

昭和 63 年 度

若い研究者を育てる会研究発表会

研究論文集

平成元年 3 月 23 日 (木)

於：富山第一ホテル

若い研究者を育てる会

ごあいさつ

会長 飴 久 晴

本年は新たに10社の加盟をいただき、「若い研究者を育てる会」の会員は23社となり、なお一層活発な会の運営になったと思います。

昨年に引続き県工業技術センター、そして新しく、県高志リハビリテーション病院のご支援のもと、6件の研究テーマを進めることができましたことは、参加企業の研究に対する熱心さそのものであったと推察しております。

また、異業種企業の第一線の若い研究者のみなさんが、いきいきとしてお互いに影響を与えながら研究テーマに取り組み、年々、より幅広く深い研究活動になってきていることは、大変喜ばしいことでございます。

昨今の情勢から企業の生き残りのため、テクノロジーを武器にして、オリジナリティを出すかが重要課題となっており、会の趣旨であります若い研究者が、本会の活動を通じて参加企業、ひいては富山県の産業発展の核となることを念じております。



研究の概要

富山県工業技術センター 工学博士 谷野 克巳

本書は、『若い研究者を育てる会』に参加する企業（会員企業数23社）の研究者が6つの研究課題とグループを定め、昭和63年4月から富山県工業技術センター富山研究所において5グループ（5テーマ）、および富山県高志リハビリテーション病院において1グループ（1テーマ）が実施してきた研究の成果をまとめたものであり、まず、富山県工業技術センター富山研究所で実施した5グループの研究の概要は次のようなものである。

「フレキシブルハンドに関する研究」のグループ（参加企業数4社）の研究報告においては、前年度に引き続き民生用（例えば看護）ロボットの知能化を取上げ、DCサーボモータ、超音波モータ、フレキシブルシャフト、FRPおよび形状記憶合金などを用いた自由度6の軽量ロボット用アームを試作し、更に試作したアームをフレキシブルにドライブさせるためのコンピュータ制御システムなどに検討を加えた結果について述べている。

「ZnO系セラミックス薄膜に関する研究」のグループ（参加企業数4社）の研究報告においては、ZnO系セラミックス薄膜の音響光学素子や表面波デバイスなどへの応用を取上げ、圧電性を向上させるためにNb₂O₅など他の金属酸化物を微量添加した薄膜を種々の電極上にマグネトロンスパッタなどで作製し、これら薄膜の作製条件、結晶配向および音響光学特性などに検討を加えた結果について述べている。

「樹脂・ファイバー複合材バネに関する研究」のグループ（参加企業数4社）の研究報告においては高強度かつ高耐熱のFRPの開発を取上げ、常温で液状の脂環式エポキシ樹脂、フレキシブルエポキシなどとカーボンファイバーを組合わせたもの、および常温で粉末のポリイミド変性エポキシ樹脂とカーボンファイバーとを組合わせたものなどをコンプレッション成形で作製し、試作した試料の機械的強度および熱変形温度などに検討を加えた結果について述べている。

「Pb系セラミックス薄膜に関する研究」のグループ（参加企業数5社）の研究報告においては、PLZTおよびPZT薄膜の単結晶化と電気光学素子および赤外線アレイなどへの応用を取上げ、これらPb系セラミックス薄膜を種々の基板上にマグネトロンスパッタで作製し、透明単結晶薄膜を得るための作製条件、薄膜の複素屈折率、電気光学特性および焦電特性などに検討を加えた結果について述べている。

「アモルファス磁性薄膜に関する研究」のグループ（参加企業数1社）の研究報告においては、C₀系アモルファス薄膜の高速用磁気ヘッド材などへの応用を取上げ、薄膜の安定性向上のためにC₀に他の金属（2～3種類）を微量添加した薄膜をマグネトロンスパッタで作製し、これら薄膜の低温高速着膜方法、初透磁率、周波数特性およびB-Hカーブならびに結晶化温度などに検討を加えた結果について述べている。

富山県高志リハビリテーション病院 理学博士 山本 敏泰

富山県高志リハビリテーション病院で実施した1グループの研究の概要は次のようなものである。

「障害者のための学習機能を有するマンマシンシステムの研究」のグループ（参加企業数2社）の研究報告においては、今回（3年計画の第一年度）は中枢神経麻痺による麻痺上肢の機能再建を目的とした機能的電気刺激において、本来REDUNDANTな筋骨格系のシステムの複雑な組合せ動作を、より自由に選択・構成するためのシミュレータを開発することを目的として、障害者が音声および筋電位によって操作するための計測およびデジタル信号処理手法の研究、ならびに、音声認識についてはDTW（DYNAMIC TIME WARPING）パターンマッチング手法に基づいたワンボードシステムの試作、および筋電位については、時系列解析によるAR（AUTOREGRESSIVE）パラメータを利用した手法などに検討を加えた結果について述べている。

以上、本書は6つの独立した研究課題と結果から構成されているが、これらの研究は必ずしも完成されたものではなく、今後も継続して研究を進めていく必要があるものと考えている。しかし、これらの研究を遂行する過程で得られた様々な成果は、本会会員企業ならびに本県産業の科学技術力向上と発展のために十分に役立つものであることを確信すると共に、本会が更に発展、飛躍し、多大な成果を上げられんことを期待する。

なお、本会の研究を推進するにあたり、内外の方々より多大なご助力、ご助言を賜わったことに対して、深く感謝の意を表します。

平成元年3月

研究グループの構成

1. 「フレキシブルハンドに関する研究」グループ

研究担当者	窪池 義文 (エルコー㈱)
	茨木 正則 (北日本電子㈱)
	石崎 浩 (タカノギケン㈱)
	瀧森 幸浩 (")
	滝脇 優治 (㈱タナカエンジニアリング)
研究指導者	藤城 敏史 (工業技術センター)
	角崎 雅博 (")
	谷野 克巳 (")

2. 「ZnO系セラミックス薄膜に関する研究」グループ

研究担当者	平能 司 (㈱和泉電気富山製作所)
	小町 秀彦 (㈱タカギセイコー)
	小西 孝浩 (タカノギケン㈱)
	滝川 義弘 (燐化学工業㈱)
研究指導者	二口 友昭 (工業技術センター)
	浅田 峯夫 (")
	田村 幾夫 (")
	谷野 克巳 (")

3. 「樹脂・ファイバー複合材バネに関する研究」グループ

研究担当者	柳原 潔 (㈱黒田精型)
	池田 秀雄 (㈱タカギセイコー)
	上段 一徳 (東洋化工㈱)
	長柄 勝 (長柄鉄工㈱)
研究指導者	林 博 (工業技術センター)
	中川 章 (")
	松本 岩男 (")
	土肥 義治 (")
	谷野 克巳 (")

4. 「Pb系セラミックス薄膜に関する研究」グループ

- 研究担当者 水谷 里志（立山電化工業㈱）
山田 義昭（東洋化工㈱）
山本 直樹（NKK（日本鋼管㈱）富山製造所）
中溝 佳幸（北陸電気工業㈱）
宮沢 進一（吉田工業㈱黒部工場）
- 研究指導者 田村 幾夫（工業技術センター）
浅田 峯夫（ ” ）
二口 友昭（ ” ）
谷野 克巳（ ” ）

5. 「障害者のための学習機能を有するマンマシンシステムの研究」グループ

- 研究担当者 古瀬 正浩（㈱インテック）
堀井 孝（エルコー㈱）
- 研究指導者 加藤 朗（高志リハビリテーション病院）
山本 敏泰（ ” ）

6. 「アモルファス磁性薄膜に関する研究」グループ

- 研究担当者 越浜 哲夫（㈱不二越東富山製鋼所）
- 研究指導者 浅田 峯夫（工業技術センター）
田村 幾夫（ ” ）
二口 友昭（ ” ）
谷野 克巳（ ” ）

註：各グループ中、企業名は50音順

目 次

I. フレキシブルハンドに関する研究	1
- ロボット用アームの試作 (II) -	
1. 結 言	1
2. 前回試作アームの問題点	1
3. ロボット用アームの構造	2
4. ロボット用アームの制御	7
5. 結 言	10
II. ZnO系セラミックス薄膜に関する研究	11
- 圧電薄膜音響素子の開発 -	
1. 結 言	11
2. ZnO系薄膜の作製	12
3. 音響素子への応用	16
4. 結 言	18
III. 樹脂・ファイバー複合材バネに関する研究	19
1. 結 言	19
2. 液状タイプ樹脂によるCFRPの概要	20
3. 粉末タイプ樹脂によるCFRPの概要	25
4. 結 言	28

IV. Pb系セラミックス薄膜に関する研究	29
—光シャッター及び赤外線センサーの開発をめざして—	

1. 結 言	29
2. ITO (透明導電極) の作製と物性	30
3. PLZT薄膜の作製と応用	32
4. PZT強誘電体薄膜の作製と物性	35
5. 結 言	38

V. 障害者のための学習機能を有するマンマシンシステムの研究	39
—機能的電気刺激のための上肢機能シミュレータの研究開発—	

1. 結 言	39
2. FESシステム	40
3. 音声認識システム	40
4. 筋電位計測モジュール	44
5. 今後の課題	46

VI. アモルファス磁性薄膜に関する研究	49
----------------------	----

1. 結 言	49
2. 実 験 方 法	50
3. 実験結果および考察	51
4. 結 言	56

I. フレキシブルハンドに関する研究

- ロボット用アームの試作 (II) -

Study of Flexible Hand

- The trial production of the articulated manipulator of the robot (II) -

Abstract

In the last time, we had been produced the articulated manipulator of the robot by way of trial. But, the trial product had various point at issue, for instance, (1)gears are shaky, (2)form of arm is rough, (3)strength of finger is weak, and (4)fellow parts interferes in each others.

So in this time, an experimental study was made on the selection of servo motors, gears, flexible shafts, NiTi shape memory alloy, and softwares of computer.

As the result of abovementioned, the articulated manipulator of the robot that has used 6 servo motors, harmonic gears, flexible shafts, NiTi shape memory alloy, GFRP and effective softwares of computer is proved the excellent performances, for instance, (1)degree of its freedom is 6, (2)strength of its finger is strong, (3)weight of its arm is light, and (4) its movement is smooth and flexible (in this connection; computer language of this control system are Assembly and C).

1. 緒言

ロボットの作業能力が増加するにつれて、人間の作業能力を代替えるロボットが求められてきている。しかし、ほとんどのロボットは人間味がなく、特定の目的や、特定の作業にしか対応できない。このため、我々はより人間らしいロボットの製作を最終目的として、ロボットの手(フレキシブルハンド)の開発研究を行っている。

前年度は、形状記憶効果をもつNiTi合金を用いたロボット用アームの試作を行った¹⁾が、アームを実際に動作させてみると、種々の改善すべき点があった。そこで、今回は駆動機構方式の変更、FRPの使用による強度の増加と軽量化、並びに制御方式の改善を行い、より完成度の高いアームについて試作実験を行った。

2. 前回試作アームの問題点

前回試作のアームを詳細に検討したところ、以下のような問題点があった。

- ① 構成部品や材料の強度計算を詳細に行っていなかったため、必要以上に剛性がある所や強度的に弱いところがある。
- ② 各ギヤのかみ合わせが甘く、手首部分で5mm程度のガタがある。
- ③ 全体的にごつごつした感じで丸みがなく機械的である。
- ④ 部品同士が干渉、接触する部分があり、各部の回転角が計画よりも小さい。
- ⑤ 指部の材料の強度が小さく折れ易い。
- ⑥ 親指の動き方や指全体の動き方が不自然である。
- ⑦ 指の屈伸部の摩擦が大きく、NiTi合金の力が有効に出ていない。

3. ロボット用アームの構造

3.1 アーム部の構造

(1) アーム部の機構

図1は試作したアームの全体写真、および図2はアーム部の概略図を示す。アーム部の自由度は肩前後、肩左右、上腕回転、ヒジ屈伸、下腕回転および手首上下の6とした。アーム部の構造は強度と精度をあげるため、ハーモニックギヤを関節として用いた。また、軽量化を図るため全てのサーボモーターはアームを取り付ける胴体の中に格納し、動力はフレキシブルシャフトを用いて各軸に伝える方式とした。なお、アーム部の外形は柔軟な感触を出すため、なるべく曲面形状で仕上げた。各軸の可動回転角は、部品の相互の干渉を計算し、なるべく大きく取れるように設計した。表1は各軸の最大回転角を示す。

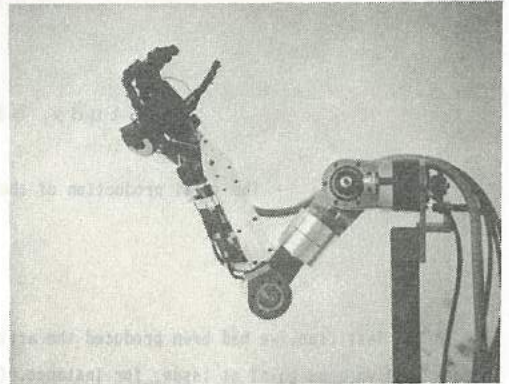


図1. アーム全体の概要

Fig.1. Appearance of the robot arm.

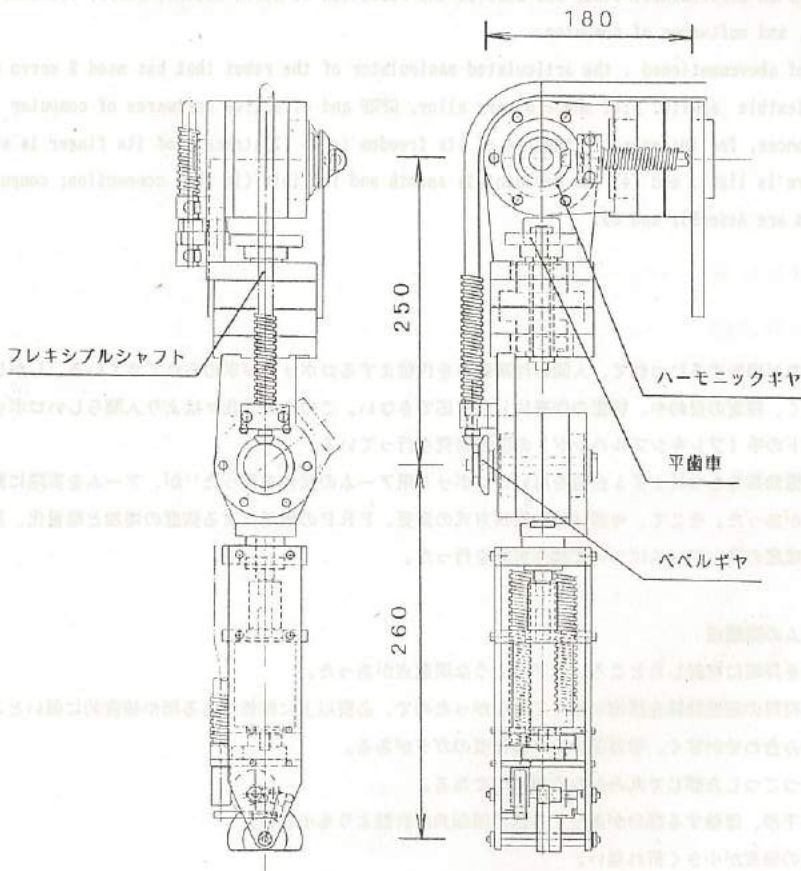


図2. アーム部の概略図

Fig.2. Mechanical structure the robot arm.

次に、前回のアームに対して今回のものの変更点と特徴を以下にまとめて述べる。

- ① モーターをアーム部から外し、アームの軽量化をはかった（ただし、今回のアームの重量は構造を強化したため前回より増えている）。
- ② モーターをアーム中に取り付けていないため、各関節の回転中心を合わせる事が可能となり、制御が容易となった。
- ③ ユニバーサルジョイント方式の関節機構からハーモニックギヤ直結方式として回転角度を大きくした。
- ④ 動力の最終段で高減速比のハーモニックギヤを採用し、ガタを少なくした。

(2) アーム部の強度

図3はアームの荷重計算方法を示す。トルクの計算は、ギヤ等の重い部品の荷重はそれぞれの重心にかかるものとし、その他の部品はそれぞれ上腕および下腕に等分布荷重でかかるものとした。また、可搬重量を2Kgとし、荷重を手首部に加えて計算を行った。表2は計算より求めた各軸の必要トルク、および表3は使用したモータの出力を示す。表より、ハーモニックギヤの効率を80%と仮定しても、肩部で2.3倍、ヒジ部で3.2倍の安全率が見込める。実際に、アームを組み立てた後、アームを伸ばした状態で2Kgの重量を持ち上げることが可能であった。

表2. 計算による各軸のトルク

Table 2. Torque of spindles by calculation.

荷重点	荷重(Kgf)	スパン(cm)	A点にかかるトルク(Kgf·cm)	B点にかかるトルク(Kgf·cm)
1	可搬重量 2.0	51.0	52.00	102.00
2	0.85	51.0	22.10	43.35
3	0.495	38.2	6.53	18.91
4	等分布荷重 0.405	25 ~ 51	2.63	7.70
5	0.6	25.0	----	15.00
6	0.21	25.0	----	5.25
7	0.6	12.3	----	7.38
8	0.21	12.3	----	2.58
9	等分布荷重 1.33	0 ~ 25	----	8.31
合計			83.26	210.48

表1. 各軸の最大回転角

Table 1. Max movable angles of spindles

肩前後	180° (100°)
肩左右	120° (90°)
上腕回転	150° (150°)
ヒジ屈曲	110° (100°)
下腕回転	180° (180°)
手首上下	100° (90°)

カッコ内は前試作アームのデータ

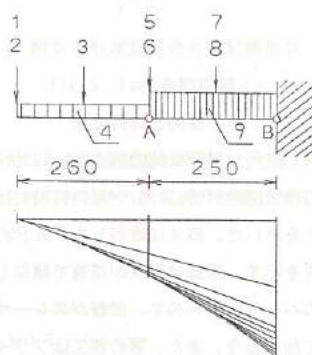


図3. アームの荷重の計算方法

Fig.3. Calculating method of load for arm.

表3. 使用モーターと各軸のトルク

Table 3. The kinds of motor and their torques.

