法により行った。その結果、本サンプルは厚み方向の伸縮に対する圧電応答が高いだけでなく、非常に柔らかくかつ振動減衰特性が極めて高いことを定量的に見いだした。本実験結果を基に表せるタッチセンサーを試作した。

研究成果の概要（英文）：Handwriting - electric signal transformation technique utilizing piezoelectric porous sheets has been studied. Direct conversion of the brush pressure to an electric signal by the piezoelectricity was effective compared with other considerable methods. Both piezoelectric and elastic properties of the sheet were precisely studied by means of dielectric and nonlinear permittivity measurements. It was found that the sheet is very soft in thickness and an oscillating damping characteristic is also remarkable. A touch and release sensor based on this technique was also tested.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2010 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物理学一般

キーワード：圧電性・ポーラスポリマー・エレクトレット・圧電共鳴・非線形誘電率・圧電率・弾性率・テンソル成分

1. 研究開始当初の背景

多孔質ポリプロピレン(Porous-PP)は従来合成紙として用いられている。これに電荷を蓄積させエレクトレットとすると、図 1 に示すように各々の孔が正と負の電荷が一对となるように帯電し、厚み方向の伸縮を生じさせると孔が伸縮し圧電応答を示す。このときの圧電率は $d_{33} = 100\text{pC/N}$ を超え、圧電セラミッ

クスに匹敵する。本研究では Porous-PP の圧電性と合成紙の機能を融合し、筆跡を電子データに変換し、かつ自己管理する次世代ペーパーの着想に至った。これは Porous-PP に文字を書くと圧電効果によって筆圧を電気信号に変換し、その信号を紙に埋め込んだ IC チップに保存する。本技術では、圧電性は筆跡を電気信号に変換する手法を検討する。

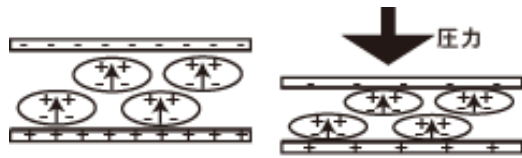


図1 Porosu-PP エレクトレットの断面

2. 研究の目的

本研究は先に述べた次世代ペーパーの要素研究として、Porous-PP エレクトレットの圧電性による筆跡を電気信号に変換するための手法を確立する。考えられる手法として筆記による圧電応答を検出する手法（直接法）、圧電応答の面内分布により筆跡を検出する手法（電位分布法）、筆記による摩擦音を検出する手法（音波法）ならびに表面波を励起しその伝搬の変化を検出する手法（弾性波法）が上げられる。本研究ではこれらについて実験・理論の両面で検討を行い、センサーの特性を素材の電気・力学物性と関連づけ、動作原理をより深く理解する。

3. 研究の方法

(1) センサー作成および動作実験

図2に示すPorous-PPシートにコロナポリングを施し、両面に電極を形成した圧電性多孔質シートを作成した。各々の電極にプリアンプを接続し、筆圧を加えた際に生じる電荷応答を検出した。超音波駆動する際にはファンクションジェネレータを接続した。動作実験として先に述べた4種の筆跡—電気信号変換について検討を行った。

(2) 高精度誘電測定による物性解析

変換機構を物性と関連して深く理解するため、圧電共鳴ならびに非線形誘電といった精密誘電測定による圧電率および弾性率のテンソル成分決定を行った。圧電共鳴測定ではインピーダンスアナライザにより短冊状サンプルの長さ、幅及び厚み共振スペクトルを測定した。また、非線形誘電測定では、2次および3次非線形誘電応答を電荷応答の高調波成分または線形誘電率のバイアス電圧依存性より求めた。

