

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 14 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（開拓）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K18157

研究課題名（和文）プラスチック内部残留応力の非侵襲精密測定法の確立

研究課題名（英文）Establishment of non-destructive measurement method for internal residual stress in plastics

研究代表者

梶原 優介（Kajihara, Yusuke）

東京大学・生産技術研究所・教授

研究者番号：60512332

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 19,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究の目的は、樹脂成形品の残留応力の評価技術を確立することである。研究期間ではまず、THz差周波光源、THz集光・偏光光学系を設計してTHz偏光計測装置を構築した。その後、自動車用エンジニアリングプラスチック（PBT）やエポキシ樹脂試験片を作製し、外力を印加した際のTHz偏光度変化、および成形試料のTHz偏光度と内部残留応力の相関調査、を実験的に検証した。前者においては、0.3～1 THzの領域において、内部応力と偏光度に強い相関があることが分かった。後者に関しても、内部残留応力の異なる試料を測定した結果、残留応力と偏光度の定量化が可能であることが確認できた。以上から、研究目標は達成されたと言える。

研究成果の学術的意義や社会的意義

プラスチック成形品の非侵襲な残留応力評価技術は長年の課題であったが、本研究では、樹脂の高分子振動がTHz領域に対応することを適用して残留応力を評価することを提案した。研究の結果、樹脂内残留応力の非侵襲測定法の妥当性が確認できている。今後本技術が確立すれば、成形技術に非常に大きな変革をもたらす。例えば、従来の成形技術は成形後の寸法公差を極力減らすことに注力していたが、寸法公差に加えて残留応力が最も低い成形技術を新たに構築する必要が生じるため、成形に関する研究開発に需要創成をもたらすであろう。

研究成果の概要（英文）：The aim of this study is to establish an evaluation technique for the residual stress of plastic mouldings. During the research period, a THz polarisation measurement system was constructed by designing a THz difference-frequency light source and THz focusing and polarisation optics. THz polarisation changes when an external force is applied and the correlation between THz polarisation and internal residual stress of moulded specimens were experimentally verified by fabricating automotive engineering plastic (PBT) and epoxy resin specimens. In the former case, it was found that there was a strong correlation between internal stress and polarisation in the 0.3-1 THz range. For the latter, measurements of samples with different internal residual stresses confirmed the possibility of quantifying residual stress and polarisation. The research goal has thus been achieved.

研究分野：生産加工学

キーワード：残留応力 高分子配向 テラヘルツ波 偏光計測 差周波

## 1. 研究開始当初の背景

本研究の最終目的は、プラスチック成形品内部残留応力の非侵襲かつ高精度な三次元評価法を実現し、標準計測法まで昇華させることであった。プラスチック成形品の加工・計測技術は数十年で長足の進歩を遂げ、成熟の域に達しつつあった。しかし、最重要課題として認識されているものの、ほぼ手付かずのまま残っていたのが内部残留応力の非破壊評価であった。品質管理の点から非常に強く求められている技術であるが、未だ標準計測法は存在しない。残留応力評価技術としてはドリルで穴を開けて応力解放時の歪みを計測する穿孔法や、薬品に成形品を浸漬した際のクラックから残留応力を予測する薬品浸漬法があるが、いずれも破壊測定である。非破壊計測法としては光弾性を利用した方法があるが、定性的評価であるとともに対象が透明樹脂に限られる。プラスチック成形品のほとんどが不透明な結晶性エンジニアリングプラスチック(エンブラ)である現在、適切な方法とは言えない。金属の残留応力測定法として、格子定数の変化から残留応力を定量化する X 線回折法があり、表層の測定しかできないものの頻りに利用されている。しかし樹脂は X 線回折に敏感ではなく、内部測定も不可能なので不適である。そこで本研究では、樹脂を構成する高分子自身の振動を利用することとした。エンブラを構成する高分子の振動モードは、0.5 ~ 6 THz (波長 50 ~ 600 μm) である。残留応力が存在すると、分子が伸縮して振動モードが変化するため、それを検出すれば残留応力を評価できるはずである。模式図を図 1 に示す。残留応力が存在しない場合は図 1(a)のように高分子はランダムに配向して振動する。一方、残留応力が存在する場合、図 1(b)のように応力の方向と大きさに依存して高分子が伸縮して配向が揃ってくる。配向が揃うと、振動モードと同周波数を持つ電磁波を入射した場合、高分子振動によって透過光に偏光依存性が生じることが予測される。