	モーター型番	減速比	モーターによる各部のトルク (Kgf·cm)	計算から必要な各部のトルク (Kgf·cm)
肩 前後	R 4 0 4	1/600	8 1 0	2 1 0 . 4 8
肩 左右	R 4 0 4	1/600	8 1 0	2 1 0 . 4 8
上腕回転	R 4 0 2	1/600	4 5 0	8 3 . 2 6
ヒ ジ	R 4 0 2	1/600	4 5 0	8 3 . 2 6
下腕回転	R 3 0 1	1/200	7 2 . 0	2 2 . 1 0
手首上下	R 3 0 1	1/160	5 7 . 6	1 8 . 9 1

3. 2 ハンド部の構造

(1) ハンド部の機構と制御方法

本研究で使用した形状記憶合金は、50% Ni-Ti系合金で、直径が1.0mmの線材(古河電工製)である。図4は、試作したハンド部の構造図を示す。ハンド部の材料には絶縁性、耐熱性および機械的強度を得るためエポキシ系の樹脂をガラス織布で強化したFRPを用いた。表4は成形したFRPの成形条件を示す。指部は形状が複雑で類似した形状のパーツが多いので、炭酸ガスレーザを用いて加工した。また、掌の加工はフライス盤を用いた。指の動作をスムーズにするため、関節が擦れ合う部分の側面にはフッ素樹脂系潤滑塗料(ルブリコートF-15ED、日華化学製)を塗布し、また、各関節の接合部にはベアリングを使用した。形状記憶合金が指から外れないように支持する穴の形状は、第2および第3関節部を楕円形状とし、形状記憶合金が前後にスムーズに動くことができるようにした。指の曲げ方向の駆動は、形状記憶合金を図5の様に記憶させ、これを通电加熱することによって行った。親指は、他の指と異なり1本で重量を支えなければならないので、第3関節にソレノイドを用いて、ストッパー付きの関節とすることで保持力を強化した。なお、親指の第3関節の曲げ方向の力にはネジリコイルスプリングを用いた。指の開きは、前回と同様に超音波モータを用いて、指の先端に取り付けたワイヤーを巻き上げる方式とした。

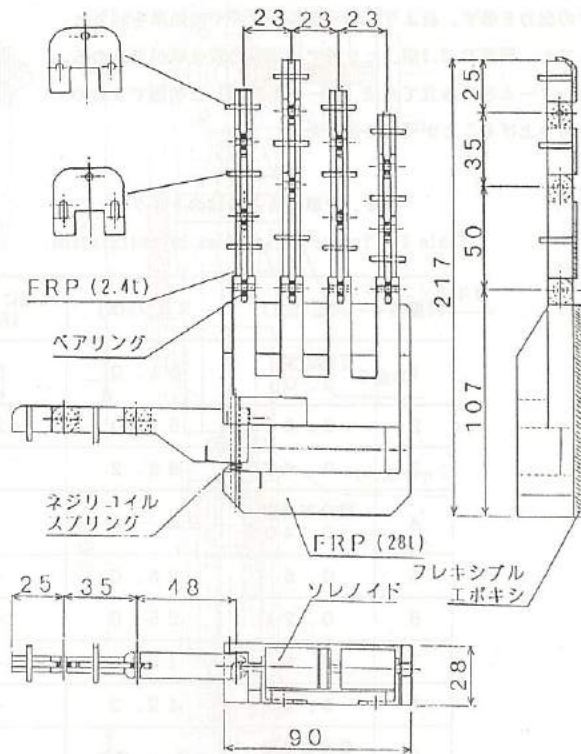


図4. 試作したハンド部の概要図

Fig.4. Mechanical structure of the palm.

表4. FRPの成形条件

Table 4. Molding condition of FRP

ガラス織布	WF-230-N100 (t = 0.2)
織布の枚数	指: 20枚 (t = 2.4) 掌: 180枚 (t = 28.0)
エポキシ樹脂	EX-19C
硬化剤	MEX-19C
混合比率	10 / 9 (樹脂/硬化剤)
成形圧力	25 ton (スパーサ使用)
成形品直径	150 mm
成形温度	160 °C
成形時間	1時間

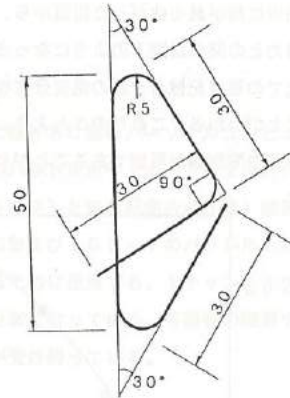


図5. 形状記憶合金の記憶形状

Fig.5. Form of SMA.

形状記憶合金の制御は、周期が 100ms の PWM 制御の通電加熱方式を採用し、最大 3 A の電流制御も同時に行っている。図 6 はそのブロック図を示す。形状記憶合金の温度は、形状記憶合金とコンスタンタン線を組み合わせた熱電対の起電力から求めた²⁾。図 7 は 5 m のシールド線を補償導線の代わりに用いた場合の熱電対の出力特性を示す。

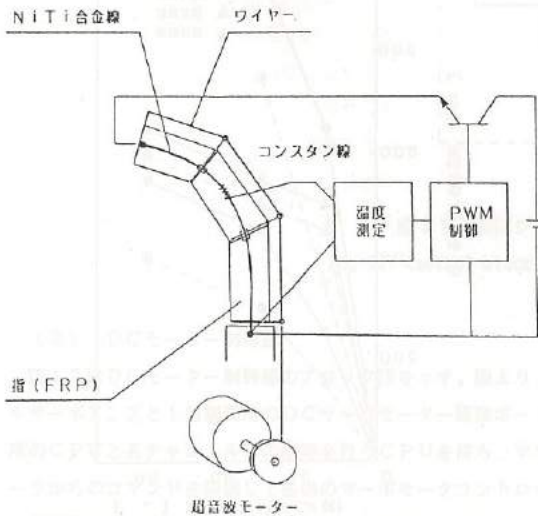


図6. 形状記憶合金の温度の測定と制御の概要

Fig.6. Control system block diagram of SMA.

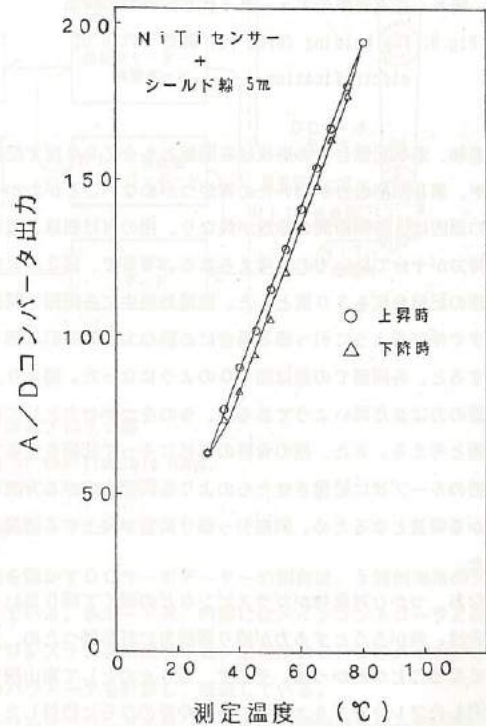


図7. 形状記憶合金熱電対の熱起電力特性

Fig.7. Temperature characteristics of thermoelectromotive force.

(2) ハンド部の特性

通電加熱中に指が最も曲がった位置から、少しでも指を開かせようとするのに必要な力を保持力とすると、通電加熱のデューティ比と保持力との関係は図8のようになった。図よりデューティ比を大きくすると保持力が大きくなることからわかる。図9は各デューティ比での形状記憶合金線の温度分布を示す。図より、デューティ比を40%以上にしないと形状記憶合金の全体がMs点を越えないことがわかる。これらのことより、保持力は形状記憶合金の温度がMs点を越えているか否かに関係し、デューティ比により保持力の中間制御が可能であることがわかった。

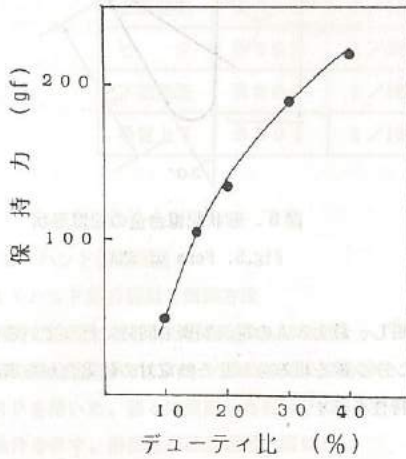


図8. 通電加熱のデューティ比と保持力の関係
Fig.8. The holding force vs. duty ratio of electrification.

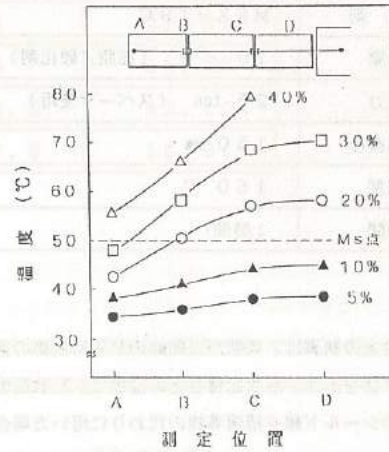


図9. デューティ比と形状記憶合金の温度分布
Fig.9. The temperature distributions of SMA vs. duty ratio of electrification.

当初、形状記憶合金の形状は各関節とも全て90度で記憶させたが、第3関節の力が弱いため物がかめないことがわかった。この原因は、各関節間の距離が異なり、指の付け根ほど長いので、把持力が十分でないものと考えられる。そこで、第2および第3関節の記憶角度を30度とした。通電加熱中に各関節で関節がまっすぐ伸びるように引っ張る場合に必要な力を関節引っ張り荷重とすると、各関節での値は図10のようになった。図より、第3関節の力はまた弱いようであるが、ものをつかむ力としては十分な値と考える。また、指の骨格の形状にそって記憶させる方式は、前回のループ状に記憶させたものより各関節の曲がる方向に力がかかる構造となるため、関節引っ張り荷重が向上する結果が得られた。

なお、つかむ対象物がガラスビンなどの硬くて滑り易いもの場合は、曲がろうとする力が滑り摩擦に打ち勝つため、つかめなくなることがわかった。そこで、滑り止めとして富山研究所で開発したフレキシブルエポキシを指や手のひらに接着したところ、滑らなくなり、硬いものもつかむことが可能となった。

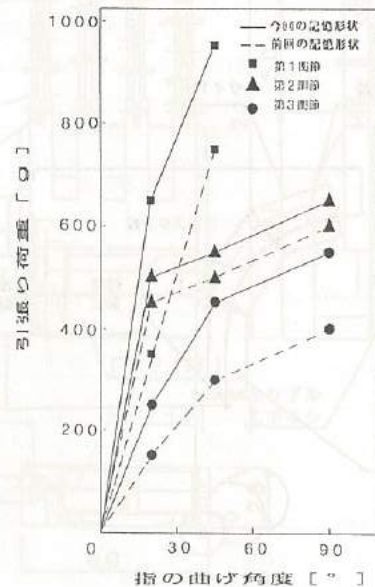


図10. 指関節引っ張り荷重特性

Fig.10. The tensile load characteristics of finger joints.

4. ロボット用アームの制御

4.1 ハードウェア

(1) システム概要

図11は本制御システム全体のブロック図を示す。図より、メインコントローラにはNEC製のパーソナルコンピュータPC-9801を使用し、外部制御部へのインターフェースにRS-232Cおよび汎用のパラレルポートボードを2枚用いている。外部制御部はDCモーター制御部（5チャンネルアンプと1チャンネルドライバーからなる）と形状記憶合金（指）制御部の2つのブロックに分かれている。5チャンネルのサーボアンプとの接続にはRS-232Cおよび10ビットのパラレル入出力がある。パラレルのインターフェースはコマンド通信だけでは制御できない部分をカバーするために使用する。1チャンネルのサーボドライバーと形状記憶合金制御用ボードとは8ビットのパラレルハンドシェイクで通信をおこなっている。可動部の限界チェック用のリミット、およびモーターの原点位置用のリミットはすべて各モーターコントロールが受け持っている。

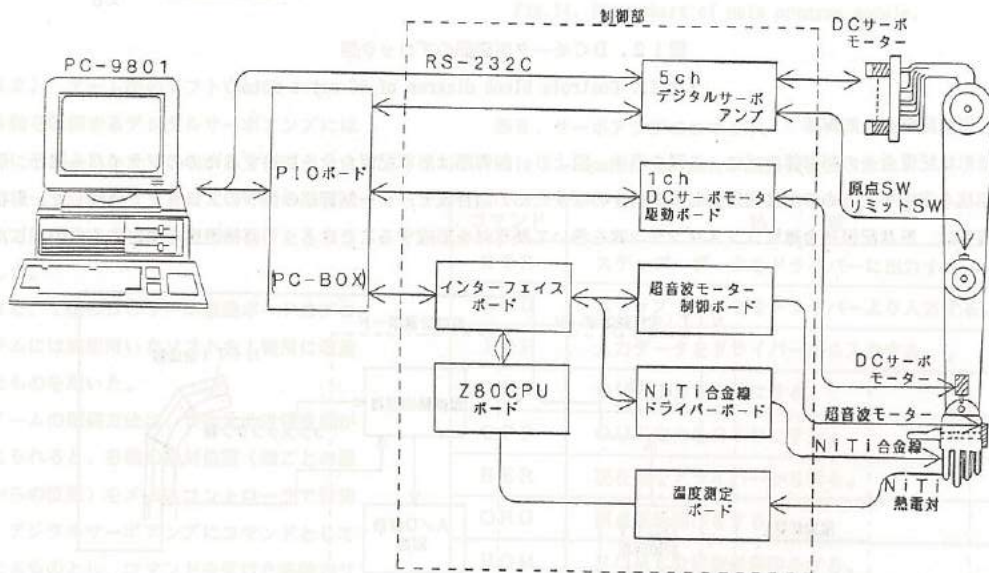


図11. 制御システム全体のブロック図

Fig.11. Control block diagram of the flexible hand.

(2) DCモーター制御部

図12はDCモーター制御部のブロック図を示す。図より、各関節を動かすDCサーボモーターの制御は、5軸制御用のデジタルサーボアンプと1軸制御用のDCサーボモーター駆動ボードで行っている。各ボード共、内部にはメインコントローラとの通信用のCPUと各チャンネル毎の制御を行うCPUを持ち、マルチCPUシステムを構成している。通信用のCPUはメインコントローラからのコマンドを解釈して各軸のサーボモーターコントローラ用のパラメータを計算し、転送している。

5軸用のデジタルサーボアンプでは、1回転500パルスのロータリーエンコーダを用い、5軸の同時制御を行っている。また、1チャンネルのDCサーボモーター駆動ボードには1回転96パルスのロータリーエンコーダを用いた。この場合、減速比から計算すると肩部の前後・左右では約830分の1度で制御が可能である。

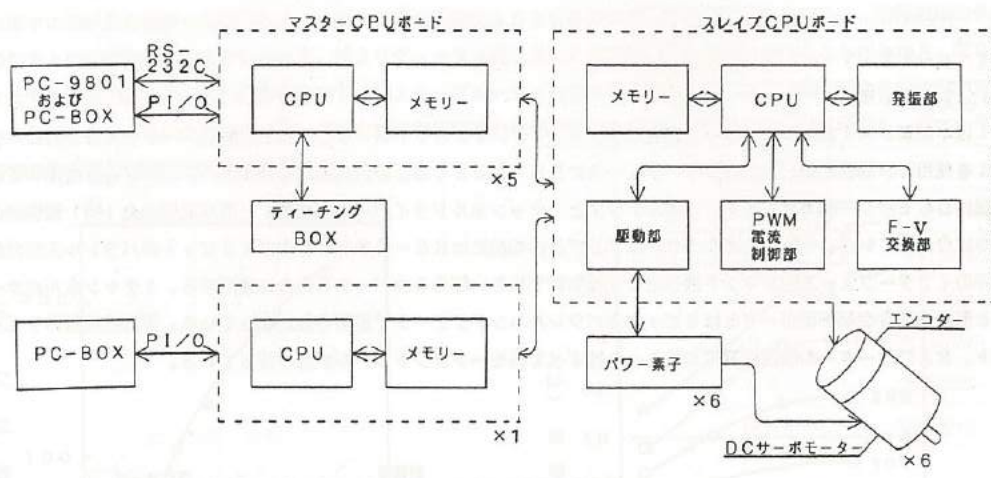


図12. DCモータ制御部のブロック図

Fig.12. Control block diagram of DC servo motor.

(3) 形状記憶合金制御部

図13は形状記憶合金の制御部のブロック図を示す。図より、制御部は形状記憶合金を加熱するためのドライバー部と、形状記憶合金の温度を測定するための温度測定部および指をのばすための超音波モーター制御部の3つのブロックで構成した。形状記憶合金線の温度は、形状記憶合金線にコンスタンタン線を巻いて熱電対を形成することによって直接温度を測定するものとした。

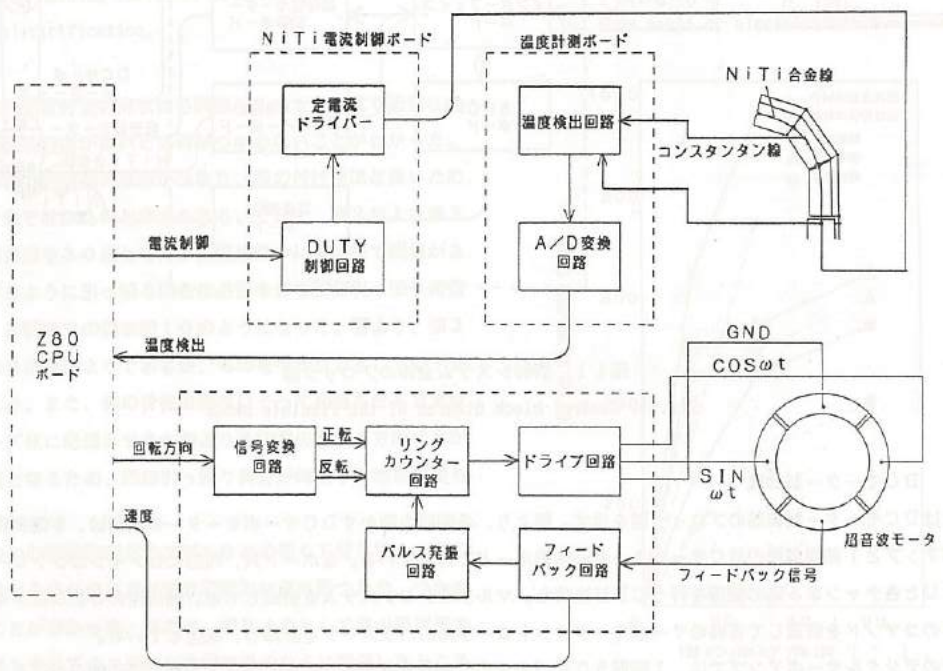


図13. 形状記憶合金制御部のブロック図

Fig.13. Control block diagram of SMA.

3.2 ソフトウェア

(1) 制御部のソフトウェア

図14はメインコントローラ(PC-9801)のプログラムのフローチャートを示す。プログラムはC言語で記述した。このプログラムでは、キー入力されたプログラム番号に従って各サブCPUに起動命令を与え、その後は異常時の処理のみを行ない、各軸の実際の制御は各サブCPUが行うようにした。

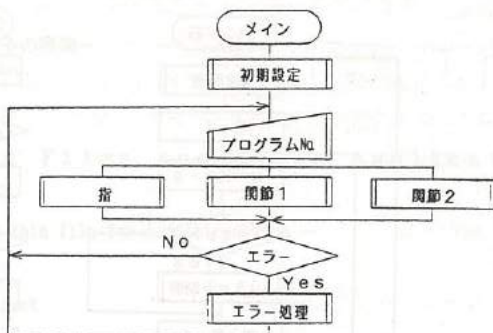


図14. メインプログラムのフローチャート

Fig.14. Flow chart of main program module.

(2) アーム部のソフトウェア

5軸を制御するデジタルサーボアンプには表5に示すようなコマンドがあり、メインコントローラからRS-232Cで指令を受け、アンプ部だけでモーターの制御を行えるようにした。

また、1軸のDCサーボ駆動ボードのプログラムには前回用いたソフトを1軸用に改造したものを用いた。

アームの制御方法は、3次元の目標座標が与えられると、各軸の絶対位置(軸ごとの原点からの位置)をメインコントローラで計算し、デジタルサーボアンプにコマンドとして与えるものとし、コマンドを受けた各軸のサーボアンプは、同時に、モーターを指定された位置へと制御する。このとき、メインコントローラは各軸の移動状況を監視している。

表5. サーボアンプのコマンド

Table 5. Comands of servo-amplifire.