4. 研究成果

(1) 筆跡—電気信号変換の検討

図3はシートにボールペン書きをしたときに検出された電荷出力である。タッチ&リリース、線書き、ギザギザ書きについて結果を



全面電極面 縞電極面

図2 本研究で用いた多孔質フィルム

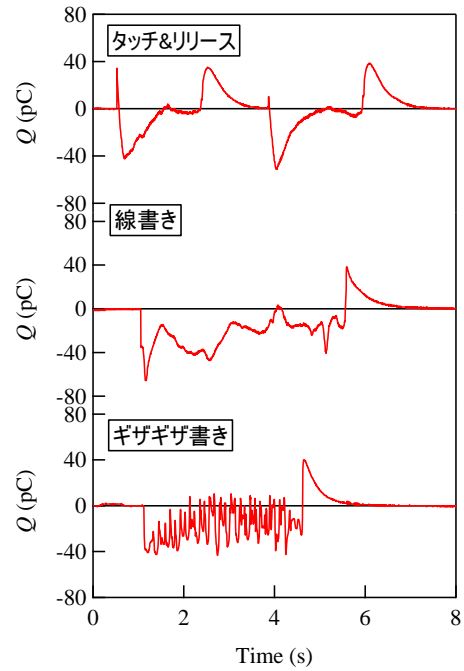


図3 ボールペン書きによる電荷応答

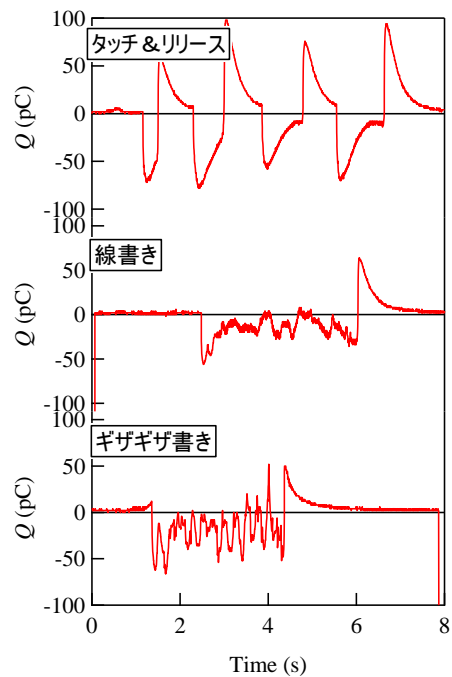


図4 サインペン書きによる電荷応答

示す。得られた電荷出力は、およそ 40pC でタッチ時とリリース時で符号が反転した。本実験で用いたシートの圧電率は $d_{33} = 450\text{pC/N}$ であり、シートに約 0.1N の力が加わったことを示す。線書きでは出力信号は符号が一定で緩やかに増減し、ギザギザ書きでは短時間に出力が大きく変動したが、符号反転は見られなかった。

図4はサインペン書きしたときに検出され

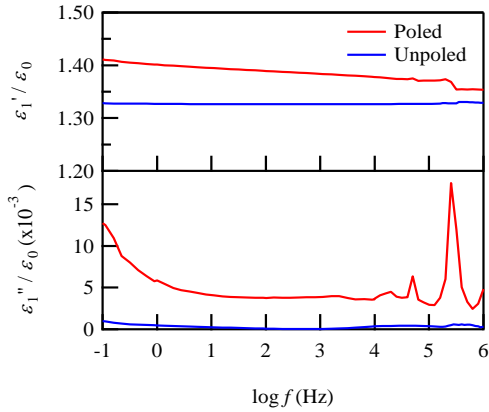


図5 複素誘電率周波数スペクトル

た電荷出力である。図3に示した結果と比較すると、タッチ&リリース時の出力は大きくなり、逆に線書きの出力は小さくなった。一方、ギザギザ書きでは繰り返し周期はボールペンに比べて長い。これらの結果より、シートに接触する断面積やペン先の材質によって出力信号に特徴が見られた。

続いて電極のない部位に筆圧を加え、信号を検出する手法、シートの一部にセンサーを設け筆圧による振動を間接的に検出する手法、さらに超音波弾性波を用いる手法を実験的に検討した。しかしながら、これら間接的な手法による筆跡検出は不可能であった。その原因も含め、本シートの筆跡-電気信号変換機構をより深く理解するため、弾性率および圧電率を圧電共鳴ならびに非線形といった高精度誘電測定により詳細に調べた。