提案する樹脂内部残留応力測定法の原理を図 2 に示す。偏光成分を持つ THz 波を試料に照射する点がポイントである。THz 波は高分子振動に対応する周波数を持つほか、光子エネルギーが低く、ほぼ全ての樹脂を透過するため樹脂との親和性が高い。残留応力によって高分子配向が揃う場合、配向と同方向の偏光成分は高分子振動によって吸収される。すなわち、検出信号における偏光依存性を評価することによって、残留応力の大きさ、向きを定量的に評価することが期待できる。また、入射光を集光光学系によって絞れば、残留応力の空間マッピングも期待できる。

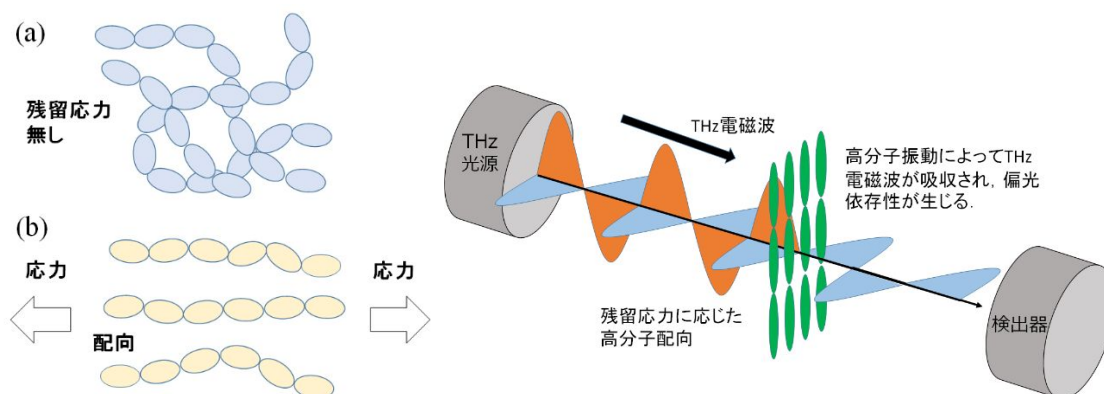


図 1 残留応力と高分子配向 図 2 THz 電磁波を利用した樹脂内部残留応力測定法の原理

## 2. 研究の目的

本研究では「THz 偏光特性を利用したプラスチック内部残留応力の非侵襲かつ高精度な残留応力評価装置を構築して当該計測法を確立し、提案法をプラスチック内部残留応力の標準計測法として昇華させること」を目指した。目的達成のため、以下の研究課題を設定した。

### (1) THz 偏光計測装置の設計・構築

周波数をスイープ可能な THz 差周波光源、偏光光学系、集光光学系を設計・構築し、検出器と組み合わせて、THz 偏光計測装置を構築する。

### (2) 内部応力と偏光依存性の定量解析

樹脂試料を治具で伸縮させ、応力と偏光依存性の関係を定量的に解析して応力・偏光の関係が定式化可能であることを示す。

### (3) 内部残留応力測定法の確立

残留応力を精密に制御した(残留応力が制御可能な)試料作製技術を確立する。そののち、様々な内部残留応力を持つプラスチック成形品の残留応力と偏光依存性の相関分析を行い、提案法の妥当性を示す。