コマンド	処 理
STR	ステップ・データをドライバーに出力する。
LOD	ステップ・データをドライバーより入力する。
INP	入力データをドライバーから入力する。
OON	OUT出力をONにする。
OFF	OUT出力をOFFにする。
HER	現在値をドライバーから得る。
ORG	原点復帰動作をする。
HOM	HOME位置復帰動作をする。
MOV	1軸ずつダイレクトで動かす。
MVI	ダイレクトで位置決め動作をする。
RUN	指定範囲のプログラムを実行する。
STP	その場で停止およびサイクルの停止。

(3) ハンド部のソフトウェア

指の制御は形状記憶合金の温度を測定してフィードバック制御を行っている。制御方法としてはP(Proportional)制御を用いた。図15は指の制御プログラムのフローチャートを示す。プログラムはZ80のマクロアセンブラで記述した。メインルーチンでは各形状記憶合金の温度の測定と、測定した温度にもとづいて各関節を曲げるための通電パルスのデューティ比の制御を行っている。タイマ割り込みルーチンでは出力パルスのON・OFFの制御を行っている。さらに、外部割り込みルーチンではメインコントローラからの指令を受け取り、指をのばすための超音波モーターの制御も行っている。

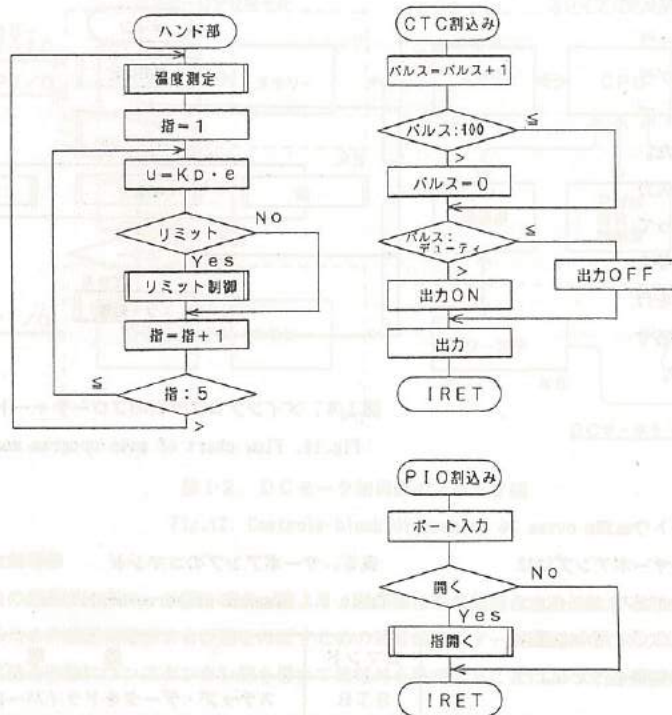


図 15. 指の制御プログラムのフローチャート

Fig.15. Flow chart of finger control program.

5. 結 言

ここでは、人の手の機構に近く、つかむものの形状をなぞるようにして把持することが可能なロボット用アームの開発を目的として、形状記憶合金などを用いたアームの改良研究を行ったところ、以下のような結果が得られた。

- ① アームにハーモニックギヤやフレキシブルシャフトを利用したところ、アーム部の軽量化と強度を向上させることができた。
- ② 指の材料にガラスファイバーで強化したFRPを使用したところ、ハンド部の軽量化と強度を向上させることができた。
- ③ 制御方法として、形状記憶合金の温度を直接測りPWM制御を採用することによって中間制御が可能となることがわかった。
- ④ ハンドのつかみ部の形状やすべり摩擦係数は、物をつかむときの重要な要素であり、滑り止めや支点の強化などを十分に考慮する必要があることがわかった。

最後に、本研究の遂行に対して多大なご助力をいただいた工業技術センター富山研究所の林主任研究員、松本主任研究員および中央研究所の向山副主幹研究員に対し深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 昭和62年度若い研究者を育てる会研究発表会研究論文集、P38~57
- 2) 昭和61年度電気関係学会北陸支部連合大会予稿集、P261~262

II. ZnO系セラミックス薄膜に関する研究

- 圧電薄膜音響素子の開発 -

Preparation of ZnO Thin Films and Their Applications

- The development of piezoelectric thin film for acoustic device -

Abstract

Recently, there is required to miniaturize the electronic parts and to accumulate the electronic circuits with the high density. So, this factor has been led to an increasing interest on the ferroelectric ceramic thin films or the piezoelectric ceramic thin films. Particularly ZnO thin films that are oriented with C-axis in their crystallographic axes have been investigated as one of the promising materials for the optical wave guide elements, acoustooptic effect devices and SAW devices.

Generally, the growth techniques of ZnO thin films are adopted mainly RF sputtering from ZnO sintered ceramic targets that are contained Li₂O or MnO. So, we made several investigation in order to develop the acoustic devices by ZnO-metal oxide composite thin films which have excellent characteristics. The methods of analysis adopted in this study are X-ray diffraction method and scanning electron micrograph. The qualities of ZnO thin films that have been oriented with C-axis in their crystallographic axes were evaluated by X-ray rocking curves. Beside, electrical characteristics of their thin films were measured by impedance measuring-set.

As the result of abovementioned, ZnO-Nb₂O₅ thin film that has deposited on the glass plates is proved the useful characteristics. For instance,

- (1) The oriented axis of its crystal is C-axis only,
- (2) Its electrical resistivity is higher than that of ZnO film, but lower than that of ZnO-MnO film,
- (3) Its piezoelectric element fixed on the Ti thin film's electrode is useful for the acoustic devices.

1. 緒言

近年、強誘電体あるいは圧電体セラミックスを積極的に薄膜化しようとする動きが活発化している。これは、電子部品や電子回路において、小型で高密度化に適した構造が求められているためである。また、薄膜は単に薄だけでなく、高密度で空孔のない構造や単結晶に近いものなど、高安定性と高信頼性が実現される可能性があり、電子材料、部品の分野で今後さらに重要性が増していくものと考えられる。

ここでは、圧電体セラミックスであるZnO系薄膜の作製とその応用について研究を行った。ZnOは図1に示すようなウルツァイト構造を有する化合物半導体であり、そのバンドギャップは室温で3.1 eVと大きいため、可視光に対して透光性を示し、さらに価電子制御によってその導電性を大きく変化させることができる。また、対称中心を持たない構造であるため、その単結晶体やC軸が配向したものにおいては、圧電性あるいは電気光学効果を示す。これらの特徴ある機能を有するため、これまで多くの研究がなされ、その圧電性を利用したSAW(表面弾性波)素子等が実用化されており、最近では、光導波路や音響光学素子への応用が報告されている¹⁾。これらの応用においては、膜の特性を向上させるために、種々の金属酸化物を添加することが検討され、特に圧電性の向上のためには、Li₂O、MnO等の添加物が有効であることが知られている²⁾。本研究では、まだ報告例のないNb₂O₅を添加した系について、薄膜の作製条件及び特性を検討を行った。

また、近年、オーディオの分野も軽薄短小へ移行しはじめ、圧電スピーカーが注目されている。現在、市販されているものはPZT磁器を金属板に張り付けたものが多いが、薄膜を応用すれば、薄小化に加え特徴ある周波数特性が得られることも期待される³⁾。本研究では、ZnO薄膜を種々の振動板に着膜させた音響素子を試作し、その特性についても検討を行った。

2. ZnO系薄膜の作製

2.1 実験方法

(1) スパッタ用ターゲットの作製

図2は焼結体ターゲットの作製工程を示す。すなわち、セラミックス原料粉末にバインダーとしてPVA(ポリビニルアルコール)を添加し、 150 kg/cm^2 の圧力でプレス成形を行い、 1000°C 前後で2時間焼成した。また、より高密度なターゲットを作製する場合は図3に示すようなホットプレスを用いた。図4はその焼結過程の一例を示す。この場合は 900°C 付近から焼結が始まり、 1000°C 、1時間で焼結が完了している。このようにホットプレスを用いれば、焼結過程をモニターしながら適切な焼成条件を設定し、高密度な焼結体を得ることができる。

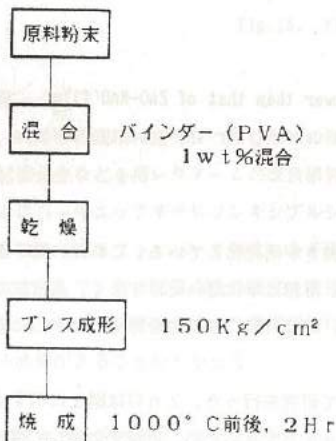


図2 ターゲットの作製工程

Fig. 2. Flow sheet for preparation of targets.

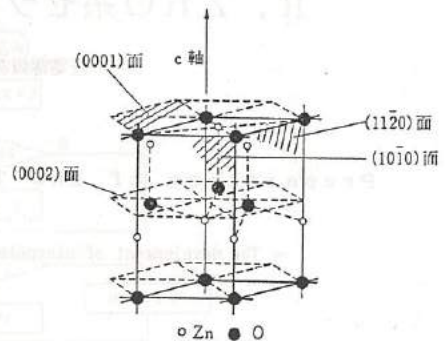


図1 ZnO結晶構造

Fig. 1. Crystal structure of ZnO.

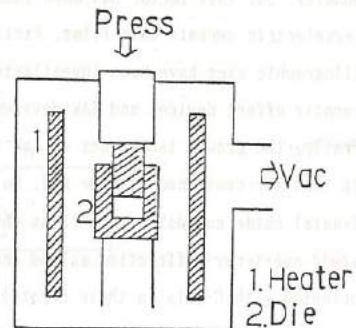


図3 真空ホットプレス装置の概要

Fig. 3. Apparatus of hot-press.

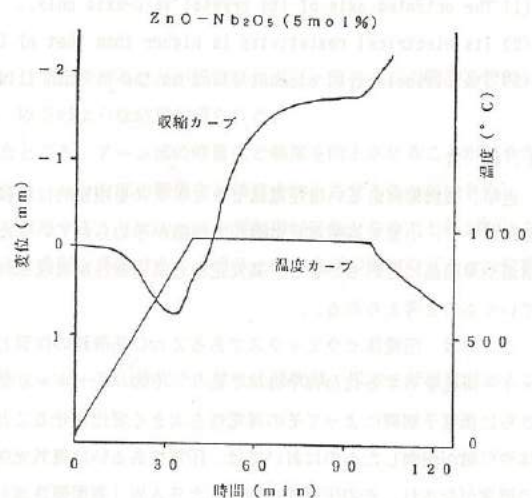


図4 ホットプレスによる焼成過程

Fig. 4. firing process of hot-press.

(2) 薄膜の作製

図5は薄膜の作製工程を示す。基板の洗浄として、中性洗剤、アルコール超音波、アセトン超音波等を組み合わせて用いた。下部電極及び上部電極の形成には、Au、Alの場合は真空蒸着装置（明石製作所製）、及びAl、Tiの場合はRFマグネトロンスパッタ装置（日電アネルバSPF-332H）を用いた。また、ZnO薄膜の形成には、RFマグネトロンスパッタ装置を用いた。図6は本装置の概要を示す。

(3) 特性の測定

得られたサンプルの膜厚については、接触式表面粗さ計及び走査電子顕微鏡を用いて測定した。図7は測定断面の一例を示す。膜の構造や配向性の評価には、X線回折装置（理学電機RAD-IIb）を用いた。膜の組成評価には、波長分散型X線マイクロアナライザ（明石製作所α30-AW）を用いた。電気特性の評価はサンプルにAgペーストでリード線付をした後、インピーダンスアナライザ及び絶縁抵抗計で測定した。

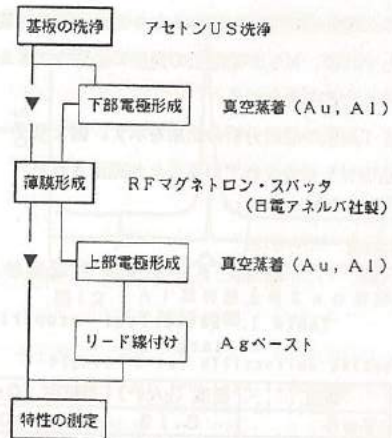


図5 薄膜の作製工程

Fig. 5. Flow sheet for preparation of thin films.

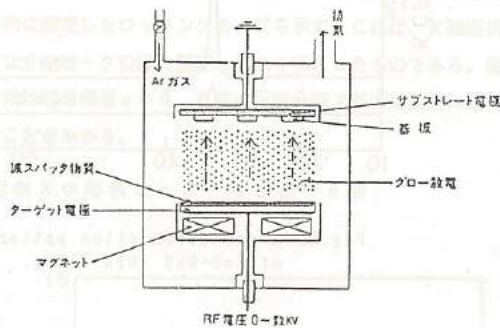


図6 RFスパッタ装置

Fig. 6. Apparatus of r.f. magnetron sputtering.

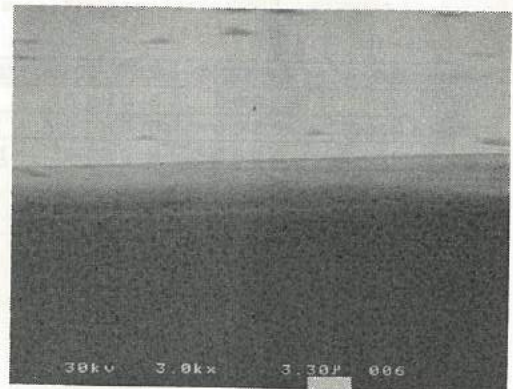


図7 ZnO-Nb₂O₅系薄膜断面の電顕写真

Fig. 7. Scanning electron micrograph of ZnO-Nb₂O₅ thin film.

2. 2 実験結果及び考察

(1) 添加物及び基板加熱温度の影響

添加物組成の影響を調べるために、ターゲットとしてZnO、ZnO-5mol%MnOおよびZnO-2.5mol%Nb₂O₅のものを作製した。表1はターゲットの電気特性、表2は薄膜の電気特性を示す。MnOを添加した系では、ターゲット及び薄膜の抵抗率は無添加のものに比べて大きくなっており、Nb₂O₅を添加した系では薄膜の抵抗率だけが大きくなっている。図8～図10は薄膜のX線回折図（ディフラクトパターン）を示す。図より基板温度を上げるにつれて、C軸方向の結晶成長（配向）がみられた。また、MnO、Nb₂O₅を添加した系では、C軸方向に配向し易いことが分かる。図10より、Nb₂O₅を添加した系では基板温度が比較的低温の200°C付近での配向が著しい。

これらの原因として、NbがC軸方向の結晶成長（配向成長）の活性化エネルギーを低下させる効果があるものと考えられ、また、抵抗率の増大は結晶粒が細くなり粒界抵抗の影響が大きくなったためとすれば、Nbが結晶核の発生に必要なエネルギーも低下させているものと考えられる。

図11は膜の組成分析の結果を示す。図よりターゲットとほぼ同じ割合のNbが含まれていることが確認された。

表1 ターゲットの電気特性

Table 1. Electrical properties of targets.

組成	密度 (g/cm ³)	抵抗率 (Ω·cm)	誘電率
ZnO	5.18	5.0×10^5	-
ZnO(MnO)	3.98	5.8×10^{10}	20
ZnO(Nb ₂ O ₅)	4.27	3.5×10^6	-

表2 薄膜の電気特性

Table 2. Electrical properties of thin films.

組成	基板温度(°C)	抵抗率 (Ω·cm)	誘電率
ZnO	300	5.0×10^7	-
ZnO(MnO)	300	5.0×10^{10}	9.9
ZnO(Nb ₂ O ₅)	200	8.0×10^9	17

<スパッタリング条件>

ガス圧 1 Pa (Ar : O₂ = 1 : 1)

進行波電力 200 W

反射波電力 20 W

スパッタリング時間 2 Hr (膜厚 2.5 μ)

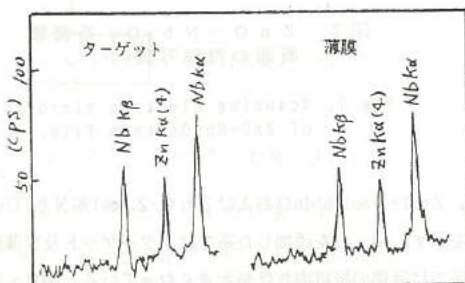


図11 ZnOターゲットおよび薄膜の組成分析

Fig. 11. X-ray microscopical analysis of ZnO-Nb₂O₅

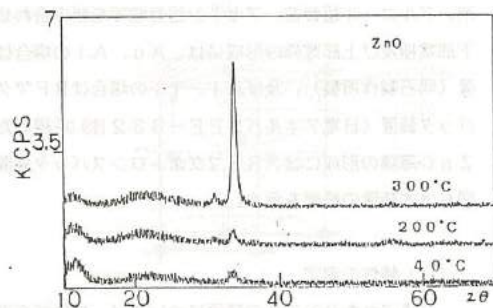


図8 ZnO薄膜のX線回折

Fig. 8. X-ray diffraction patterns of ZnO thin films.

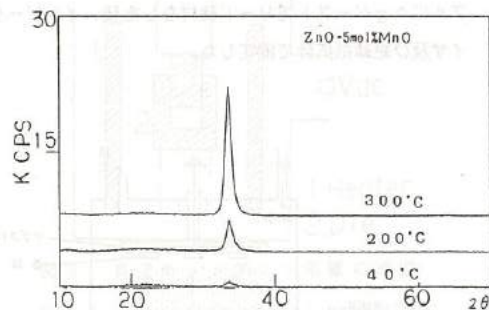


図9 ZnO-MnO薄膜のX線回折

Fig. 9. X-ray diffraction patterns of ZnO-MnO thin films.

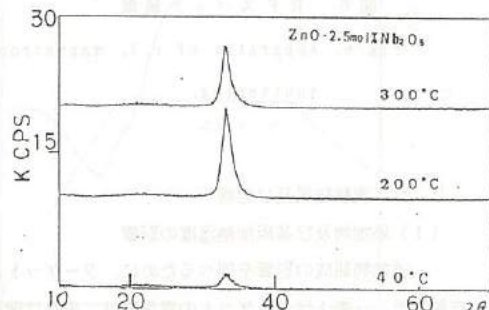


図10 ZnO-Nb₂O₅薄膜のX線回折

Fig. 10. X-ray diffraction patterns of ZnO-Nb₂O₅ thin films.

(2) 下地金属の影響

一般に、薄膜の結晶構造は基板や下地の影響を強く受ける。

ZnO薄膜の場合も、単結晶のサファイヤ基板を用いて適当な成膜条件で薄膜を成長させれば、単結晶薄膜がエピタキシャル成長することが知られている⁴⁾。ここでは、各種の下地金属上に薄膜を形成した場合について検討を加えた。図12はAl蒸着膜上、図13は真ちゅう基板上及び図14はTiスパッタ膜上にそれぞれ形成したZnO系薄膜のX線回折図を示す。図より、Nb₂O₅を添加したものはいずれの下地金属の場合においても、他のものよりC軸配向が起こり易い。

また、添加物の有無や種類によらず、Tiスパッタ膜、Al蒸着膜、真ちゅう基板の順にC軸配向がし易い。Tiスパッタ膜は結晶化しており、Al蒸着膜はアモルファスであることがX線回折からわかっている。なお、Tiの結晶構造は、a軸2.92Å、c軸4.87Åの六方最密格子であり、比較的ZnOの結晶構造に近い。これらのことから、ZnO薄膜のC軸配向は結晶構造の近い下地上で最も起こり易く、結晶構造の大きく異なるものよりは、むしろアモルファス状態のものの上で起こり易いものと考えられる。

図15はTiスパッタ膜上のものについて、C軸配向性をより定量的に測定したロックンクカーブを示す。これは、X線回折において2θをピーク位置に固定してθを振らせたものである。図より、C軸は標準偏差σ=4.5度の正規分布で基板に垂直に配向していることがわかる。

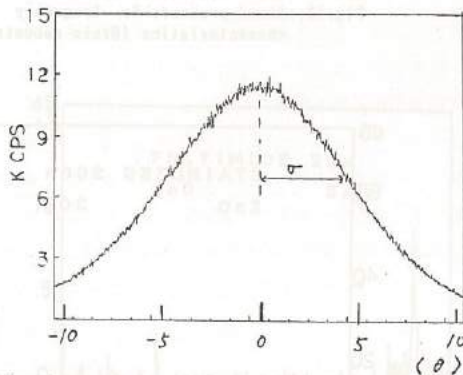


図15 Tiスパッタ膜上のZnO-Nb₂O₅薄膜のロックンクカーブ

Fig. 15. Rocking curve of ZnO-Nb₂O₅ thin film on sputtered Ti film.