(2) 共鳴法による圧電率・弾性率決定

① 圧電共鳴の測定

図5は複素誘電率($\epsilon^* = \epsilon' - i\epsilon''$)周波数スペクトルである。青線はポーリング未処理サンプル、赤線はポーリングサンプルである。ポーリング処理を加えたサンプルでは誘電率は増大し、3つの共鳴スペクトルが20kHz、50kHzおよび300kHzに観測された。これらは長さ(L-mode)、幅(W-mode)および厚み(T-mode)伸縮によるものである。

3つの圧電共鳴を含む複素誘電率 ϵ^T は次式で表される。

$$\epsilon^T = \epsilon^s (1 + k_w^2 / (1 - k_w^2) \tan b/b) (1 + k_l^2 / (1 - k_l^2) \tan c/c) / (1 - k_t^2 \tan a/a) \quad (1)$$

$$a = \omega t / 2v, b = \omega w / 2v_w, c = \omega l / 2v_l \quad (2)$$

ここで ϵ^s : 拘束誘電率, k : 電気機械結合係数, v : 音速, ω : 角周波数, l, w, t はそれぞれサンプルの長さ, 幅, 厚みであり, k および v の添え字はそれぞれのモードを指す。図6に各モードの共鳴スペクトルを式(1)で当てはめた結果を示す。

共鳴スペクトルより、圧電歪み定数 d_{ij} 、圧電応力定数 e_{ij} 、弾性コンプライアンス s_{ij} 、弾性ステイフネス c_{ij} をテンソル成分として求められる。これらは結合係数 k および音速 v

と、L-modeにおいて $k_{31}^2 = d_{31}^2 / \epsilon_{33} s_{11}$, $v_1^2 = 1 / \rho s_{11}$ の関係が、T-modeにおいて $k_t^2 = e_{33}^2 / \epsilon_{33} c_{33}$, $v_t^2 = c_{33} / \rho$ の関係がある。ここで ρ は密度である。ここで、本研究で用いたPorous-PPエレクトレットについて、面内は当方向性で、厚み方向は孔に形成された分極により2回対称軸を持つとすれば C_{ov} の対称性となる。ずり成分を除く圧電率および弾性率のテンソル成分は、

$$d = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} \end{pmatrix} \quad (3)$$

$$s = \begin{pmatrix} s_{11} & s_{12} & s_{13} \\ s_{12} & s_{11} & s_{13} \\ s_{13} & s_{13} & s_{33} \end{pmatrix} \quad (4)$$