### 3. 研究の方法

本研究は、応募者及び応募者グループで以下の通り実験を行った。

#### (1) THz 偏光計測装置の設計・構築

提案法の実現のためには、周波数スイープが可能な光源、偏光制御およびサブミリ集光が可能な光学系が必要となる。光源と分光が一つのシステムとなった THz-TDS はひとつの選択肢ではあるが、装置が高価かつ大型で、試料サイズも限られてしまう。そこで本研究では、連続波レーザーの差周波を利用することで波長可変 THz 光源を製作する。具体的には、非線形素子(LiNbO<sub>3</sub> など)に対して周波数が数 THz 異なったレーザを入射させ、差分の THz 出力を得る。本研究ではビート信号を単一走行キャリアフォトダイオード(UTC-PD)でミキシングすることにより、高速かつ安定した差周波出力を得ることができる。光源の製作後は、偏光光学系を構築する。検出器はボロメータ(感熱素子)など常温で作動する素子を利用する。試料の前後に偏光子を入れ、クロスニコル配置にすることによって偏光依存性に対する感度を高める予定である。三次元走査可能な試料台も構築・導入することによって透過型の測定系を構築する。レンズ系は、波長による焦点変化が回避できる反射型レンズ系を設計して用いる。

#### (2) 応力と偏光依存性の解析

残留応力が小さいエンブラ(エンジニアリングプラスチック)成形試料を準備する。その試料を引張器具にて伸縮させながら構築した装置で偏光依存性を測定し、応力と偏光依存性の関係を定量的に分析する。偏光依存性の定量化は、ストークスパラメータまたは同等指標にて行う。

#### (3) 内部残留応力測定法の妥当性評価

焼成または射出成形プロセスの各条件を適切に制御し、残留応力を精密に制御可能な試料作製技術を確立する。その後、構築装置で偏光依存性を分析し、残留応力の向き、大きさと偏光依存性の関係を明らかにする。以上のプロセスから内部残留応力測定法を確立する。

### 4. 研究成果

#### (1) THz 偏光計測装置の設計・構築

構築した THz 偏光計測光学系の模式図と写真を図 3 に示す。2 台の DFB (Distributed Feedback) レーザおよびフォトミキサを利用した連続波差周波光源を用いた。一方の DFB レーザの発振周波数は 195.98 THz に固定されており、他方の DFB-LD の発振周波数を変更することによって THz 帯の差周波を発振させる。光源から放射された THz 波は放物面鏡によってコリメートされて光束径 25 mm の平行光線となる。コリメート後はアッテネータを透過後に高密度ポリエチレンを材質とする焦点距離 141 mm のレンズによって集光される。アッテネータはレンズや試料表面、光源などの多重反射による干渉の影響を低減する役割を持つ。レンズを透過したビームはワイヤーグリッド偏光子によって偏光面が揃えられ、焦点位置で試験片に入射する。試験片を透過後は入射レンズと同じ仕様のレンズによってコリメートされ、放物面鏡によって検出器に集光される。検出器にはフェルミレベル制御バリア (FMB) ダイオードを用いた。試料は回転台に保持されており、回転台を回転させることによって常に同じ場所の偏光依存性を評価することが可能である。回転台の中心には直径 4 mm のアパチャが開いているため、試料の測定領域は 4 mm 径の領域となる。