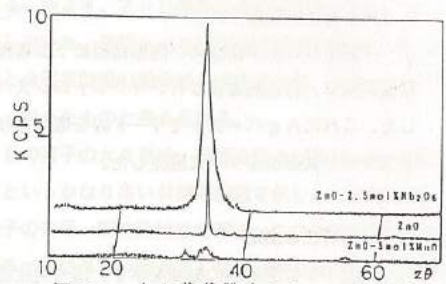


図12 Al蒸着膜上のZnO系薄膜のX線回折図

Fig. 12. X-ray diffraction patterns of ZnO thin films on evaporated Al film.

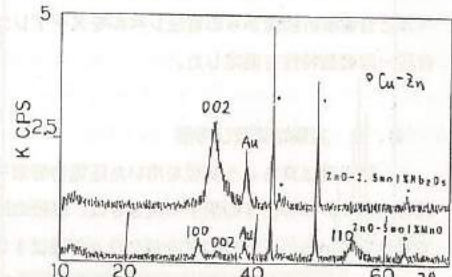


図13 真ちゅう基板上のZnO系薄膜のX線回折図

Fig. 13. X-ray diffraction patterns of ZnO thin films on brass substrate.

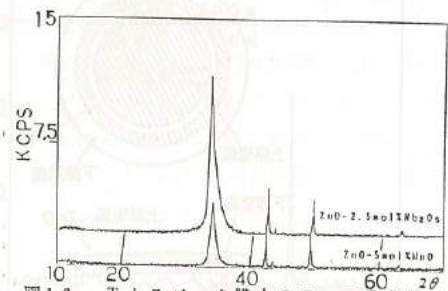


図14 Tiスパッタ膜上のZnO系薄膜のX線回折図

Fig. 14. X-ray diffraction patterns of ZnO thin films on sputtered Ti thin film.

3. 音響素子への応用

3.1 実験方法

(1) 素子の作製

図16に示すように、円形基板に下部電極、ZnO膜、上部電極の順に、真空蒸着及びRFマグネトロンスパッタを用いて形成した。これにAgペーストでリード線を取り付け、必要に応じてプラスチックのホルダーに固定した。

(2) 特性の測定

図17は測定系の概要を示す。信号発生器としてファンクションジェネレーター（NF製）を用い、50Hzから20kHzまでの正弦波を掃引させながら音響素子に電圧を印加した。このときの波形と印加電圧をオシロスコープでモニターし、正確な周波数は周波数カウンターで測定した。音響素子から発生した音をマイクロフォンで拾い、音響解析装置（B&K社製）を用いて増幅し音圧レベルを出力させた。ファンクションジェネレーターからの周波数レベルと音響解析装置からの音圧レベルをX-Yレコーダーに記録し、音圧-周波数特性を測定した。

3.2 実験結果及び考察

図18は真ちゅう基板を用いた圧電音響素子の音圧-周波数特性を示す。このときの素子の大きさは、基板の厚みが200μmで径は25mm、ZnOの厚みが20μmで径は15mmである。図19はステンレス基板を用いた圧電音響素子の音圧-周波数特性を示す。このときの素子の大きさは、基板の厚みが200μmで径25mm、ZnOの厚みが20μmで径は15mmである。素子形状は同じであるが、振動板の材質によって、共振周波数は異なっていた。形状が同じ場合は、音速 $v = \sqrt{E/\rho}$ （ここで、Eはヤング率、ρは密度）の小さいもののほうが低い共振周波数をもつことが理論

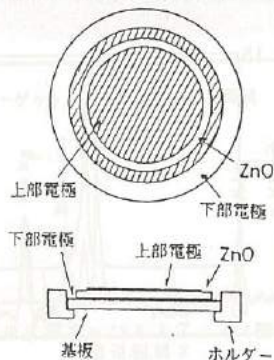


図16 薄膜音響素子の構造
Fig.16. Structure of thin film audio device

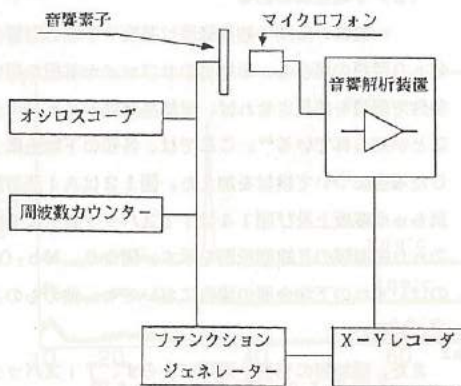


図17 音響特性測定系
Fig.17 Measurement system of acoustic characteristics

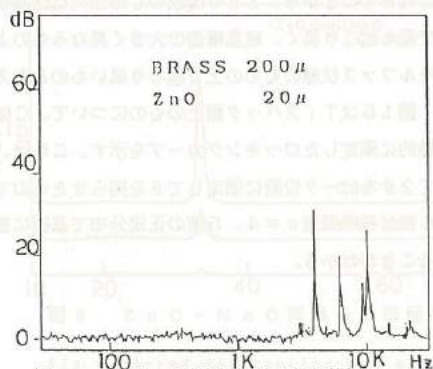


図18 音圧-周波数特性（真鍮基板）
Fig.18. Sound pressure Vs. frequency characteristics (Brass substrate)

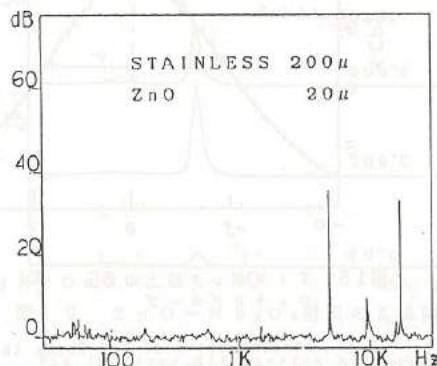


図19 音圧-周波数特性（ステンレス基板）
Fig.19. Sound pressure Vs. frequency characteristics (Stainless substrate)

計算から知られており⁵⁾、この結果と一致する（真ちゅうの音速は $3.5 \times 10^3 \text{ m/sec}$ 、ステンレスの音速は $5.0 \times 10^3 \text{ m/sec}$ である）。図20は真ちゅう基板を用いた圧電音響素子の音圧-周波数特性を示す。このときの素子の大きさは、基板厚みが $200 \mu\text{m}$ で径は 25 mm 、ZnOの厚みは $3 \mu\text{m}$ で径は 15 mm である。図より、ZnO膜厚以外は図18と同じであるが、図18に比較すると共振周波数が高周波数側に移行し、音圧レベルが低下していた。音圧レベルは圧電体厚みと基板厚みの比率により極大値をもつことが理論計算から知られており、セラミックス圧電体と金属振動板の場合はこの比率が $0.1 \sim 0.3$ である。図20の場合はこの値からかなりはずれているため、音圧レベルが小さくなったものと考えられる。

図21は銅箔基板を用いた圧電音響素子の音圧-周波数特性を示す。このときの素子の大きさは、基板の厚みが $50 \mu\text{m}$ で径は 25 mm 、ZnOの厚みが $5 \mu\text{m}$ で径は 15 mm である。図より、 15 kHz というかなり高い共振周波数を示し、しかも音圧レベルも 55 dB とかなり大きかった。図22はポリイミドを用いた圧電音響素子の音圧-周波数特性を示す。このときの素子の大きさは、基板の厚みが $25 \mu\text{m}$ で径は 25 mm 、ZnOの厚みは $5 \mu\text{m}$ で径は 15 mm である。図より、音圧レベルは小さいものの、樹脂基板を用いたものはこれまで報告されておらず、本研究における低温での高配向な膜の作製技術の成果である。このことより、フレキシブルなものや透明なものなど特徴ある音響素子の開発が期待される。

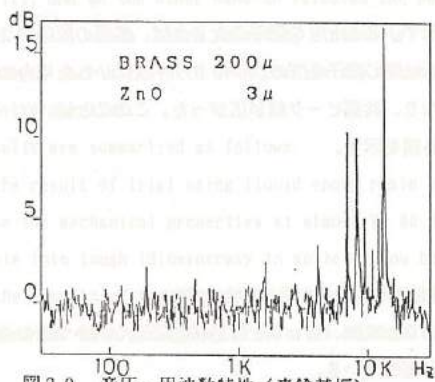


図20 音圧-周波数特性(真鍮基板)
Fig. 20. Sound pressure Vs. frequency characteristics (Brass substrate)

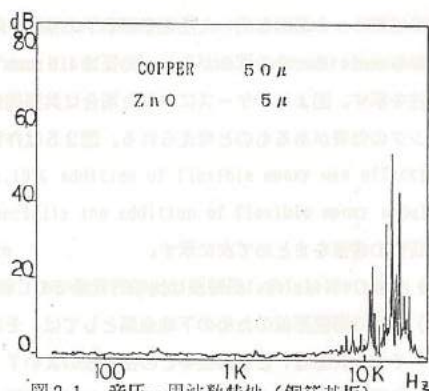


図21 音圧-周波数特性(銅箔基板)
Fig. 21. Sound pressure Vs. frequency characteristics (Copper substrate)

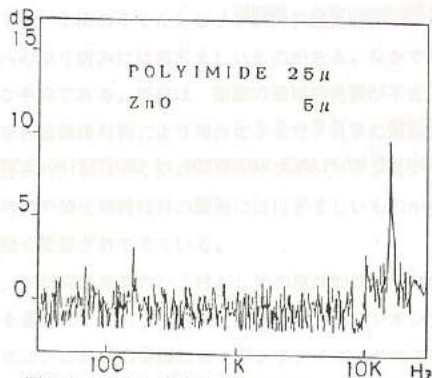


図22 音圧-周波数特性(ポリイミド基板)
Fig. 22. Sound pressure Vs. frequency characteristics (Polyimide substrate)

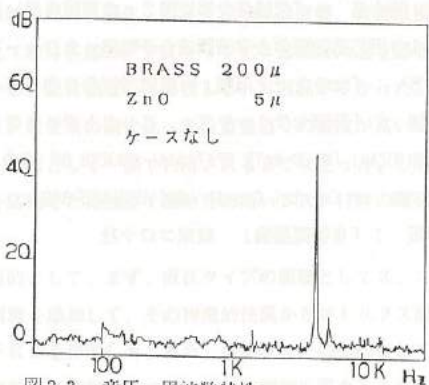


図23 音圧-周波数特性(真鍮基板 径 2.0 mm)
Fig. 23. Sound pressure Vs. frequency characteristics (Brass substrate)

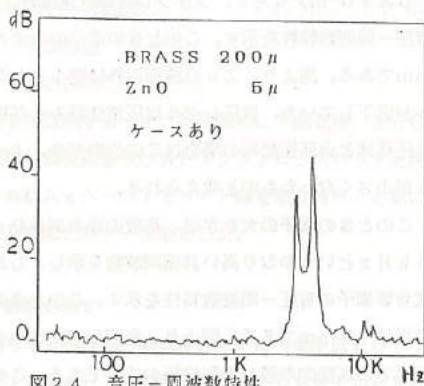


図24 音圧-周波数特性
(真鍮基板 径20mm)
Fig. 24. Sound pressure Vs. frequency
characteristics (Brass substrate)

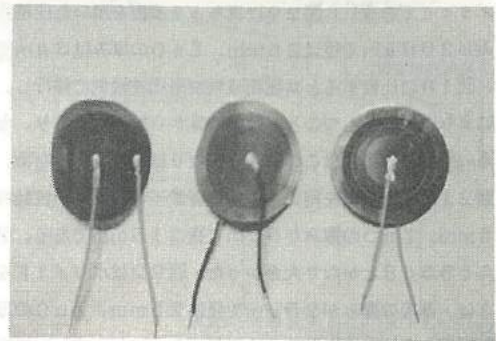


図25 試作音響素子の外観
Fig. 25. Appearance of audio device

図23は真ちゅう基板を用いた圧電音響素子の音圧-周波数特性を示す。このときの素子の大きさは、基板の厚みが $200\mu\text{m}$ で径は 20mm 、 ZnO の厚みが $5\mu\text{m}$ で径は 15mm である。図24は同じ素子をプラスチックケースにいれた場合の音圧-周波数特性を示す。図より、ケースにいれた場合は共振周波数が少し異なり、共振ピーク幅が広がった。このことは、ケースによるダンピングの効果があるものと考えられる。図25は作製した素子の外観を示す。

4. 結 言

本研究の成果をまとめて次に示す。

- (1) $\text{ZnO-Nb}_2\text{O}_5$ 系薄膜は比較的低温でのC軸結晶成長が可能であり、その抵抗率も大きい。
- (2) ZnO 薄膜形成のための下地金属としては、その配向性を高めるために、 ZnO と結晶構造が近く、かつ他の金属基板やガラス基板、樹脂基板等との密着性のよいTiスパッタ膜が優れている。
- (3) 各種基板に ZnO 薄膜を形成し、それぞれ特徴のある音圧-周波数特性を示す薄膜音響素子が得られた。

参考文献

- 1) 東 他4名 ; 「低損失光導波路 ZnO 薄膜を用いた表面波による導波光のブラッグ回折」
第48回応用物理学会学術講演会予稿集 20a-ZG-1
- 2) 宗方 ; 「セラミック薄膜」 工業材料28巻5号 p32~36
- 3) 塩崎 ; 「薄膜セラミックス」 エレクトロニクス 昭和60年2月号 p56~61
- 4) T. SHIOZAKI 「HIGH RATE EPITAXIAL GROWTH OF ZnO FILMS ON SAPPHIRE BY PLANAR MAGNETRON rf SPUTTERING SYSTEM」
Journal of Crystal Growth 43(1978)346-349
- 5) 早坂 ; 「音響振動論」 東京コロナ社

III. 樹脂・ファイバー複合材バネに関する研究

Study of Carbon Fiber Reinforced Prastics for Spring Materials

Abstract

An investigation was carried out to develop the carbon fiber reinforced prastics which has prominent mechanical properties and excellent stabilities against high temperature for spring materials.

Recently, composed parts used for automobile are influenced by social necessity and user's requirement. So lightweight materials, for instance, either engineering prastics or FRP are tried to be adopted for the parts because of their high specific strength. Moreover, they are required strength and stability heat resistance more than everything else. For the purpose of this, two types of CFRP were prepared. Having a try to alter properties of matrix resin, on the one hand to chosen the liquid epoxy resin as base matrix, besides added the flexible epoxy resin in its, and on the other hand to selected the powder epoxy resin for base matrix in addition to appended the polyimide resin which have exceeding intensity and excellent heat resistance. An inquiry as a variety of characteristic matrix resin to been complex any amount of carbon fiber cloth evaluated their mechanical properties and thermal properties.

The results are summarized as follows:

- (1) From the result of trial using liquid epoxy resin as the matrix, 10% addition of flexible epoxy was effective to improve the mechanical properties at almost Vf 60%. Especially the addition of flexible epoxy should be indicate into tough idiosyncrasy in spite of low heat resistance.
- (2) From the results of trial using powder epoxy resin as the matrix, about 50% addition of polyimide resin was efficient for both mechanical properties and heat resistance.

1. 緒言

最近の自動車の構成材料の変化は、社会的ニーズ（安全性の向上、排気ガスの浄化、騒音防止、省エネルギーを背景にした燃料消費効率の向上、耐久性の向上）やユーザーニーズ（外観、乗り心地、高性能・高機能化）に負うところが多い。各自動車メーカーでは、1次、2次のオイルショック以降、燃料消費効率を良くするための車両の小型化、エンジン効率の改善、材料転換による軽量化等への取り組みには目ざましいものがある。なかでも車体の軽量化（車体各部のプラスチック化）は燃費向上を図るための最も有効な手段である。従来は、樹脂の機械的性質が不安定であることから、主に強度を重要視しない外装品が多かった。ところが、樹脂を各種繊維材料により複合化させたFRPの出現によって、FRPは従来の鋼に比べ単位重量当りの強度が高い車体材料として注目され、ようやくプロペラシャフト、リーフスプリング、ホイール用として一部で利用されるまでに至った。しかし、最近の樹脂材料や強化繊維材料の開発には目ざましいものがあり、これらを応用した高強度で耐熱性の高いFRP材料の開発が関係方面では強く要望されて来ている。

そこで、本研究は従来のバネ材としての機械的性質や耐熱性の向上を目的として、まず、液状タイプの樹脂として2、3のエポキシ樹脂を選定し、これに韌性向上を目的としたフレキシブルエポキシ樹脂を添加して、その物理的性質からマトリクス樹脂を決定した。次に、これらの樹脂にカーボンファイバークロスを複合化したFRPを作製した。また、粉末タイプの樹脂として、2、3のビスフェノールA型エポキシ樹脂を選定し、これらに、高強度、高耐熱性を特徴とするポリイミド樹脂を混合したものをマトリクス樹脂として、カーボンファイバークロスを複合化したFRPを作製した。このようにして得られたFRP材について機械的性質及び熱的性質を求め、バネ材としての適用について検討を加えたので、得られた成果の概要について報告する。

2. 液状タイプ樹脂によるCFRPの概要

2.1 マトリクス樹脂

(1) マトリクス樹脂の選定

複合材料中でのマトリクス樹脂は、強化繊維を一体化することにより、樹脂が持つ物性上の欠点を補いながら、その特性を複合材料全体のものとして成形品の中に保つという重要な役割を果たすものである。

また、マトリクス樹脂に要求される物理的諸性質としては、高い靱性や強度のほか成形作業性の高いこと、強化繊維との親和性が良好なことなどがあげられる。このような観点から、代表的なエポキシ樹脂であるエピビス型エポキシ樹脂（シェル社、#807；F型、#815；A型）及び脂環式エポキシ樹脂（アサヒ化研、EX-19）の3種類を選定し、靱性を向上させる目的としてフレキシブルエポキシ樹脂（ビスフェノールF型エポキシ樹脂、硬化剤；ポリテトラメチレンオキシド-ジ-*p*-アミノベンゾエート、硬化促進剤；イミダゾール系化合物、混合比；10：8.5：1.85）を重量比0.5、1.0、及び15%の割合で添加して、引張り強度、曲げ強度、曲げ弾性率、衝撃強度などについて検討を行った。

その結果、引張り強度、曲げ弾性率、衝撃強度については顕著な差は認められなかったが、曲げ強度においては図1に示すように明確な違いが認められた。

板バネ材において最も要求される機械的特性値の一つとして、曲げ強度は大きなウェイトを占めていると考えられる。このため、本研究では脂環式エポキシ樹脂をマトリクス樹脂とすることに決定した。

(2) マトリクス樹脂の硬化反応

エポキシ樹脂は、常温または高温加熱による硬化反応によって3次元網状化し、エポキシ樹脂独特のすぐれた接着性、防

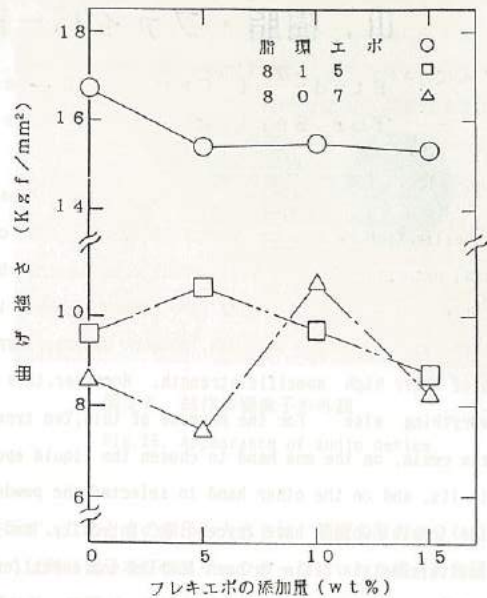


図1 フレキシブルエポキシ樹脂の添加量と曲げ強さの関係
Fig.1. Content of flexible epoxy resin and bending strength.