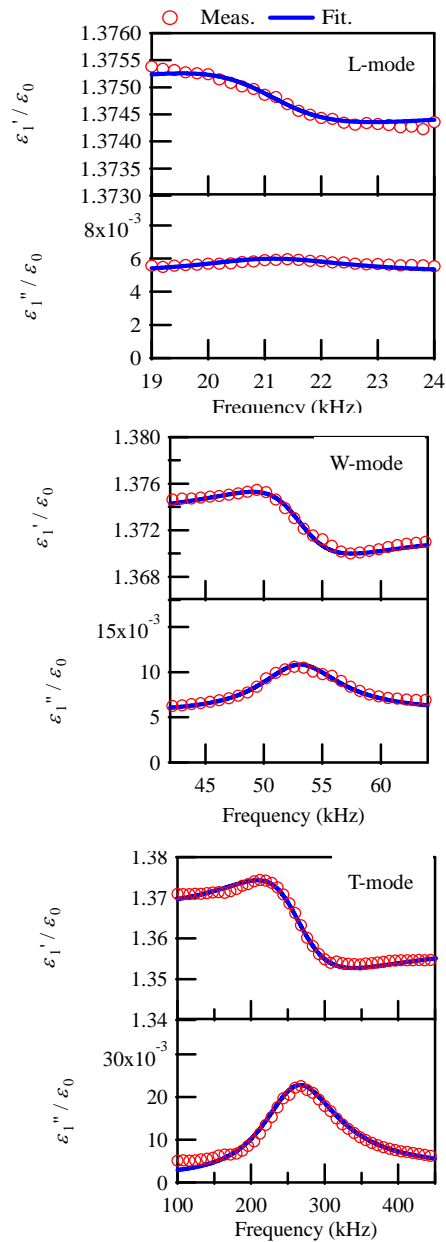


図6 長さ、幅、厚み伸縮の圧電共鳴

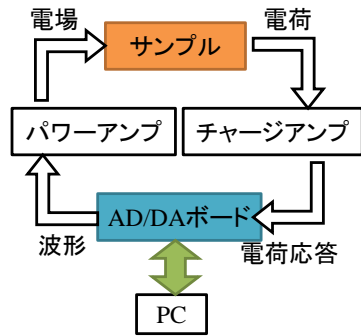


図7 本研究で用いた測定システム

である。

②圧電共鳴の解析

L-mode 共振スペクトルより s_{11} と d_{31} を求めた。図6に示した結果より $s_{11} = 0.357 \text{ nPa}^{-1}$, $d_{31} = -0.75 \text{ pC/N}$, $k_{31} = 0.011$ となった。ヤング率 $Y_{11} (= 1/s_{11})$ は 2.8 GPa となり通常のポリマーシートに相当した。

次に T-mode 共振スペクトルより $c_{33} = 540 \text{ kPa}$, $e_{33} = 240 \text{ } \mu\text{C/m}^2$, $k_t = 0.094$ となった。この結果は、この材料では弾性率の異方性が極めて大きいことを示す。中でも厚み方向の弾性率はゴム等に比べても小さく、非常に柔らかいことが分かる。

圧電共鳴より弾性 $\tan\delta$ も求められる。面内伸縮では $\tan\delta = 0.01$ で通常のポリマーシートと同等である。しかしながら厚み方向では $\tan\delta = 0.4$ でダンピング特性が極めて高い事が分かった。先に筆跡-電気信号変換で、筆圧による機械入力によりシート内に伝搬する固体伝搬波を発生させ、それを何らかの手法でとらえる、いわゆる間接的手法が不可能であったことを述べたが、その原因が厚み方向の弾性損失により振動減衰が著しく、面内に伝搬しないためであると結論される。

次に、 s_{12} および s_{13} を求めた。これらは応力の向きと歪みの向きが異なるため直接測定することは困難である。本研究では s_{12} は W-mode 共振スペクトルより、 s_{13} は d_{31} と e_{33} の相関より求めた。W-mode 共振スペクトルから得られる見かけの弾性コンプライアンス s_w は $1 - s_{12}^2/s_{11}$ に等しい。図6に示す共鳴スペクトルより $s_{12} = -0.17 \text{ nPa}^{-1}$ となった。 s_{13} は、 $d_{31} = s_{13}e_{33}$ の関係式と、先に求めた d_{31} および e_{33} より $s_{13} = -3.13 \text{ nPa}^{-1}$ となった。以上のように、本研究で用いた多孔質ポリマーの弾性率および圧電率のテンソル成分が決定された。

(3) 非線形誘電法による圧電性・弾性計測

①非線形誘電率

圧電共鳴スペクトルにより求めた圧電率および弾性率は共振周波数における値である。ポリマーでは一般に電気・力学特性は周波数に強く依存する事が多い。そこで非線形誘電率測定により、低周波領域における圧電

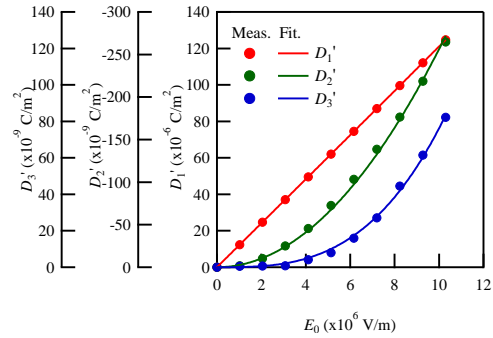


図8 D_1, D_2, D_3 の電場依存性

率ならびに弾性率について評価した。

誘電率 ϵ は電気変位 D と電場 E より $D = \epsilon E$ で与えられる。電場をさらにべき乗に展開し、高次項の係数は n 次非線形誘電率となる。

$$D = \epsilon_1 E + \epsilon_2 E^2 + \epsilon_3 E^3 + \dots + \epsilon_n E^n \quad (5)$$