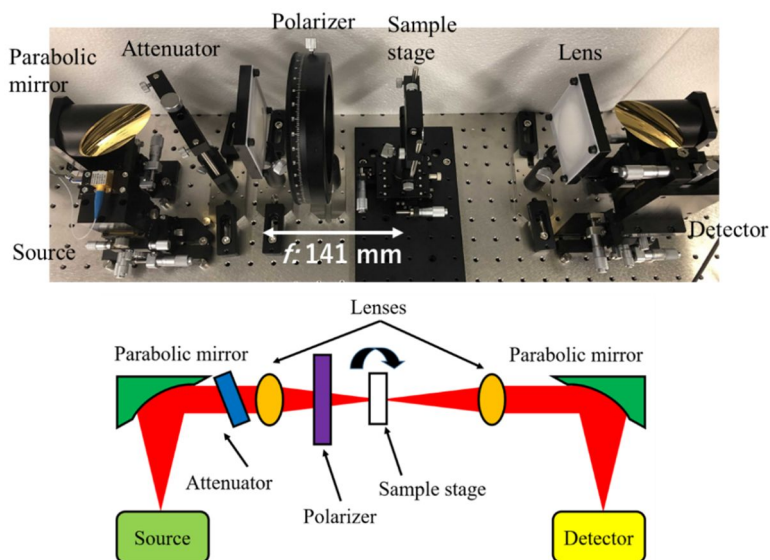


図 3 THz 偏光計測光学系の模式図と写真



## (2) 応力と偏光依存性の解析

図4(a)に示す厚さ3 mmのポリテトラフルオロエチレン (PTFE) 試料を準備し、図4(b)に示す引張試験装置でPTFE試料を引っ張りながらTHz透過特性を評価した。引張試験装置において上下のシャフトはガイドの役割を果たす。試料を引っ張りながら常に同じ位置のTHz透過特性を評価するため、左右ねじをステッピングモータによって回転させることにより試料を左右に引っ張る設計としている。試料への応力はロードセルで測定する。モータ部を除く装置の寸法は高さ約300 mm、長さ約400 mmである。本装置で試料を引っ張りながら、試料の中心位置にTHz波を入射させて透過出力を検出する。

引張方向に平行および垂直な偏光を入射し、印加応力に対する吸収係数を評価した。測定周波数は0.3, 0.5, 0.7, 1.0 THzであり、入射前後の光強度比と試料厚さから吸収係数を計算した。各周波数に対して3試料を測定して平均値を出している。印加応力に対して厚さが変化するため、各印加応力に対する試料厚さ変化は事前にマイクロメータで測定している。各周波数における印加応力に対する吸収係数の測定結果を図5に示す。図5(a), (b)はそれぞれ引張方向に垂直、平行な偏光を入射した場合の結果である。平行偏光の場合は応力による吸収係数の大きな変化はほとんどないが、垂直な場合は応力と吸収に強い相関がある。印加応力によって伸長された高分子配向と垂直なTHz電場成分が強く吸収された結果であると考えられる。図5(a)において、応力350 N近傍で急激に吸収係数が大きくなっているが、これは350 N近傍で弾性変形から塑性変形に移っているためであり、試料厚さ変化の結果とも一致している。以上から応力と高分子配向、THz透過特性に相関があることが明らかとなったため、提案法による残留応力評価の実現可能性が支持された。