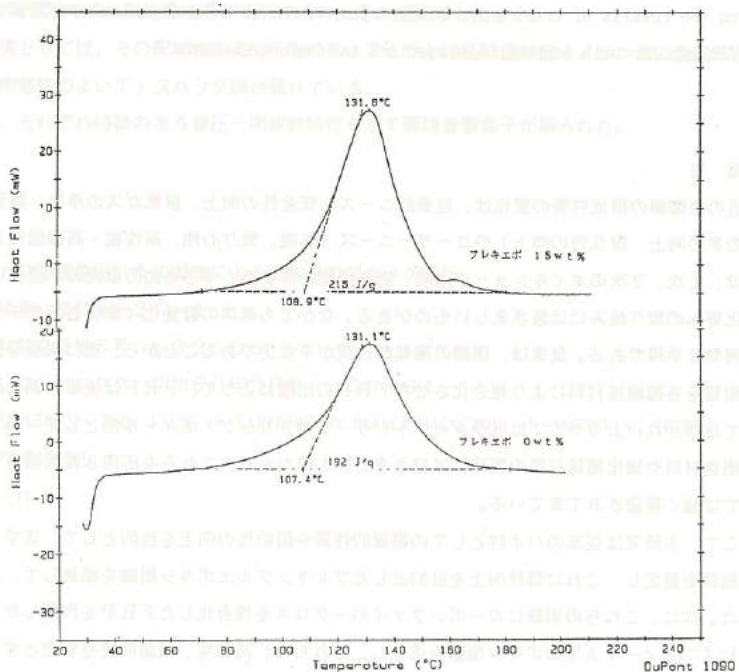


図2 DSC (示差走査熱量測定)

Fig.2. DSC of matrix resins.

蝕性、機械的性質および電気的性質を発現する。これらの性質は、主として硬化剤による架橋密度と連鎖の化学構造に依存している。図2は、マトリクス樹脂のDSC(示差走査熱量測定装置)試験結果を示す。図より、フレキシブルエポキシ樹脂を添加しない系では、131.1°Cに硬化反応のピークがあり、160°Cにおいて硬化反応は完了していると考えられる。一方、フレキシブルエポキシ樹脂を添加した場

合では、150~165°Cの間に別の小さなピークが認められる。この現象は、フレキシブルエポキシ樹脂15wt%添加した場合より現れはじめ、添加量が増すことによつてピークのヒートフロー値(mW)が大きく伸びてくる。このことより、フレキシブルエポキシ樹脂を過剰に添加することによつて、マトリクス中に脂環式エポキシ樹脂と未架橋のフレキシブルエポキシ樹脂が存在していることが推測できる。

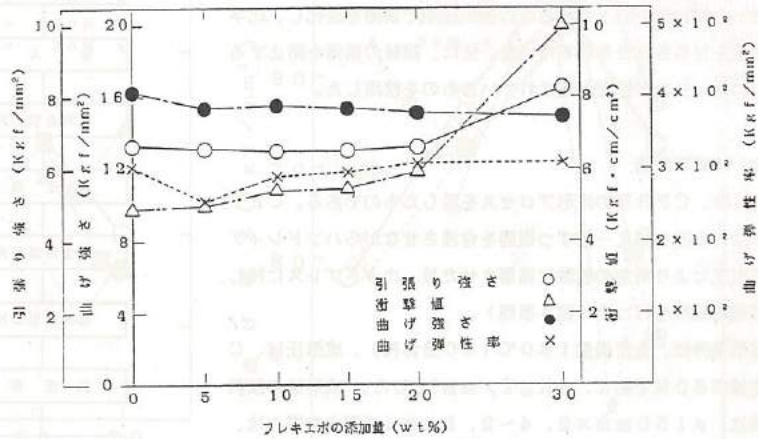


図3 マトリクス樹脂単体の機械的強度

Fig.3. Mechanical properties of matrix resins.

(3) 既存する板バネのマトリクス樹脂

自動車メーカーT社の特許に示されている数値の平均値は次のようであった。

曲げ強度	13.5 (Kg f/mm ²)
曲げ弾性率	344.3 (Kg f/mm ²)
引張り強度	4.9 (Kg f/mm ²)
シャルピー衝撃値	4.1 (Kg f·cm/cm ²) 【参考値】

図3は、脂環式エポキシ樹脂にフレキシブルエポキシ樹脂を重量比で0、5、10、15、20及び30%添加した場合の機械的強度の一例を示す。図より、既存する板バネのマトリクス樹脂と比較してみると、曲げ強度、引張り強度については明らかに上記の数値を上まわっている。また、曲げ弾性率においても近い値を示している。なお、衝撃値については、アイゾット衝撃試験によつて測定したため、既存する板バネのシャルピー衝撃値は参考値として提示した。

フレキシブルエポキシ樹脂の添加量と各強度の関係については、添加量の増加に伴つて曲げ強度は暫減傾向を示す。しかし、引張り強度は逆に微増傾向にある。曲げ弾性率では、5%において一時低下をしたのち微増傾向を示している。衝撃値は予想どおり上昇していることが認められる。

2.2 実験方法

(1) 供試材料

ベースマトリクス樹脂は、脂環式エポキシ樹脂に酸無水物系硬化剤を重量比10:9の割合で添加し、混合脱泡作業を行ったものを用いた。これに、フレキシブルエポキシ樹脂を0、10、20、及び30wt%の割合で添加しマトリクス樹脂とした。

強化繊維材としては、東レ製の炭素繊維（以下CF；ポリアクリロニトリル系、フィラメント数1000）を平織りにしたトレカ#6142を使用した。また、CFには、あらかじめマトリクス樹脂との親和性を向上させるために気相中で表面を酸化し、化学活性基を付与されたものを用いた。更に、繊維の損傷を防止するためにサイジング処理が施されているものを使用した。

(2) 成形方法

図4は、CFRPの成形プロセスを示したものである。CFクロスは、方向を揃え一枚ずつ樹脂を含浸させながらハンドレイアップ方式により所定の枚数に積層させた後、ホットプレスに移し、熱間圧縮成形を行った（図5参照）。

成形条件は、金型温度160℃（40分保持）、成形圧は、CF充填率60%で約1.5Kg_f/mm²とした。成形後の試料寸法は、φ150mm×2.4~2.8mm（成形中の厚みは、スペーサーによりキャビティ内の体積を一定とした）である。また、試料は離型後、160℃中で3時間ポストキュアし、繊維方向と平行になるように切り出し、研削加工を加え各種試験評価用試料とした。

2.3 実験結果及び考察

(1) 引張り試験

図6は、フレキシブルエポキシ樹脂の添加量を変化させたときの、CFの充填率と引張り強さの関係の一例である。

フレキシブルエポキシ樹脂を添加しない系では、CFの充填率60%弱で最大値を示す。しかし、フレキシブルエポキシ樹脂の添加量が増すに従って（粘性の増加）、ピークはCF充填率の低い方向に移動している。これはフレキシブルエポキシ樹脂を添加することによってCFクロスへの含浸性が悪くなり、気泡などの欠陥を生成しやすくなるためと考えられ、成形上の要因が大きく作用するものと思われる。また、引張り試験の性格上、マトリクス樹脂中のミクロな欠陥は、マトリクスの割れを引き出し、次いで、繊維とマトリクスの界面の剥離へと進む。更に、最終的には亀裂の進展に伴って繊維破断へと進むため、引張り試験結果がばらつくものと推察する。

(2) 曲げ試験

図7は、曲げ強さの結果の一例を示す。図より、フレキシブルエポキシ樹脂の添加量の如何にかかわらず、曲げ強さは、CFの充填率55~65%の範囲で最大値を示している。このことは、マトリクス樹脂量がCFの強度を引き出すための最適値があることを示している。更に、充填率を増加させた場合、逆に、強度が低下するのは、繊維層と繊維層の中間体となるマトリクス樹脂層がはじき出され、界面において接着するための充分な樹脂層が存在しなくなるためと考えられる（この場合の引張り及び曲げの破

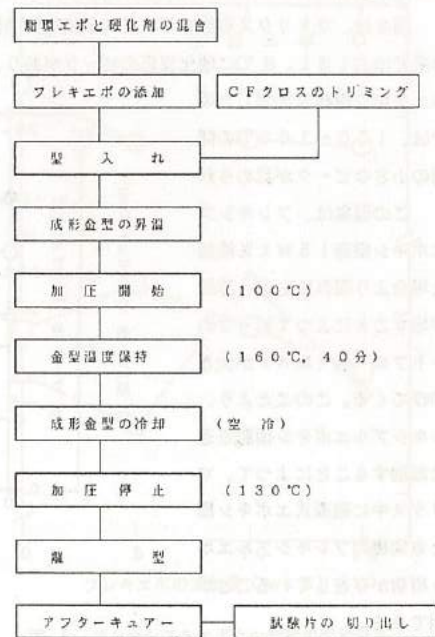


図4 CFRPの成形プロセス
Fig.4 Molding process of CFRP.

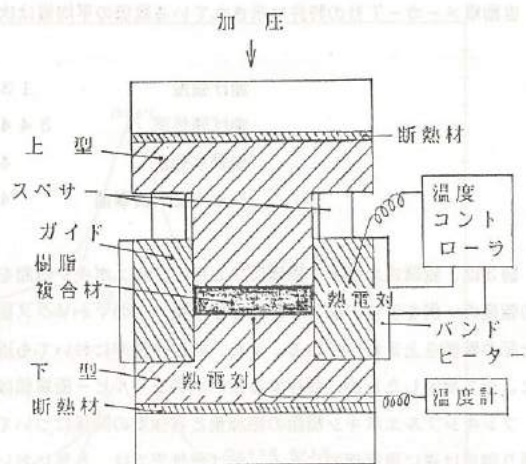


図5 ホットプレスによる成形方法
Fig.5. Molding method by hot press.

断状況は、繊維クロス層がそれぞれに剥離する状態を呈する)。

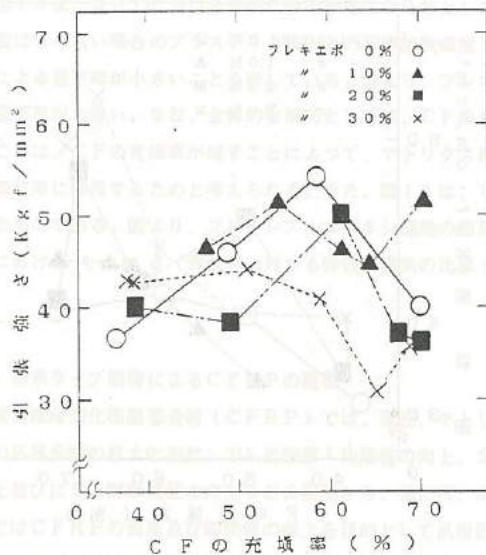


図6 CFの充填率と引張り強さの関係

Fig.6. Volume fraction of CF and tensile strength.

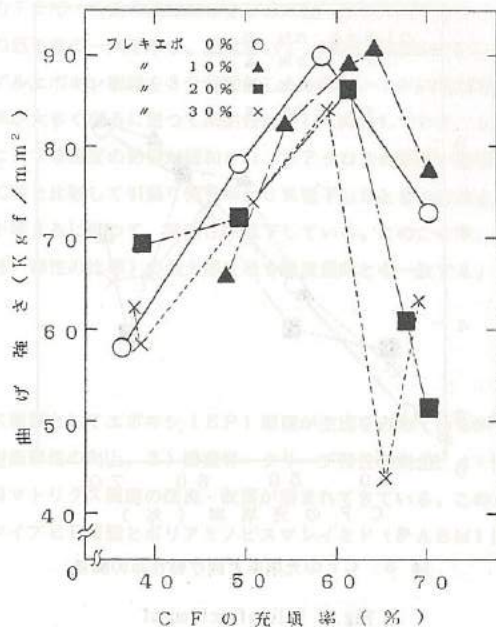


図7 CFの充填率と曲げ強さの関係

Fig.7. Volume fraction of CF and bending strength.

(3) 曲げ弾性率

図8は、フレキシブルエポキシ樹脂の添加量を変化させたときのCFの充填率と曲げ弾性率の関係の一例を示す。図より、曲げ弾性率は全体的にCFの充填率に比例していることから、CFの特性がそのまま複合材の特性に表れていると思われる。しかし、フレキシブルエポキシ樹脂の添加量が20%と30%では、CFの充填率が60%以上において曲げ弾性率は低下している。

これは、先に述べた成形上の要因によるものと思われる。なお、DMA(ダイナミック熱機械分析装置)による引張り弾性率(30°C時)の測定においても、ほぼ同様の結果が得られている。また、引張り弾性率は曲げ弾性率に比べ約20~25%小さくなっている。次に、鋼板バネと比較しての軽量化率について述べる。バネ定数 $k = 4EBh^3/L^3$ (長さL、板幅B、板厚hとしたときの3点曲げ)であるから、鋼の弾性率 E_s ; $21 \times 10^3 \text{Kgf/mm}^2$ 、板厚を h_s 、CFRPの弾性率 E_c ; $5.7 \times 10^3 \text{Kgf/mm}^2$ (CFの充填率60%、フレキシブルエポキシ樹脂の添加量10%のとき)、板厚を h_c とすると、 $E_s \cdot h_s^3 = E_c \cdot h_c^3$ 、 $h_s/h_c = (E_s/E_c)^{1/3} = 1.54$ となり、CFRPの板厚は鋼の約1.5倍となる。このときの重量を体積と比重(CF:約 1.8g/mm^3 、マトリクス樹脂:約 1.2g/mm^3 として)より求めると、CFRPの軽量化率は69.2%となった。

(4) 衝撃試験

図9は、CFの充填率と衝撃値の関係の一例を示す。図より、CFの充填率が60~70%の範囲において最大値を示し、引張り試験、曲げ試験の結果とは逆にフレキシブルエポキシ樹脂の量が増えるに従って衝撃値が大きくなる。これは、マトリクス樹脂中のフレキシブルエポキシ樹脂が可塑剤の役割を果たし、樹脂の可とう性及びクロスとの接着力が衝撃強さの向上に大きく寄与しているためと考えられる。すなわち、マトリクス樹脂が脆性破壊をしない方向で降伏し、衝撃エネルギーの一部を吸収することによって、クラックの進行を押さえるためであると推察する。

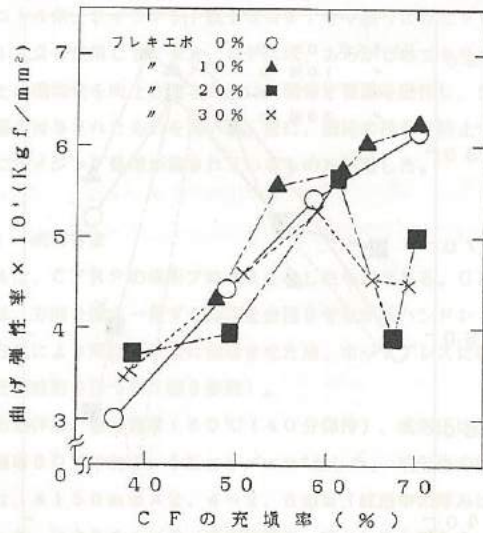


図 8 CFの充填率と曲げ弾性率の関係

Fig.8. Volumefraction of CF and bending modulus.

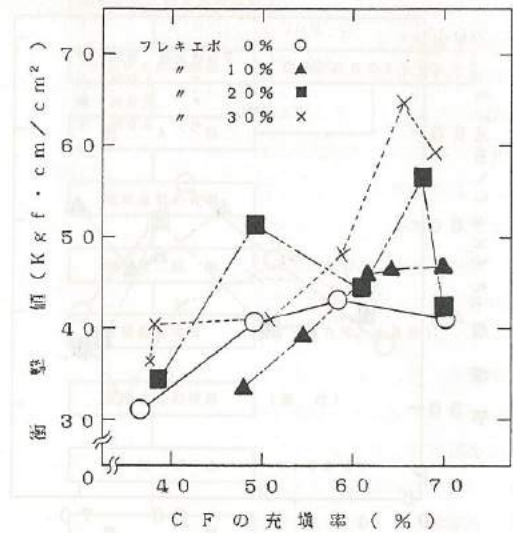


図 9 CFの充填率と衝撃値の関係

Fig.9. Volumefraction of CF and impact value.

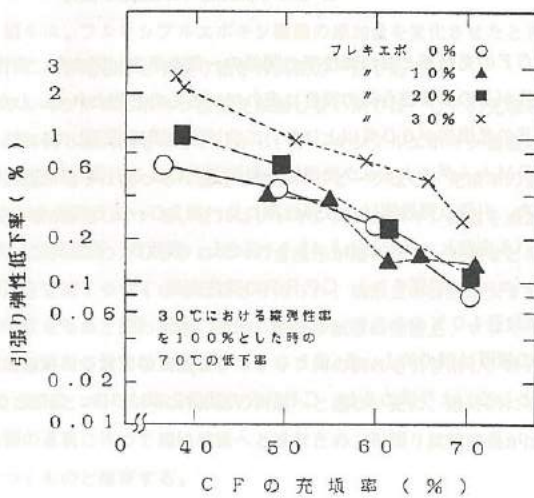


図 10 CFの充填率と引張り弾性低下率の関係

Fig.10. Volumefraction of CF and deterioration of tensile strage modulus.

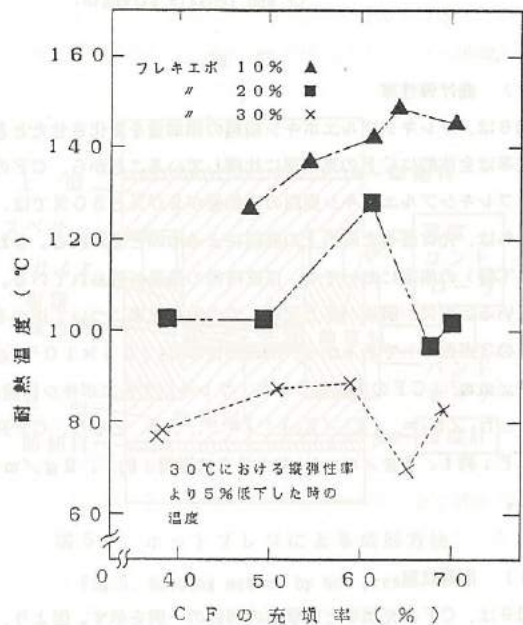


図 11 CFの充填率と耐熱温度の関係

Fig.11. Volumefraction of CF and thermal-proof temperature.