誘電率と容量 C の関係は、

$$C = \epsilon l w / t \quad (6)$$

で与えられる。ここで l : 長さ, w : 幅, t : 厚さである。

②非線形誘電率と電歪

誘電率を計測する際にはサンプル両面の電極に電圧を印加するが、そのとき電極間のマクスウェルフォース $F_M = (-1/2)\epsilon E^2$ によりサンプルに歪みが生じたとすれば、見かけの誘電率 ϵ^{ap} は測定された容量 C^{ap} , サンプルの元々の寸法 l_0, w_0, t_0 ならびに F_M によって生じた歪み S_1, S_2, S_3 により次式で表される。

$$\epsilon^{ap} = C^{ap} l_0 / w_0 t_0 = \epsilon (1 + S_1)(1 + S_2) / (1 + S_3) \quad (7)$$

ここで S_1, S_2, S_3 はそれぞれ長さ, 幅, 厚みの歪みであり, F_M および E と以下の依存性を示す。

$$S_1 = s_{13} F_M \quad (8)$$

$$S_2 = s_{23} F_M \quad (9)$$

$$S_3 = s_{33} F_M + d_{33} E \quad (10)$$

寸法変化を考慮した誘電応答は次式で与えられる。

$$D = \epsilon^{ap} E = [\epsilon - \epsilon d_{33} E - 1/2 \epsilon^2 (s_{13} + s_{23} - s_{33}) E^2] E \quad (11)$$

式(5), (11)より寸法効果と2次および3次非線形誘電率の関係は次式で与えられる。

$$\epsilon_2 = -\epsilon d_{33} \quad (12)$$

$$\epsilon_3 = -1/2 \epsilon^2 (s_{13} + s_{23} - s_{33}) \quad (13)$$

③非線形誘電率測定

非線形誘電率の測定には図7に示す自作測定システムを用い、2種類の非線形誘電率測定を行った。一つ目はサンプルに高電場を印加し、電気変位の高調波成分を測定する手法である。印加電場を $E = E_0 \cos \omega t$ とすれば、電気変位は

$$D = \epsilon_1 E_0 \cos \omega t + \epsilon_2 E_0^2 \cos^2 \omega t + \epsilon_3 E_0^3 \cos^3 \omega t + \dots = \epsilon_1 E_0 \cos \omega t + (1/2) \epsilon_2 E_0^2 \cos(2\omega t) + (1/4) \epsilon_3 E_0^3 \cos(3\omega t) + \dots \quad (14)$$

となり、2倍高調波より2次非線形誘電率, 3倍高調波より3次非線形誘電率が求まる。

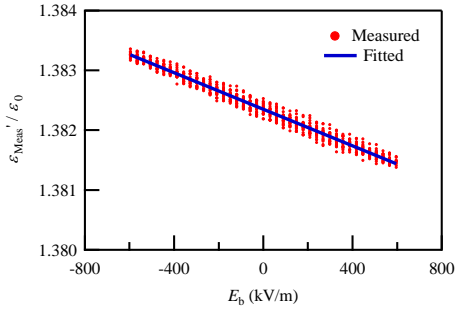


図9 誘電率バイアス電場依存性

もう一つの手法は誘電率のバイアス電圧依存性を測定し非線形誘電率を求める。印加電場を $E = E_b + E_0 \cos \omega t$ とすれば、電気変位は $D = \varepsilon_1(E_b + E_0 \cos \omega t) + \varepsilon_2(E_b + E_0 \cos \omega t)^2 + \varepsilon_3(E_b \cos \omega t)^3$ となる。見かけの誘電率は

$$D(\omega) = \varepsilon^{ap} E_0 \cos \omega t \quad (16)$$

$$\varepsilon^{ap} = \varepsilon_1 + 2\varepsilon_2 E_b + 3\varepsilon_3 E_b^2 \quad (17)$$