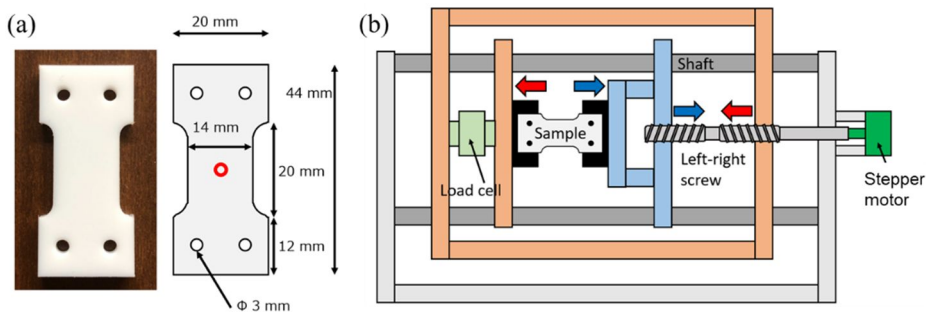


図4 試料および引張試験装置

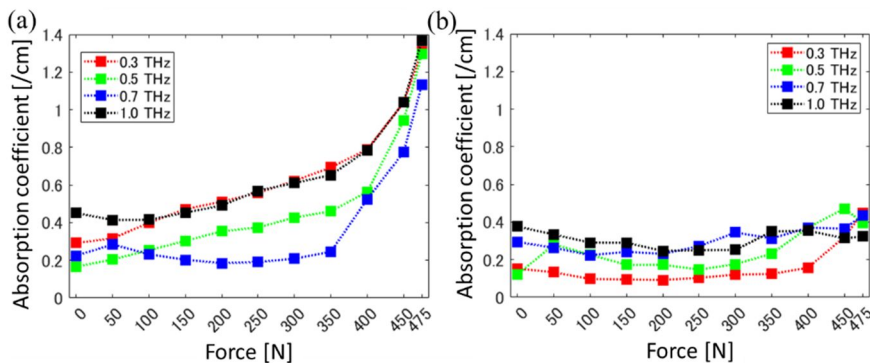


図5 各周波数における印加応力に対する吸収係数 (a) 垂直偏光 (b) 平行偏光

## (3) 内部残留応力測定法の妥当性評価

幾つかの条件で作製した成形品をTHz偏光測定によって評価したのちに小さく切断した切断後に残留応力に応じて試料寸法が変化するため、試料寸法変化とTHz偏光依存性の分析結果から提案法の妥当性を評価した。試料は射出成形によって成形したPBTである。成形条件のうち射出速度は10 mm/s、シリンダ温度は265°C、金型温度は140°C、パック圧は80 MPaと統一した。一方、保圧は0 MPaと40 MPa (8秒)の2水準で作製し、成形のアニーリング (130 °, 4時間) も有り、無しの2水準とした。作製試料数は各条件3個ずつである。保圧は金型内に樹脂充填した後に追加で印加する圧力、アニーリングは成形後の熱処理であり、残留応力低減のためによく適用される工程である。測定領域は前節同様流動末端から約20 mm手前の領域とした。樹脂流動方向と平行にTHz偏光電場を入射する場合を試料角度0°とする。測定周波数は0.5 THz, 0.7 THz, 測定領域は径4 mmである。各試料に対して試料角度0°, 45°, 90°, 135°における吸収係数を求め、偏光依存性を定量化するために以下の式で定義される偏光度PF (Polarization Factor) を計算した。

$$PF = \frac{\sqrt{(A_0 - A_{90})^2 + \sqrt{(A_{45} - A_{135})^2}}}{A_0 + A_{45} + A_{90} + A_{135}} \quad (1)$$

ここで、 $A_\theta$  は試料角度が $\theta(^\circ)$ の際の吸収係数である。

各成形条件における偏光度 $PF$ の計測結果を図6に示す。いずれの周波数においても、保圧40 MPa、アニーリング有りという最も残留応力が小さいと考えられる試料の $PF$ が最も小さく、保圧0 MPa、アニーリング無しという最も残留応力が大きいと考えられる試料の $PF$ が最も大きい。また、アニーリングの有無よりも保圧の有無の方が偏光度に与える影響が大きい結果となっている。次に、測定点から樹脂流動方向に前後5 mmの位置で試料を切断して10 mm角の試料片を切り出し、20 の環境で1日放置して残留応力を解放させ、切断前後の幅と厚さを20 の環境においてマイクロメータで10回ずつ測定して寸法変化を評価した。ここで幅とは、樹脂流動方向と垂直な方向の試料幅を指す。試料切断前後の試料厚さ、幅の変化と、各成形条件における偏光度 $PF$ の関係を図7に示す。寸法の測定誤差は10  $\mu\text{m}$ 以下であったため、各成形条件における寸法変化の差の方が圧倒的に大きい。いずれの周波数においても、厚さ、幅の寸法減少値と $PF$ は強い正の相関関係にある。相関係数は0.5 THz、厚さ変化において0.917、0.7 THz、厚さ変化において0.850、0.5 THz、幅変化において0.897、0.5 THz、幅変化において0.833であり、すべて片側検定において $p < 0.01$ で高度に有意である。いずれの結果も寸法が小さくなる方向に応力が解放されているため、本成形条件においては引張方向の残留応力が生じていたことが分かった。使用したPBTのヤング率(約2.5 GPa)と寸法変化から試料の残留応力を概算すると、保圧0 MPa、アニーリング無しの場合、厚さ方向約17 MPa、幅方向約8 MPaと計算される。以上のように、寸法変化から間接的に予測される残留応力とTHz偏光度 $PF$ の間に強い相関があることから、提案するTHz偏光計測法によって樹脂内部の残留応力測定が可能であることが示された。