(5) 温度特性

図10は、30℃における引張り弾性率を100%とした時の70℃(自動車規格M312の9種;車外に取り付けられ高い温度にならない場合のプラスチック成形品の標準試験温度)での低下率の一例を示す。図において、縦軸の値が小さいほど温度変化による低下率が小さいことを示している。図より、フレキシブルエポキシ樹脂を30%添加したものが、CFの充填率に関係なく低下率が大きい。なお、全体的な傾向としては、CFの充填率が大きくなるに従って耐熱性が著しく向上していることが判る。

これは、CFの充填率が増すことによつて、マトリクス樹脂に対する温度の影響が緩和され、CFクロス強度が直接的に引張り弾性率に作用するためと考えられる。また、図11は、30℃時と比較して引張り弾性率が5%低下したときの温度をプロットしたものである。図より、フレキシブルエポキシ樹脂の添加量が増えるに従って、耐熱性は低下している。このことは、DMA試験における $\tan \delta$ (弾性率に対する弾性率損失の比率:粘性/弾性の比率)の最大値を示す温度傾向とも一致する。

3. 粉末タイプ樹脂によるCFRPの概要

炭素繊維強化樹脂複合材(CFRP)では、現在、マトリクス樹脂としてエポキシ(EP)樹脂が主流を占めているが、CFRPの応用分野の拡大と共に、1)比強度・比剛性の向上、2)耐衝撃性の向上、3)耐疲労・クリープ特性の向上、4)耐熱性の向上並びに5)耐摩耗性の向上などの要請から、強化材、成形用マトリクス樹脂の改良・改質が望まれてきている。このため、ここではCFRPの強度及び耐熱性の向上を目的として汎用固形タイプEP樹脂とポリアミノビスマレイミド(PABM)樹脂を用いたCF/EP/PABM複合材の開発研究を実施した。

3.1 実験方法

(1) 供試材料

本研究に用いたCFRP構成素材であるマトリクス樹脂は、3種類の汎用固形タイプEP樹脂(#1055, #1004, #1007、油化シェルエポキシ(株))とPABM樹脂(ケルイミド601、日本ポリイミド(株))である。EP樹脂硬化剤には機械的、電気的特性が良好かつ可使用時間が長いジ

シアンジアミド(DICY)を用い、添加量はEP樹脂に対し3~6wt%とした。表1はEP樹脂の各特性値を示す。また、PABM樹脂(n=2~3のプレポリマー)は付加重合型熱硬化性樹脂であり、EP樹脂の耐熱性向上剤として用いた。強化繊維は前項のポリアクリロニトル(PAN)系炭素繊維クロス(#6142、東レ(株))を用いた。

表1 EP樹脂の特性値

Table 1 Characteristic values of epoxy resins.

樹脂名	融点(℃)	比重	分子量	エポキシ当量
EP(#1055)	95	1.19	1350	800~900
EP(#1004)	98	1.19	1600	875~975
EP(#1007)	128	1.19	2900	1750~2200

(2) 成形方法

CFRPの成形方法は、前述と同様とし、成形型の中にトリミングしたCFクロスと樹脂・硬化剤の混合粉末を交互に積層した後、ホットプレスを用いて加熱・加圧して樹脂を硬化させ、CFRPの特性値評価用試料とした。特性値評価は、曲げ強さ、曲げ弾性率、衝撃値などから行うこととし、1個の成形品(φ70×2mm)からそれぞれの評価に応じて所定の寸法に機械加工した。

ホットプレス法によるCFRP成形条件は、EP樹脂の種類、PABM樹脂の混合比に応じ、熱分析装置(1090B Thermal Analyzer デュボン社)を用いて各樹脂のDSCを測定し、成形温度、保持時間を決定した。

3.2 実験結果及び考察

(1) EP/PABM樹脂のDSC及び成形条件

表2はEP/PABM樹脂のDSC測定結果及びCFRP成形条件を示す。硬化発熱最高温度(T_{max})、重合発熱量(ΔT)は、PABM樹脂の混合量の増加につれて上昇傾向を示し、EP樹脂のピーク値からPABM樹脂側のピーク値にシフトが認めら

れる。成形条件は各樹脂の T_{max} 、 ΔT を基に適切な硬化サイクルを検討し数回の予備実験から成形温度、保持時間を表に示すように決定した。

(2) CF/EP/PABM複合材の物性値

図12はEP(#1007)/PABM樹脂においてPABM樹脂混合比率を、0、25、40、50、60、75、100wt%とした時のCF/EP/PABM複合材の曲げ強さ及び曲げ弾性率の一例を示す。このCFRPは、CF体積充填率50%の積層板であり、クロス16枚の繊維方向をそろえた一方強化積層板($[0]_{16}$)と繊維方向を 0° 、 30° 及び 60° に交互に積み重ねた多方向強化積層板($[0/30/60]_{16}$)について、曲げ試験を実施した。

図より、CFRPの曲げ強さは、 $[0]_{16}$ 、 $[0/30/60]_{16}$ いずれもPABM樹脂混合比率50wt%前後で著しい強度の向上が認められる。また、図から $[0/30/60]_{16}$ の曲げ強さは、PABM樹脂混合比率にかかわらず、 $[0]_{16}$ の強さの約20%小さい値を示している。この傾向は、曲げ弾性率においても同様に認められる。これは繊維とマトリクス樹脂との間に大きな剛性の差があるFRPでは、繊維方向と荷重方向との角度(繊維配向角)は、材料強度を評価する上で非常に重要になることを示している。

図13はこのCFRPの衝撃試験結果の一例を示す。図より、衝撃強さは、曲げ強さの結果に反してPABM混合比率50wt%前後で急激に低下し、さらに $[0]_{16}$ の強さも $[0/30/60]_{16}$ より小さい値を示している。また、衝撃値の高い領域では破断面に繊維/マトリクス界面の剥離現象が多く見られた。このことから、この剥離現象は衝撃力による繊維破断の伝播を遅れさせ、CFRP破断の衝撃エネルギーの一部を吸収するものと考えられる。

表2 DSC測定結果及び成形条件

Table 2 DSC data and molding condition.

樹脂配合	示差定差熱量 (dT/dt=5°C)				成形条件	
	T _B (°C)	T _{BEX} (°C)	T _{MAX} (°C)	ΔH (Joule/g)	成形温度 (°C)	保持時間 (min)
PABM (#601)	150	165	200	63	240	25
EP (#1077)/PABM	0	130	135	33	190	15
	25	150	161	38	210	20
	50	140	158	46	210	20
	75	130	144	65	220	20
EP (#1004)/PABM-50	140	161	184	48	210	20
EP (#1055)/PABM-50	160	175	214	36	240	20

T_B : 開始温度
T_{BEX} : 推定開始温度
T_{MAX} : 硬化発熱最高温度
ΔH : 重合の発熱量

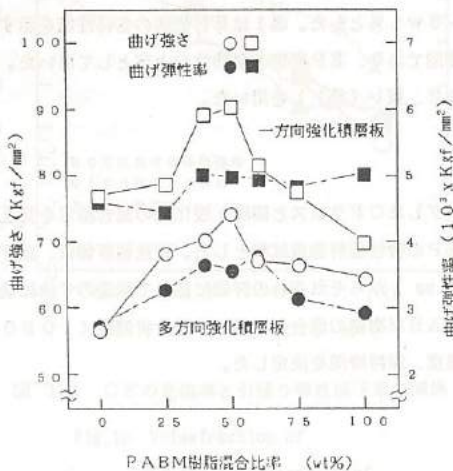


図12 樹脂比率と曲げ強さ及び曲げ弾性率
Fig.12 Resin concentration vs. bending strength and bending modulus.

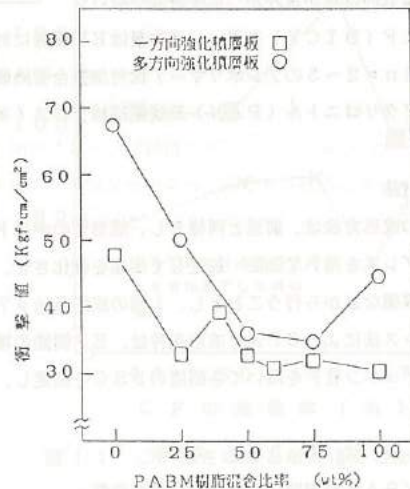


図13 樹脂比率と衝撃値の関係
Fig.13 Resin concentration vs. impact value.

次に、図14はCFRPの熱的機械特性の一例を示す。図において弾性率低下開始温度は、前述と同様にDMAによって検討したもので、30°Cにおける弾性率と比較して5%及び10%に低下した時の温度を示している。図からPABM樹脂混合比率の増加とともに弾性率低下開始温度も急激に上昇している。これはEP樹脂に対するPABM樹脂の耐熱性の付与効果を示すものと考えられ、CFRP材において当初予想された傾向を明瞭に示している。

(3) CF充填率とCFRP材の物性値の関係

図15はCFRP材の曲げ試験結果の一例を示す。マトリクス樹脂は、3種類のEP樹脂粉末(#1055, #1004, #1007)それぞれにPABM樹脂粉末を同量混合したEP/PABM樹脂を用いた。CF体積充填率50%のCFRPの場合は、φ70mmにトリミングしたCFクロス16枚、60%については19枚並びに70%については22枚をそれぞれ繊維方向をそろえて積層し、スーパブロックを用いて約2mm厚に加熱圧縮成形した。

図からCFRPの曲げ強さは、いずれもCF体積充填率60%で最大値を示し、70%で低下する傾向があり、曲げ弾性率はCF体積充填率の増加とともに直線的に上昇し、CFクロスの積層強化効果が顕著に認められる。このことは、前述と同様にCFクロスを用いた積層材において固有の樹脂配合量(もしくはCF体積充填率の上限)の存在を示している。

なお、複合材の曲げ破断としては、1)マトリクス樹脂の割れ、2)樹脂と繊維の剥離・引き抜き、3)繊維積層間の剥離並びに4)繊維の破断が挙げられる中で、充填率70%での曲げ強さの低下は、樹脂量不足から繊維積層間に剥離が生じ、CF充填率50%より低い曲げ応力で破断が進行したことによるものと考えられる。CF積層間に生じた剥離は、板を数枚単に重ね合わせた梁とこれを完全に結合した梁での、同一の曲げモーメントを作用させた時に生じる最大曲げ応力の比較からも明らかであり、CFRP材の曲げ強さを著しく低下させる。

一方、CF/EP材とCF/EP/PABM材の曲げ強さの比較から、PABM樹脂を配合したことによるCFRPの強化が図れたことが認められる。

(4) CFRP材のポストキュア

ポストキュアは、積層材の高温特性を充分発揮させるために有効な手段とされている。図16はCF/EP/PABM



図14 樹脂比率と耐熱温度の関係

Fig.14 Resin concentration vs. thermal-proof temperature.

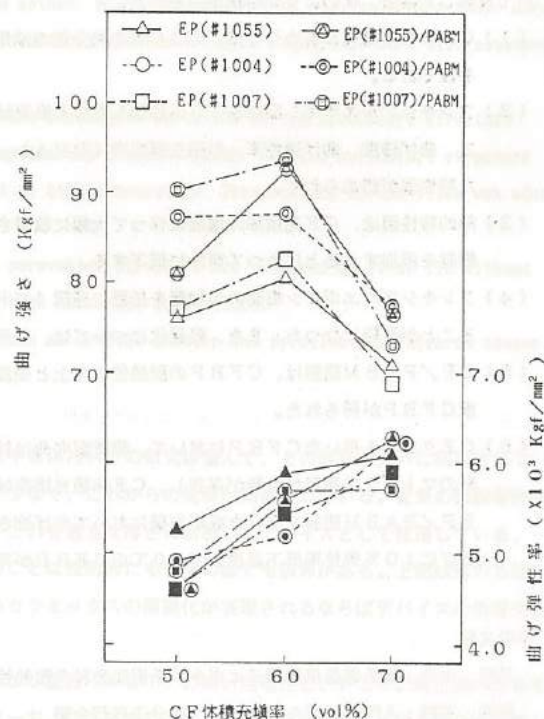


図15 CF充填率と曲げ強さ及び曲げ弾性率

Fig.15 Volume fraction of CF vs. bending strength and bending modulus.

材の熱的特性値に対するポストキュアの影響の一例を示す。ここでの特性値はCF体積充填率が50%の成形品を金型から取り出した後、180~200°Cで1, 2, 4, 8時間ポストキュアしたCFRPについて検討したものである。図より、いずれのCFRPにおいてもキュア時間を長くすることにより熱的特性値の改質が認められ、特にEP(#1055)/PABM材は4時間のキュア時間で10%弾性率低下開始温度が160°Cと高い値を示す。また、3種類のEP/PABM材の比較では、EP(#1007) < EP(#1004) < EP(#1055)の順に高い値を示している。

CFRPのポストキュアについては、経済的に短時間の最適キュアサイクルの選定が不可欠であり、成形時における成形温度、保持時間と併せてトータルな検討が必要と考えられる。

4. 結 言

本研究では、液状タイプの脂環式エポキシ樹脂にフレキシブルエポキシ樹脂を添加したCFRPと粉末タイプのポリイミド樹脂にビスフェノールA型エポキシ樹脂粉末を添加したCFRPを試作し、バネ材料として用いるための機械的特性や熱的特性について検討した結果、次のような結論が得られた。

- (1) CFRPの開発にあたっては、DSC等の熱分析の活用は、成形条件、最適キュアサイクルの決定において非常に有効な手段である。
- (2) フレキシブルエポキシ樹脂を10%添加したCFRPは、添加しなかつたCFRPと比較し、CF充填率60%前後において、曲げ強度、曲げ弾性率、引張り弾性率(DMA)、引張り弾性低下率(70°C)並びに衝撃値のいずれにおいても優れた特性値が認められた。
- (3) 熱的特性値は、CF充填率の増加に伴って大幅に改善されるものの、マトリクス樹脂単体と同様に、フレキシブルエポキシ樹脂を添加することによって明かに低下する。
- (4) フレキシブルエポキシ樹脂の添加量を任意に選択(マトリクス樹脂の改良・改質等)することで、CFRPの靱性を制御することが可能になった。また、軽量化については、CFRPの曲げ弾性率から約70%弱の軽量化率が可能となった。
- (5) EP/PABM樹脂は、CFRPの耐熱性の向上と強度の向上に有効であり、特にPABM樹脂混合比率50%前後で高強度CFRPが得られた。
- (6) CFクロスを用いたCFRPにおいて、繊維配向角は材料強度を評価する上で非常に重要である。また、CFクロスには固有のマトリクス樹脂配合量が存在し、CF体積充填率は60%前後が上限と考えられる。また、汎用固形(粉末)タイプのEP/PABM樹脂を用いた成形実験において曲げ強さが93 Kg f/mm²、曲げ弾性率が5.6 × 10³ Kg f/mm²、並びに10%弾性率低下温度が160°CのCFRPが得られた。

参考文献

- 谷野、水元：電子部品用脂環式エポキシ系樹脂塗料の耐熱性、Plastics Materials 8、1977
 室井、石村：入門 エポキシ樹脂、高分子刊行会編
 宮本：縦置きGFRP板バネについて、新素材の用途拡大とその信頼性、日本機械学会東海支部講習会版 '88-2-9
 野中 他：AE法によるカーボンクロス積層板の破壊機構解析、機械研所報、Vol. 42 July、1988
 前川：先進FRPの強度と疲労、先進材料の強度と疲労設計、日本材料学会北陸支部講習会、63-11-29

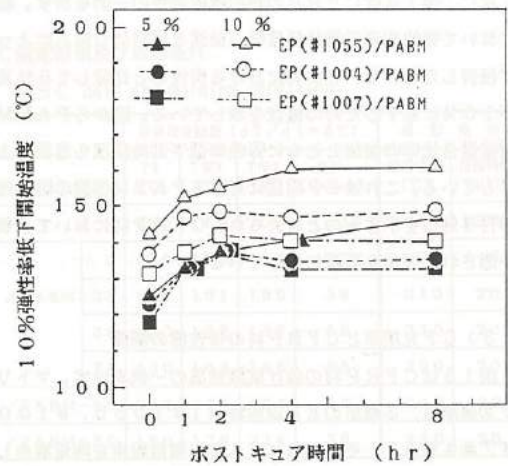


図16 ポストキュア時間の効果

Fig.16 Effect of post cure times.

IV. Pb系セラミックス薄膜に関する研究

- 光シャッター及び赤外線センサーの開発をめざして -

Preparation of PLZT and PZT Thin Films and Their Applications

- For the development of optical shutter and infrared sensor -

Abstract

Thin films of ferroelectric materials are taken an much interest for fabricating functional and new conceptual devices. Many attempts have been practiced by ferroelectric thin films within various devices including infrared sensors, ultra sonic sensors, optical waveguides and optical shutters. In this study, we prepared ferroelectric (Pb-La) $(Zr\cdot Ti)O_3$ (here in after refered to as PLZT) and $Pb(Zr\cdot Ti)O_3$ (here in after refered to as PZT) thin films on fused SiO_2 plates by RF magnetron sputtering. we also prepared $In_2 O_3$ (Sn) (here in after refered to as ITO) thin films in order to use for transparent electrode.

The structures of films were analyzed by X-ray diffraction method. Dielectric properties and hysteresis roops were measured by impedance measuring-set and Sawyer-Tower circuit. Optical and electrooptic properties were also measured by spectrophotometer and ellipsometric-refractometer.

The structures of PLZT and PZT films were classified into the perovskite structure or the pyrochlore structure depending on substrate temperature, Ar/O_2 gas pressure and sputtering incident power. But, the pyrochlore structure changed into the perovskite structure after anneal treatment at high tempareture. Trasnparency of the films was also improved by anneal treatment under adequate conditions.

In brief, it was found that PLZT and PZT thin films of the perovskite structure are obtained on Pt or ITO without anneal treatment under condition of low deposition rate and high substrate temperature.

These noteworthy films shall be suitable for application such as optical shutter and pyroelectric infrared sensor.

1. 緒言

近年、物質の薄膜化技術は進歩し素子の集積化等と相まって特に半導体材料での研究は盛んで、その成果が大いに利用されている。しかし強誘電体材料については薄膜化技術や物性などの研究が少なく、これからの発展が期待されている。従来の強誘電体セラミックスはほとんどホットプレス法、焼成法で作製されており、これを適当な厚さに研磨してデバイスとして使用している。一方、これらの方法で大面積かつ薄い板状のセラミックスを作製することは技術的にも価格の面でも限界がある。上記以外の方法で作製する可能性の一つとして、薄膜気相生成法が考えられ、これらセラミックスの薄膜化が実現されるならばデバイスの低電圧動作と小型化、低コスト化が期待できる。

そこで、我々は優れた強誘電性セラミックスであるチタン酸ジルコン酸鉛 (PZT) の高い焦電性と、PZTに稀土類のLaを加えたPLZTの大きな電気光学的効果に注目し薄膜の光シャッターおよび赤外線センサーの開発をめざして、RFマグネトロンスパッタ法によりそれらの薄膜の作製条件の検討を行なった。また電極用薄膜として酸化インジウム (ITO) を選び、その作製条件も合わせて検討したので、得られた成果の概要を報告する。

2. ITO (透明導電膜) の作製と物性

2.1 目標

透明導電膜の中でも錫をドーブした酸化インジウム膜【 $\text{In}_2\text{O}_3(\text{Sn})$ 】(以下にITOと略す)は、現在最も優れた特性をもつ透明導電膜として知られており、液晶などの各種表示装置や、アモルファスシリコン太陽電池用の透明電極膜などとして広く利用されている。このITO膜は低い比抵抗を持ち、50~600nmの範囲で3~100 Ω/\square の面積比抵抗が得られることから、後述するPLZT及びPZTの電極として用いることとした。透明導電膜に求められる特性は、使用目的によって異なるが、主に①低抵抗であること ②高い可視光透過率 ③平滑性等が重要であると考えられている。本研究では、このうち①及び②に着目し検討を行なった。

2.2 実験方法

スパッタリング装置にはマグネトロン型高周波スパッタリング装置(日電アネルパSPF-332)を用いた。表1は代表的なスパッタリング条件の一例を示す。ターゲットには $\text{In}_2\text{O}_3(\text{Sn})$ を、基板にはガラス基板を用いている。スパッタリングは、スパッタリング電圧、基板温度、Ar/O₂のガス圧比を変えて行い、得られた試料について、結晶学的特性としてX線回折、光学的特性として分光光度計により可視光透過率、電気的特性として抵抗値を測定して物理的性質に評価、検討を加えた。

2.3 実験結果及び考察

(1) 膜厚とスパッタリング条件の関係

図1は、着膜速度の電力依存性を示す。図より、電力が大きくなるに従って着膜速度が早くなっており強い電力依存性を示している。これは、ターゲットに入射されたエネルギーに対応して、ターゲットから分子が放出され基板に堆積することによるものと考えられる。

(2) 電気的特性の評価

表2は諸条件下でのITO膜の抵抗値の変化の一例を示す。表より、ガス分圧比と抵抗値を比較すると、Arガスの比率が高くなるに従って抵抗値が下がる傾向がみられる。これは、Ar分圧が高くなると入射エネルギーが高くなるため、膜が緻密になり抵抗値が低くなるものことによるものと考えられる。また、スパッタリング直後と熱処理後(大気中 500℃2時間加熱)の抵抗値を比較すると、熱処理後は抵抗値が下がる傾向がみられる。一般にSnはInのサイトに置換し、キャリア濃度を増して導電性の増大に寄与する。しかし、過剰のSnは結晶格子に乱れをもたらし、膜抵抗が増大することが知られている。従って、今回の場合はスパッタリング直後には不純物が結晶中に存在するが、熱処理によって膜中から不純物蒸発し、結晶性が良くなると共に緻密になるため抵抗値が下がるものと考えられる。

500℃で基板を加熱しながら着膜した場合も上記と同様の傾向がみられる。

表1 ITOのスパッタリング条件
Table 1. Sputtering condition of ITO.