となる。 E_b の係数より 2 次非線形誘電率が、 E_b^2 の係数より 3 次非線形誘電率が求まる。

④高調波歪による非線形誘電測定

図8は、周波数 100Hz での電気変位の基本波成分 D_1 、2 倍高調波成分 D_2 および 3 倍高調波成分 D_3 の電場依存性である。 D_1 は電場に比例し、 D_2 は電場の 2 乗、さらに D_3 は電場の 3 乗に比例することが分かる。これらの結果と式(14)より得られた線形および非線形誘電率は $\varepsilon_1 = 12.1 \text{ pF/m}$ 、 $\varepsilon_2 = -5.12 \times 10^{-21} \text{ F/V}$ 、 $\varepsilon_3 = 2.93 \times 10^{-28} \text{ Fm/V}^2$ となった。さらに式(12)、(13)から圧電率 $d_{33} = 420 \text{ pC/N}$ 、 $s_{33} = 4.0 \text{ } \mu\text{Pa}^{-1}$ となった。ここで先に述べた圧電共鳴の結果より $s_{33} \gg s_{13}, s_{23}$ である。これらの結果は圧電共鳴で得られた値とほぼ一致した。

⑤誘電率バイアス電圧依存性

図9は Porous-PP エレクトレットの誘電率バイアス電場依存性である。誘電率はバイアス電場に対して負に比例し、バイアス電場が約 500kV/m のとき 0.1% の変化を示した。係

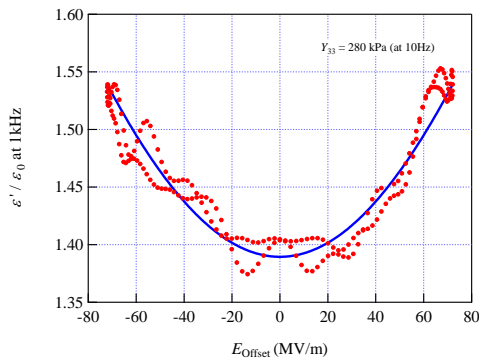
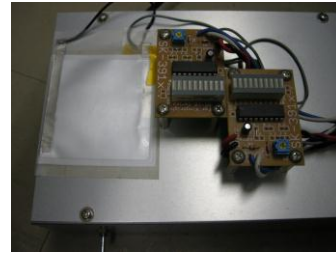
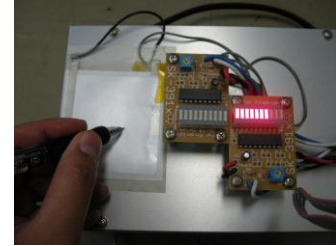


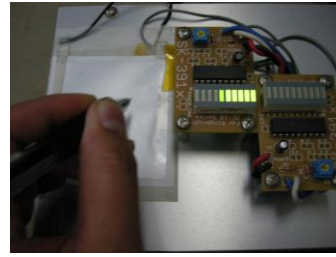
図10 誘電率バイアス電場依存性



(a)試作機



(b)タッチ時 (赤色点灯)



(c)リリース時 (緑色点灯)

図11 センサー試作機

数は式(17)より $2\varepsilon_2$ であり、 $\varepsilon_2 = -5.51 \times 10^{-21} \text{ F/V}$ 、 $d_{33} = 450 \text{ pC/N}$ となった。

図10はポーリング未処理サンプルの誘電率バイアス電場依存性である。誘電率は電場の 2 乗に依存する。この結果から $\varepsilon_3 = 3.10 \times 10^{-28} \text{ Fm/V}^2$ 、 $s_{33} = 3.57 \text{ } \mu\text{Pa}^{-1}$ となった。誘電率のバイアス依存性より求めた d_{33} は共鳴法で求めた値とほぼ同等であったのに対し、 s_{33} は約 2 倍となった。