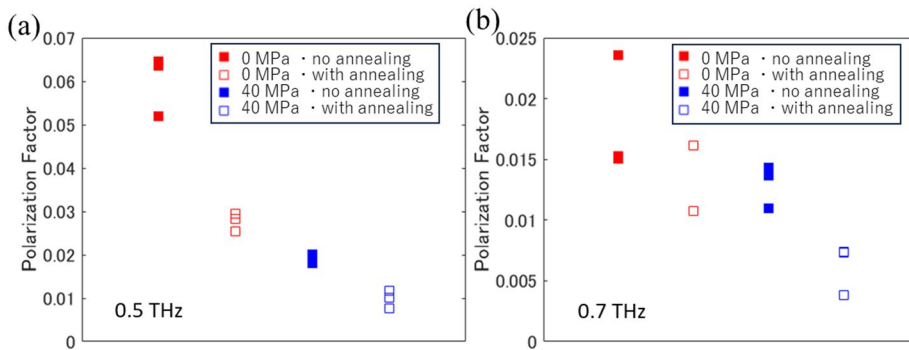


図6 各成形条件における偏光度 $PF$ の計測結果 (a) 0.5 THz, (b) 0.7 THz.

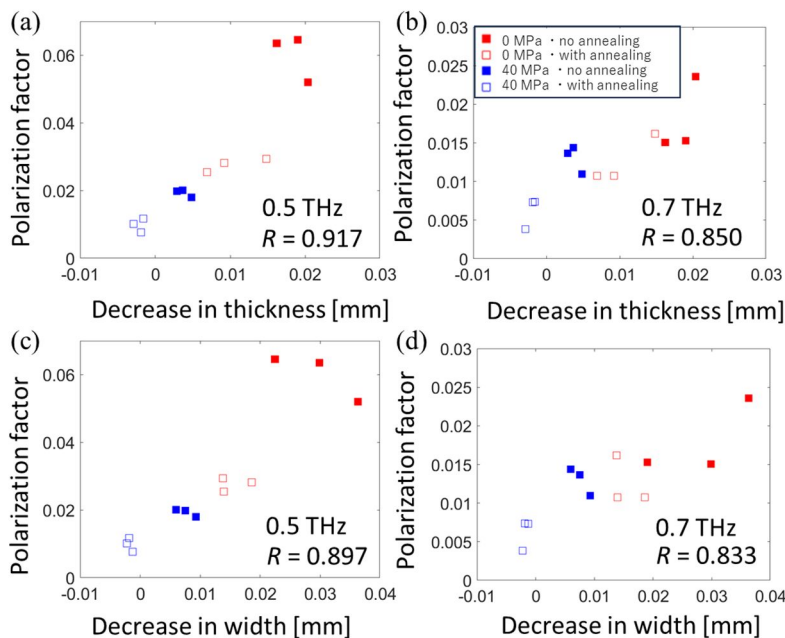


図7 試料切断前後の試料厚さ、幅の変化と、各成形条件における偏光度 $PF$ の関係 (a) 0.5 THz, 厚さ (b) 0.7 THz, 厚さ (c) 0.5 THz, 幅 (d) 0.7 THz, 幅.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