Input Power	70	W
Plate Voltage	2.0	kV
Plate Current	85	mA
Ar/O ₂ Pressure	1.0/0	Pa
Sub. Temperature	500	°C
Sputtering Rate	0.8	$\mu\text{m}/\text{h}$

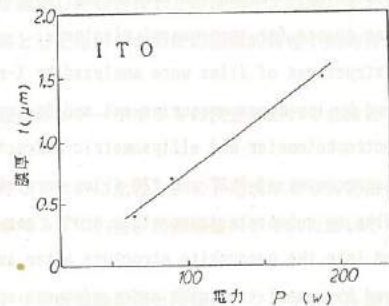


図1 着膜速度の電力依存性
Fig.1. Sputtering power dependence of deposition rate.

ガス分圧	抵抗値 (Ω/\square)		
	熱処理前	熱処理後	基板加熱
Ar : O ₂			
0.5 : 0.5	1.1M	2.8K	-
0.8 : 0.2	1.6M	440	-
0.8 : 0.2	-	-	260
1.0 : 0	28	11	-
1.0 : 0	-	-	4.7

表2 ITO膜の電気的特性
Table 2. Electrical properties of ITO thin film.

(3) 光学的特性の評価

図2は可視光領域における透過率のガス分圧依存性を示す。図よりAr分圧比を高くすると長波長域での透過率は高くなり、また平滑化されている。低波長域では透過率が急激な減少を示しているが、これITO膜の3.7~4.4 eVというバンドギャップに基づく基本的な光の吸収によるものである。

次に、図3はスパッタリング直後と熱処理後の透過率を示す。図から熱処理により短波長域での透過率は向上する傾向にある。この傾向は500℃に基板加熱をしながら着膜した場合も同様である。これは、熱処理前の膜は結晶性が悪く、多孔性の柱状構造を持つため光の分散現象が発生して、透過率が低下しているものと考えられる。図4は、熱処理後のX線回折図を示す。図より、熱処理後は市販品に近い配向性を示しているのがわかる。

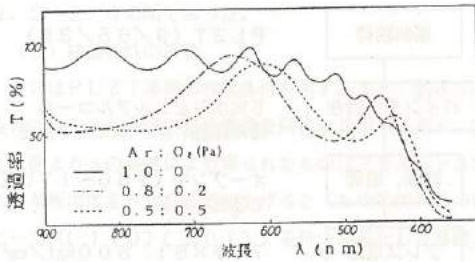


図2 透過率とガス圧比の関係
Fig.2. Relation between transmittance and pressure ratio of gasses.

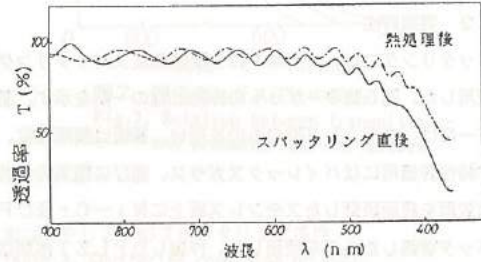


図3 スパッタ直後と熱処理後の透過率
Fig.3. Transmittance of ITO thin films after anneal treatment and untreated.

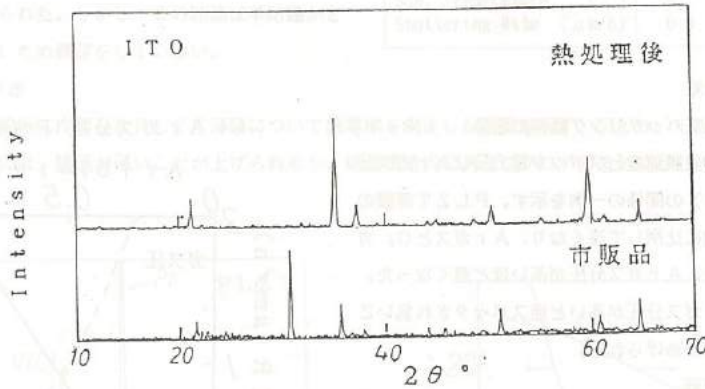


図4 X線回折図
Fig.4 X-ray diffraction patterns

2.4 まとめ

以上の結果から、可視光透過率が高く、抵抗値の低いITO膜を得るには、導入ガスはAr 100%とし、着膜後熱処理を施す方法もしくは基板を加熱しながら着膜する方法が良い。工程の簡略化等を考慮すると、着膜後の熱処理は行わず、基板加熱しながら着膜する方法が有効であろう。製膜時の基板温度は形成される膜の結晶性、金属種(In, Snなど)と酸素の結合性、及び結晶粒界の分散特性に影響を与えることから、基板温度は優れた膜を製膜するための重要な因子である。

なお、このような方法で得られたITO膜をPLZT、及びPZT膜の電極として用いることとした。

3. PLZT薄膜の作製と応用

3.1 目標

PLZTは優れた圧電性セラミックス材料であるチタン酸ジルコン酸鉛【 $Pb(Zr \cdot Ti)O_3$ 】、(以下PLZTと略記)をベースにして稀土類のランタンLaを加えて $(Pb \cdot La)(Zr \cdot Ti)O_3$ と5成分系にしたセラミックスである。PLZTは他のセラミックスとは異なり、近紫外の0.37ミクロンから赤外の6ミクロンの波長まで透明であり、電気光学効果が大きいため光学デバイスへの応用が注目されている。本研究では、スパッタリングで透明なPLZT単結晶薄膜の作製条件を見いだすと共に、作製した薄膜の諸物性を評価し、さらにその特性を活かして光シャッターなどへの応用展開について検討を加えた。

3.2 実験方法

スパッタリングには、マグネロン型高周波スパッタリング装置を使用した。図5はターゲットの作製工程の一例を示す。基板ホルダーには、ステンレス製のものを用い、基板は膜厚測定、及び光学特性評価用にはバイレックスガラス、並びに電気特性評価用には表面を鏡面研磨したステンレス板上にNi-Cr及びPtをスパッタ着膜したものを使用した。作製したPLZT薄膜は、X線回折からは結晶構造、エリブソメーターからは屈折率、分光光度計・FT-IRからは透過率、インピーダンスアナライザからは誘電率、並びにソーヤ・タウワ回路を使用して残留分極を測定評価した。光シャッターとしての性能評価には、 SiO_2 基板上にPLZT薄膜をITO薄膜電極でサンドウィッチ構造としたものを用いた。

3.3 実験結果及び考察

(1) PLZT薄膜とスパッタリング条件の関係

図6はPLZT薄膜の着膜速度とスパッタ電力及びArガス分圧($Ar + O_2 = 1 Pa$)の関係の一例を示す。PLZT薄膜の着膜速度はスパッタ電力に比例して速くなり、Arガスと O_2 ガスの全圧が1 Paの場合、Arガス分圧が高いほど遅くなった。この原因としては、Arガス分圧が高いと逆スパッタされ易いことと、還元され易いことがあげられる。

(2) 光学的特性の評価

PLZT薄膜の赤外($2500 cm^{-1}$)での透過率は、Arガス分圧が高いと透過率は高くなり、 O_2 ガス分圧が高いと透過率は非常に悪くなった。スパッタ時のガス圧をAr 1 Paにした場合、膜色は透明に近いものが得られ、透過率は80%を示した。 O_2 ガスが多い場合着膜したPLZTは褐色となり透過率も低下した。スパッタ時のAr/ O_2 ガス圧比を1 Paの場合と同様にして、ガス圧を2 Paまで上げると、1 Paの場合ほど透過率は良くなかった(最高で50%)。

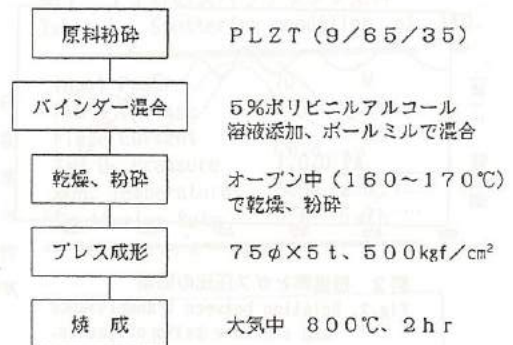


図5 ターゲット作製工程
Fig.5. Flow sheet for preparation of target

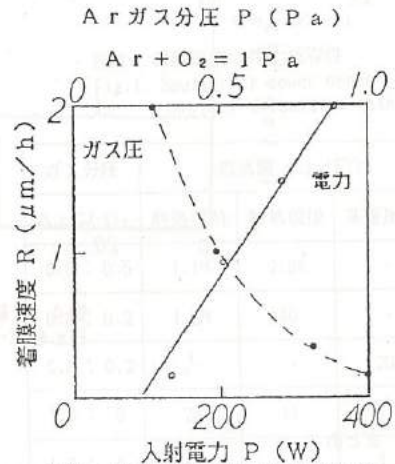


図6 着膜速度の電力、ガス圧依存性
Fig.6. Sputtering power and gas pressure dependence of deposition rate.

図7はPLZT薄膜の光透過率とスパッタ時のガス圧比との関係の一例を示す。図より、可視領域の長波長域での透過率は高く、 O_2 ガスをいれない場合、短波長域にピークが見られた。すなわち、Arガスのみで着膜した場合PLZT膜は酸素不足状態となり薄膜中のPbOの生成は O_2 ガスを入れた場合に比べ少なくなるためと思われる。短波長域での吸収が強くなるのは、酸化鉛の吸収端が440nm付近にあるためと思われる。また、エリブソメーターを用いて屈折率を測定したところ場所によりばらつきが生じたが、その値は2.2~2.4の間であった。

(3) 結晶特性の評価

表3はPLZT薄膜の作製条件を示す。また、図8はこの条件で得られた薄膜の結晶構造を同定した結果を示す。表および図よりaの条件により得られたものはアモルファスであり、基板温度を550℃まで上げると(bの条件)2つのピーク〔(110)〕〔(201)〕を持つ結晶化した薄膜が得られたが、膜は褐色に着色した。また、バイレックスガラスでは高温になると反ってしまうため、基板をステンレスにして密着性を上げるためにNi-CrをスパッタしさらにPtを薄くスパッタした。基板温度を700℃まで上げ(cの条件)PLZTをスパッタしたところほぼ透明な〔(110)〕の配向を持つ薄膜が得られた。しかし、この結晶は単結晶かどうかは解析装置がないため確認をしていない。

(4) 電気特性の評価

図9はステンレス基板に作製したPLZT薄膜について誘電率を測定した結果を示す。図より、市販の焼結体に比較して比誘電率が低いのは、一つには、膜厚が薄いことが上げられるが、結晶構造内にバイロクロア構造が共存していることにもよる。

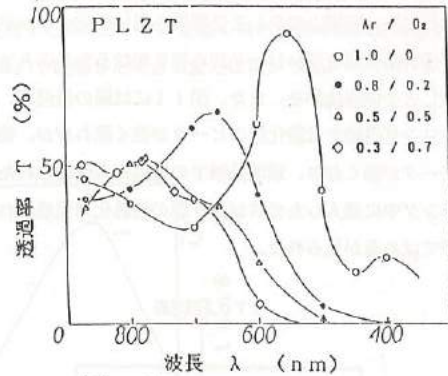


図7 透過率とガス圧比の関係
Fig.7. Relation between transmittance and pressure ratio of gasses.

表3 PLZTのスパッタリング条件
Table 3. Sputtering condition of PLZT.

Condition	a	b	c
Input Power (W)	100	130	70
Plate Voltage (kV)	2.5	2.5	2.0
Plate Current (mA)	110	120	90
Ar/ O_2 Pressure (Pa)	1.5/1.5	2.0/2.0	1.5/1.5
Sub. Temperature (°C)	R.T	550	700
Sputtering Rate ($\mu\text{m}/\text{h}$)	0.4	1.0	0.2

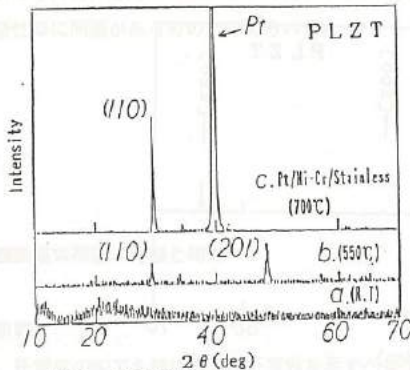


図8 X線回折図
Fig.8. X-ray diffraction patterns.

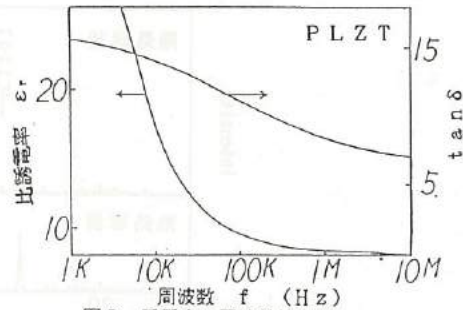


図9 誘電率の周波数依存性
Fig.9. Frequency dependence of specific inductive capacity.

3.4 光シャッターの検討

図10はSiO₂基板上にPLZT薄膜を用いた光シャッターを形成したものの一例を示している。すなわち上部、下部電極としてITO透明電極膜を用いリード線を取り付けるためにAgペースト(700℃焼成)を塗布している。

表4はPLZT作製条件を、また、図11には膜の透過率、並びに図12にはX線回折結果の一例を示す。図11、図12によりスパッタリング直後では酸化鉛のピークが強く現れたが、熱処理(大気中 700℃ 2hr)をすることによりPLZT(220)のピークが強くなり、短波長域での透過率も改善された。この要因としては熱処理により薄膜中の酸化鉛が蒸発したと、スパッタリング中に混入したガスが抜け膜の結晶化が促進されたことが考えられる。また、上下電極に電圧をかけた場合の屈折率変化は若干ではあるが見られた。

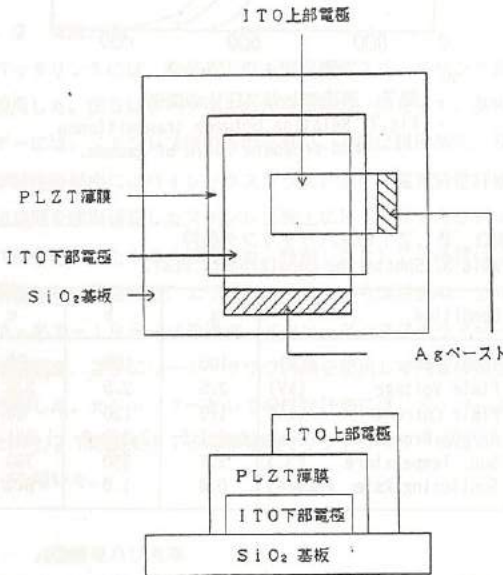


図10 光シャッター構成図
Fig.10 Structure of optical shutter

表4 PLZTのスパッタリング条件
Table 4. Sputtering condition of PLZT.

Input Power	30	W
Plate Voltage	0.9	kV
Plate Current	50	mA
Ar/O ₂ Pressure	0.5/0.5	Pa
Sub. Temperature	720	°C
Sputtering Rate	0.02	μm/h

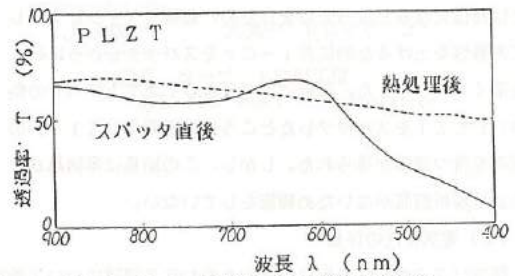


図11 スパッタ直後と熱処理後の透過率
Fig.11. Transmittance of PLZT thin films after anneal treatment and untreated.

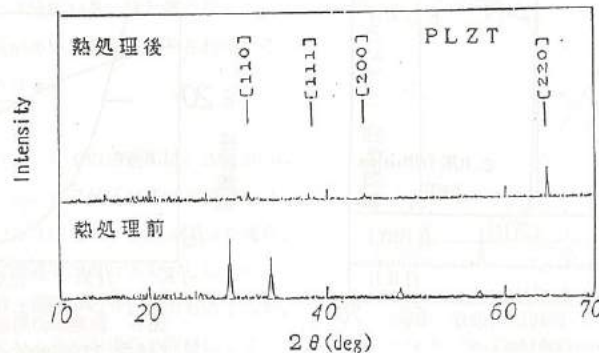


図12 X線回折図
Fig.12. X-ray diffraction patterns.

図13はこの薄膜の誘電率を測定した結果を示す。なお、ソーヤ・タウフ回路を使用して残留分極を測定したところ $5.0 \mu\text{c}/\text{cm}^2$ であった。更に、ITO電極とPLZT薄膜の間の絶縁性を増すために SiO_2 を薄くスパッタリングで着膜した試料の誘電率、残留分極を測定したがあまり変化は見られなかった。 Al_2O_3 で絶縁した場合も変化はなかった。

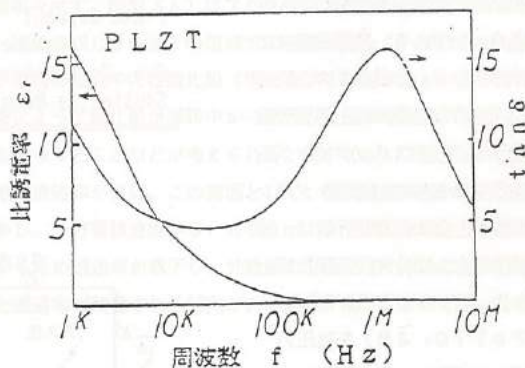


図13 誘電率の周波数依存性
Fig.13. Frequency dependence of specific inductive capacity.