(4) センサー試作

タッチセンサーを試作した。通常のタッチセンサーは接触非接触の検出は出来るが、その強さに関する情報は得られにくい。試作機は Porous-PP エレクトレットからなるセンシング部、プリアンプおよび 2 つの出力レベルメーターからなる。レベルメーターは 10 段階であり、発光するメーター数は強度が強くなるほど増加する。赤色メーターはタッチ時に反応するように、緑色メーターはリリース時に反応するように接続した。強くタッチ・リリースするほど多くのメーターが点灯し、逆に緩慢な動作を与えると点灯するメーター数は減少した。

(5) まとめ

機械的入力を電気信号に変換できる圧電性多孔質シートについて筆跡-電気信号変換の基礎技術確立を行った。幾つかの変換手法を検討したところ、シートの電極に直接筆圧を加え、電荷応答を検出する手法は有効であった。しかし振動伝搬などで間接的に検出する手法は不可能であり、弾性 $\tan\delta$ が 0.4 と振動減衰が著しく大きいことが原因であることが分かった。

さらに変換機構と物性をより深く関連づけるため圧電性・弾性のテンソル成分を圧電共鳴スペクトルならびに非線形といった高精度誘電測定により決定した。面内伸縮の弾性率はポリマーの一般的な値と同等であるのに対して厚み方向は 500kPa と極めて柔らかく、弾性的に強い異方性があることが分かった。今回の研究により筆圧によるシートに与える力は 0.1N で、与える面積を 1mm² とすれば応力は 100kPa であった。これはシートを局部的に 2 割歪ませることになる。以上の研究成果を基にタッチセンサーを試作した。Porous-PP エレクトレットは高い圧電性を示すことから様々なアプリケーションが検討されている。しかしながら、物性と関連して理解されている例は少ない。本研究において、多孔質シートの圧電率および弾性率をテンソル成分として解析し、センサーに与える刺激とそれによる歪みを定量的に評価し、センシング機構のより深い理解を行った。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計 5 件)

① H. Kodama, Y. Yasuno, T. Furukawa and E. Fukada, Electromechanical Properties and Acoustic Applications of High Sensitivity Porous Polypropylene Electrets, Smart Materials, Structures & NDT in Aerospace, 2 - 4 November 2011, Montreal, Quebec, Canada

② Hidekazu Kodama, Tatsuya Osawa, Yoshinobu Yasuno and Takeo Furukawa, A series of electromechanical measurements for determination of piezoelectric, dielectric and elastic tensor components in porous polypropylene electrets, 14th International Symposium on Electrets, 28 - 31, August, 2011, Montpellier, France

③ 安野功修, 児玉秀和, 多孔性ポリプロピレンの圧電特性を応用した空中超音波送受器の温度特性, 日本音響学会2010年春季研究発表会, 2010年3月10日, 電気通信大学(東京)

④ 安野功修, 児玉秀和, 多孔性ポリプロピレンの圧電特性を応用した空中超音波送受器の検討, 日本音響学会 2009 年秋季研究発表会, 2009 年 9 月 15 日, 日本大学(福島)

⑤ Hidekazu Kodama, Yosinobu Yasuno, Munehiro Date and Eiichi Fukada, A Study of Time Stability of Piezoelectricity in Porous Polypropylene Electrets, 2009 IEEE Ultrasonics Symposium, 2009 年 9 月 21 日, Roma, Italy

[図書] (計 1 件)

① 古川猛夫, 児玉秀和, 実践 高分子の構造・物性分析・測定, サイエンス&テクノロジー, 2010, pp. 306 - 326

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: エネルギー変換用フィルム

発明者: 児玉秀和, 安野功修, 深田栄一, 小池弘, 飯田誠一郎

権利者: (株)ユポ・コーポレーション

種類: 特願

番号: 2009-215184

出願年月日: 2009年9月17日

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

児玉 秀和 (HIDEKAZU KODAMA)

財団法人小林理学研究所・圧電物性デバイス研究室・研究員

研究者番号: 60373198