|   |                        |
|---|------------------------|
| 1. 著者名<br>Kajihara Yusuke, Tanaka Atsushi, Chen Weiyan, Wang Shuohan, Tao Kosaku, Kimura Fuminobu                   | 4. 巻<br>1              |
| 2. 論文標題<br>Development of residual stress evaluation method for polymer products using THz polarization measurement | 5. 発行年<br>2024年        |
| 3. 雑誌名<br>CIRP Annals   | 6. 最初と最後の頁<br>in press |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1016/j.cirp.2024.04.069  | 査読の有無<br>有             |
| オープンアクセス<br>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<br>-              |

|   |                         |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名<br>Akita Yukihito, Yoshikawa Nobuhiro, Kajihara Yusuke | 4. 巻<br>36              |
| 2. 論文標題<br>テラヘルツ透過測定による熱可塑性樹脂の分子配向と疲労破壊メカニズムの相関に関する一考察        | 5. 発行年<br>2024年         |
| 3. 雑誌名<br>Seikei-Kakou  | 6. 最初と最後の頁<br>128 ~ 134 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.4325/seikeikakou.36.128        | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>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<br>-               |

|  |                         |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名<br>梶原 優介  | 4. 巻<br>73              |
| 2. 論文標題<br>THz偏光を利用した樹脂内残留応力評価法の基礎検証                     | 5. 発行年<br>2021年         |
| 3. 雑誌名<br>生産研究   | 6. 最初と最後の頁<br>395 ~ 400 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.11188/seisankenkyu.73.395 | 査読の有無<br>無              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている (また、その予定である)                   | 国際共著<br>-               |

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件）

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Shuohan WANG, Atsushi TANAKA, Kosaku TAO, Fuminobu KIMURA, and Yusuke KAJIHARA                      |
| 2. 発表標題<br>Evaluation of the polymer orientation via terahertz polarization measurement                        |
| 3. 学会等名<br>The International Conference on Leading Edge Manufacturing/Materials&Processing (LEM&P 2023) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2023年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>A. Tanaka, F. Kimura, S. Saito, I. Yoshida, Y. Kajihara                             |
| 2. 発表標題<br>Development of Residual Stress Evaluation System Inside Resin Using Terahertz Waves |
| 3. 学会等名<br>The 19th International Conference on Precision Engineering (ICPE2022) (国際学会)        |
| 4. 発表年<br>2022年～2023年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>田中惇士, 木村文信, 三宅茂夫, 花田秀美, 野渡透一, 梶原優介 |
| 2. 発表標題<br>樹脂内部応力とテラヘルツ吸収の相関評価                |
| 3. 学会等名<br>精密工学会秋季大会                          |
| 4. 発表年<br>2022年～2023年                         |

|                                       |
|---------------------------------------|
| 1. 発表者名<br>梶原優介                       |
| 2. 発表標題<br>テラヘルツ計測法の現状と樹脂内部物性評価への取り組み |
| 3. 学会等名<br>FrontCOMPユーザー会 (招待講演)      |
| 4. 発表年<br>2021年                       |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>町田大和, 高橋理央, 斎藤伸吾, 関根徳彦, 梶原優介, 吉田一朗 |
| 2. 発表標題<br>テラヘルツ偏光計測による樹脂内部残留応力の評価法の研究        |
| 3. 学会等名<br>光計測シンポジウム2021                      |
| 4. 発表年<br>2021年                               |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>田中惇士, 木村文信, 吉田一朗, 梶原優介            |
| 2. 発表標題<br>テラヘルツ波を用いた樹脂内部残留応力評価システムの開発に向けた研究 |
| 3. 学会等名<br>精密工学会春季大会                         |
| 4. 発表年<br>2021年                              |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

|   |
|---|
| 梶原研究室website<br><a href="http://www.snom.iis.u-tokyo.ac.jp/">http://www.snom.iis.u-tokyo.ac.jp/</a><br>梶原研究室<br><a href="http://www.snom.iis.u-tokyo.ac.jp/">http://www.snom.iis.u-tokyo.ac.jp/</a> |
|---|

| 6. 研究組織                   |                       |    |
|---------------------------|-----------------------|----|
| 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |
|                           |                       |    |

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 |
|---------|---------|
|         |         |