3.5 まとめ

今回、スパッタリングで得られたPLZT薄膜は、ガラス基板、 SiO_2 基板上ではほとんどの場合、スパッタ直後では期待する膜質は得られなかったが、熱処理を施すことにより目的に近いペロブスカイト構造となることが分かった。特にPも基板上では熱処理なしにペロブスカイト構造が成長した。このことは電極用薄膜の選択が重要であることを示している。スパッタリング条件を色々変化させて薄膜を作製した結果、着膜速度を下げ、基板温度を高くすることで透明なPLZT薄膜作製が得られるという一つの手掛かりが得られた。応用面の検討として光シャッターを作製したが、電気光学的効果は小さかった。この原因として、絶縁性、電極との密着性等に問題があるものと考えられる。

4. PZT強誘電体薄膜の作製と物性

4.1 目的

PZTは、圧電体の中でも特に大きな圧電性を示すペロブスカイト型構造を持った強誘電体の一つである。一般的には、チタン酸鉛(PbTiO_3)とジルコン酸鉛(PbZrO_3)を基本組成とするが、この二成分の混合比を変えることによって、圧電・誘電・弾性などの諸特性をコントロールできるため、それぞれの用途に適したセラミックス材料を得ることが出来る。本研究では、PZTの焦電性に注目して赤外線センサーへの応用について検討を加えた。

4.2 実験方法

PZT薄膜作製実験に使用した装置は、ITO・PLZTの場合と同じマグネロン型高周波スパッタリング装置である。基板には光学的特性を評価するためSiO₂基板を使用した。この基板は、十分に洗浄した後にアノードに取り付けた。アノードと基板との熱伝導をよくするために、隙間にはスペーサーを数枚入れた。ターゲットと基板との距離は69mmである。雰囲気ガスには形成される薄膜の還元を防ぐためArとO₂の混合ガスを使用した。予備スパッタの後にPZT薄膜の作製を行った。薄膜形成の反応性と結晶学的、光学的及び電気的特性がスパッタリング条件によってどの様に変化するのかを調べるために、スパッタリング電圧V、ガス圧Pを変えて薄膜を作製した。諸物性評価は、結晶学的特性としてX線回折、光学的特性として分光光度計及びFT-IRで透過率の測定から行った。ターゲットは、市販のPZT粉末(PbZrO₃:58/PbTiO₃:42)を加圧力100kgf/cm²で30秒間プレス成形した物を使用した。表5はスパッタリング条件の一例を示す。

4.3 実験結果と考察

(1) 膜厚とスパッタリング条件の関係

図14は着膜速度の電圧依存性とガス圧依存性の関係の一例を示す。図より着膜速度は電圧依存性が強く電圧の増加と共に速くなる。逆に、ガス圧の増加と共に遅くなる傾向にある。この要因として、ガス圧が増えるとターゲットからたたき出された分子の平均自由行程が短くなり、散乱が増えるため反比例することがあげられる。

(2) 結晶学的特性の評価

図15は作製したPZT薄膜のX線回折図を示す。図中(a)は、スパッタリング直後と熱処理後(大気中700℃2時間加熱)とを比較したものである。図より、スパッタリングのみではパイロクロアと酸化鉛のピークが見られるが、熱処理を施すことによりペロブスカイトの結晶構造となる。この要因として、熱処理によって結晶粒の成長が促進されると同時に過剰分の酸化鉛の蒸発が発生して結晶性が良くなったことがあげられる。図中(b)は結晶構造の配向性と電圧依存性の関係の一例を示す。図より、電圧増加と共に(110)

表5 PZTのスパッタリング条件
Table 5. Sputtering condition of PZT.

Input Power	130	W
Plate Voltage	1.5	kV
Plate Current	130	mA
Ar/O ₂ Pressure	0.5/0.5	Pa
Sub. Temperature	700	°C
Sputtering Rate	0.4~0.9	μm/h

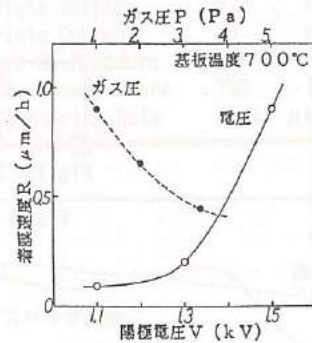
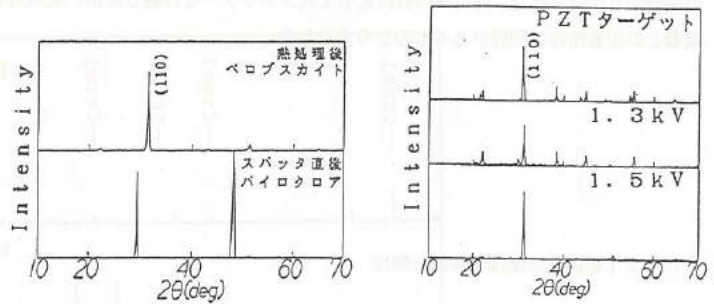


図14 着膜速度の電圧、ガス圧依存性
Fig.14. RF voltage and gas pressure dependence of deposition rate.



(a) スパッタ直後と熱処理後の比較 (b) 電圧による配向性

図15 X線回折図

Fig.15. X-ray diffraction patterns of PZT thin films.

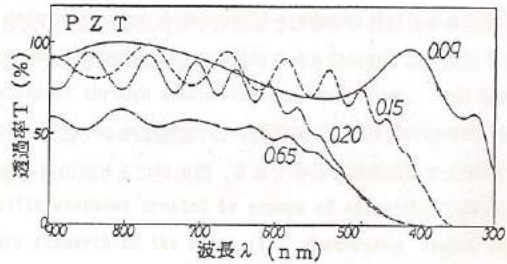
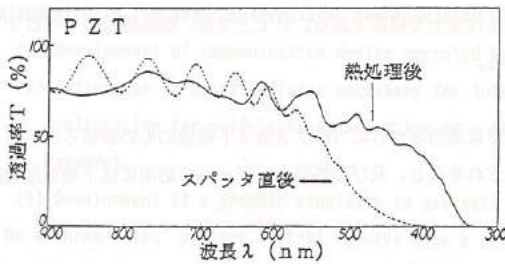
(a) after anneal treatment and untreated.

(b) dependence of RF sputtering voltages.

配向が強くなる傾向がみられることがあげられる。この回折ピークのdから格子定数aを求めると、ターゲットでは4.018、1.3kVでは4.035、1.5kVでは4.027という値が得られた。なお、配向性のガス圧依存性は見られなかったが、(110)配向が見られた。

(3) 光学的特性の評価

図16は可視領域における透過率を示す。図中(a)はスパッタリング直後と熱処理後とを比較したものである。図より、熱処理によって透過率は改善される。特に600nm以下の領域での改善が著しく、600nm以上では平滑化される傾向がみられる。この要因として、スパッタリング直後の薄膜中には酸化鉛(吸収端が440nm)が粒界に存在するため、酸化鉛による短波長領域での吸収が強くなるが、熱処理によって酸化鉛が薄膜中から蒸発し透過率を改善すること及び粒界に存在する気孔等がなくなり高密度となるため光の散乱が小さくなったことなどが考えられる。図中(b)は透過率の着膜速度依存性を示す。図より、着膜速度が遅い方が平滑で短波長領域での透過率が良い。この要因として、着膜速度が遅い場合は酸化鉛の混入が少なく、緻密な膜が作製されることがあげられる。しかし、一方着膜速度が0.65 $\mu\text{m}/\text{h}$ で平滑な理由としては、着膜速度が速い場合は膜への酸化鉛の混入が多く、粒界等が増加するため透過率が低下し、光散乱の影響がなくなることがあげられる。赤外領域における透過率も上記同様に、着膜速度を下げると透過率が改善される傾向がみられる。条件によっては、4000 cm^{-1} で80%以上のものが得られている。



(a) スパッタ直後と熱処理後の比較
図16 可視領域における透過率

(b) 着膜速度依存性

Fig.16. Transmittance of films in visible region.
(a) after anneal treatment and untreated.
(b) dependence of deposition rate.

4.4 まとめ

今回作製したPZT薄膜ではスパッタ直後ではバイロクロア型と酸化鉛の混合物であるが、熱処理することによって不純物である酸化鉛を蒸発させ、結晶性が改善されペロブスカイト型になり、透過率を改善することが判った。しかしSiO₂基板上に結晶性のあるITOを付着させた基板では、スパッタのみでペロブスカイト型を作製することができた(図17参照)。

図17よりまだ若干の酸化鉛は混

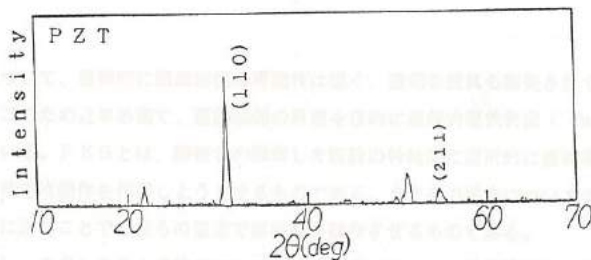


図17 X線回折図
Fig.17. X-ray diffraction patterns of PZT thin film on ITO.

入しているようである。表6はこのときの作製条件を示す。この場合の透過率は、可視領域では64%、赤外領域 (4000 cm^{-1}) では35%であった。

表6 P Z T のスパッタリング条件
Table 6. Sputtering condition of PZT.

Input Power	130	W
Plate Voltage	1.5	kV
Plate Current	130	mA
Ar/ O ₂ Pressure	0.33/0.67	Pa
Sub. Temperature	720	°C
Sputtering Rate	0.3~0.4	$\mu\text{m/h}$

5. 結 言

本研究は光シャッター及び赤外線センサーの開発を目的として、電極用 I T O、P L Z T、及び P Z T 薄膜作製条件等について検討を加えた。その結果をまとめると次の通りである。

- (1) 透明電極用 I T O は基板温度を上げ Ar ガスだけでスパッタすると透過率、抵抗値の良好な膜が得られる。
- (2) 光シャッターへの応用のため、ペロブスカイト構造を持つ P L Z T 薄膜の作製条件を検討した結果、着膜速度を下げ、基板温度を十分に高くすることは透明で電気光学的効果の大きい薄膜を作る上で重要である。P L T 上では、熱処理なしでペロブスカイト構造をもつ膜が得られるが多くの場合熱処理を加える必要がある。
- (3) 赤外線センサー開発用 P Z T 薄膜については、I T O 膜上では熱処理なしにペロブスカイト構造のものが得られるが、他の基板上では熱処理が必要である。熱処理により膜の透過率が改善されること、及び赤外線センサーへの応用には下地電極の選択が重要である。

参考文献

- 1) 「機能性セラミックスの設計」 日本化学会編
学会出版センター 化学総説 No 37、1982
- 2) 「オプトセラミックス」 宮内克己、戸田堯三 共著
技報堂出版 1984

V. 障害者のための学習機能を有する マンマシンシステムの研究

- 機能的電気刺激のための上肢機能シミュレータの研究開発 -

Self-Learning Man-Machine System for The Disabled

- Development of simulation system of the human upper extremities
applying for functional electrical stimulation -

Abstract

Recently, functional electrical stimulation(FES) has been used as an aid to regain a part of upper motor neuron controls which may be lost through cerebral stroke, brain injury, inflammation, tumor or spinal lesion. Here microcomputer- controlled electrical stimulation is applied for the intact peripheral nerve or intramuscular nerve in a disabled person.

The object of this project is to simulate movement of the musculoskeletal system with the muscles which will be stimulated in the upper extremities. The simulator will be made up of such a total FES system as follows.

(1) Development of communication device operated by spoken word and electromyogram.

(2) Estimation of muscular force necessary for intended movement through musculoskeletal modelling, and its application for self-learning selection of a stimulation pattern suitable to produce a specific composite movement.

(3) Development of a graphic simulator to estimate a specific movement created by groups of stimulated muscles.

On a three years' project, first we have done a preliminary research on the above (1). Concerning spoken word recognition, we have tried to construct a single board system, and estimate its pattern recognition rate of pattern-matching on dynamic time wrapping by using dynamic programming.

Next, surface Electromyograms have been on two muscles selected as ones of intact muscles, which are usually possible to contract voluntary even in a disabled person. These signals were processed by autoregressive(AR) time series analysis technique, and preliminarily estimated if possible to discriminate AR parameters for a specific movement used for control signal.

1. 緒言

現在、脊髄損傷、脳卒中などの中枢神経障害者について、医療的に機能回復の可能性は低く、適切な装具も開発されていないため、運動機能を補う装置の開発が期待されている。このため近年各国で、運動機能の再建を目的に機能的電気刺激 (Functional Electrical Stimulation : FES) の研究が行われている。FESとは、障害者の麻痺した四肢の神経筋に選択的に直接電気刺激を与え、その活動を制御し、筋収縮を起こすことで日常生活動作を代償しようとするものである。またその操作については、自らの残存機能を使って各動作の制御信号を電気刺激装置に送ることで、自らの意志で麻痺肢を動作させるものである。

そこで本研究は、上肢麻痺のためのFESを想定し、そのシステム全体のマンマシンインターフェース機能特性向上を図るための上肢機能シミュレータの開発を目的とする。このシミュレータは、上肢の動作を幾つかのコマンドによって指定し、そのときの筋力を数学モデルから推定する。さらに、その結果をコンピュータグラフィックスによって上肢運動を視覚的に表示する。一方、得られた筋力からFESのための筋刺激電圧パターンが生成される。

研究のステップは、以下の4段階に分けて進めた。

- (1) 音声認識を利用した制御システムの開発
- (2) 筋電位計測を利用した制御システムの開発
- (3) 筋骨格数学モデルによる筋力推定及び学習性のある組合せ動作刺激パターンの生成
- (4) 刺激による上肢運動を視覚的に把握できるグラフィックシミュレーションソフト製作

今回は、(1)、(2)について研究を行なった。(1)については音声認識ボードの製作を行ない、認識率の高い制御言語の検討を行なった。一方(2)については上腕2種類の筋電位計測を行ない、結果を自己回帰モデルで解析して、筋電位計測から制御信号を識別できるか検討した。

2. FESシステム

本研究が目標としているFESシステム全体図を図2.1に示す。本システムは、5つのブロックから構成されている。音声モジュールまたは筋電位計測モジュールは、動作コマンドを生成する。また、筋力計算モジュールでは、数学モデルによって、コマンドに応じた動作をシミュレートして、筋力を計算する。一方、グラフィックモジュールでは、数学モデルの計算結果を画面表示して視覚的に上肢の動きを検証する。さらに、筋刺激モジュールは、筋刺激電圧を生成する。

これまでの研究は、音声モジュール及び筋電位計測モジュールに行ったので詳細は、別章で述べる。

ここで、筋力推定モジュールとグラフィックモジュールに関して簡単に説明する。

筋力推定モジュールは、上肢の筋骨格系をモデル化し、解剖学的制約、生理学的知識及び運動学的制約を考慮して力学計算から筋力を推定する。骨格は、肩甲骨、鎖骨、上腕、腕及び手から構成される。ただし今回は手指機能は考慮せず、手指は固定されて動かないものとし、手部の付属物とみなす。筋は34種類から構成され、骨格との接続位置は変化しない。このような筋骨格系の接続関係を基に、力及びモーメントの運動方程式から上肢を動かすための筋力を計算する。

グラフィックモジュールは、筋力推定モジュールで得られた上肢の動きのシミュレーション結果を画面表示する。グラフィックライブラリは、C言語からコールできる3次元グラフィックライブラリを利用する。パソコンにグラフィックボードを接続することで4096色表示及び高速座標変換ができる。

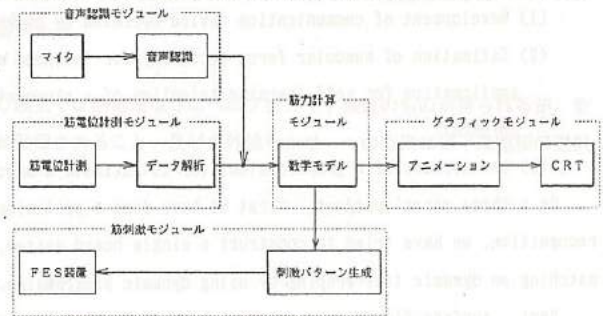


図 2.1 FEMシステム全体図

Fig. 2.1 FEM system

3. 音声認識システム

3.1 音声認識手法

今回は、現在最も多く用いられている動的計画 (Dynamic Programming: DP) パターンマッチング手法を採用し、その評価を試みた。

(1) 認識の課程

音声認識ブロック図を図3.1に示す。音声認識は、特定話者の離散単語認識を行なう。マイクから入力された単語は、バンドパスフィルターによって短時間スペクトル分析処理をして、入力パターンAとなる。次に、Aと予め登録したn種類の単語 (標準パターンB) とDPパターンマッチングをする。この認識手法の評価として、パターンAとパターンB間の距離D (A, B) を調べ、最も似ている標準パターンを認識結果として出力する。



図 3.1 音声認識ブロック図

Fig. 3.1 Functional block diagram of speech recognition

(2) 離散単語認識におけるDPマッチング

"man" という離散単語を例に、DPマッチングを説明する。"man" の音声パターンは、図 3.2に示すように、振幅方向、周波数方向及び時間軸方向にそれぞれ複雑な変動を示す。同一人が"man" を発声する場合でも、発声速度は毎回変化し、音声パターンの時間軸には図 3.3に示すような不整合が存在する。そのため、A、B間の長さを非線形に伸縮させる必要がある。そこで、その変換を最適化するために動的計画法を用いる。

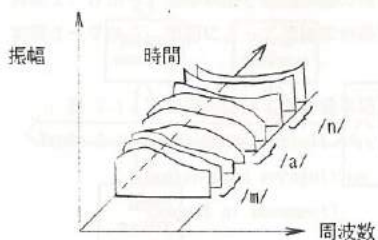


図 3.2 音声分析
Fig. 3.2 Speech analysis

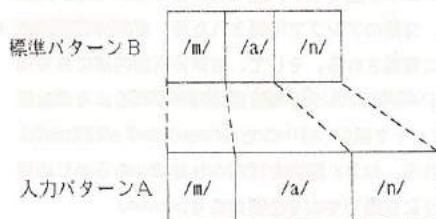


図 3.3 音声パターンの時間軸変動
Fig. 3.3 Pitch fluctuation of spoken recognition

いま、図 3.4のA、B間の距離D (A, B) を定義することを考える。A、B間の対応関係は、Aの時間軸をBの時間軸に変換する時間変換関数で表される。ここでA、Bは、それぞれI、J個の特徴ベクトルの時系列と見ることができ、式(3.1)とおく。

$$A = a_1, a_2, \dots, a_i, \dots, a_I \quad (3.1)$$

$$B = b_1, b_2, \dots, b_j, \dots, b_J$$

a_i と b_j の対応を $c = (i, j)$ で表すと、時間軸の対応は $i-j$ 平面上の格子点 $c = (i, j)$ で表される。また、時間変換関数は、式(3.2)となる。

$$c(k) = (i(k), j(k))$$

$$\text{ただし、} c(1) = (1, 1), c(k) = (1, J)$$

a_i と b_j の距離を式(3.3)で定義する。

$$d(c) = d(i, j) = \|a_i - b_j\|$$

式(3.3) からD (A, B) は、式(3.4)となる。

$$D(A, B) = \min_{c(1) \dots c(k-1)} \sum_{i=1}^I d(i, j) \quad (3.4)$$

これから式(3.4)の最小化のDPアルゴリズムは、式(3.5)の漸化式となる。

$$g(i, j) = d(i, j) + \min \begin{cases} g(i-1, j) \\ g(i-1, j-1) \\ g(i-1, j-2) \end{cases} \quad (3.5)$$

$$g(1, 1) = d(1, 1)$$

$$D(A, B) = g(1, J)$$

よって式(3.5)の計算を図 3.4上で行なうとD (A, B) が求まる。なお、図 3.4の整合窓は、時間軸の極端な対応づけの禁止及び式(3.5)の計算回数数の限定による効率化のため設けた。

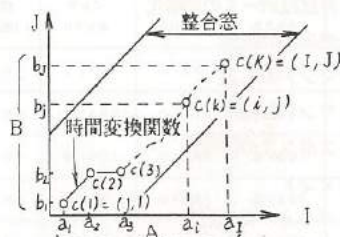


図 3.4 時間変換関数による時間軸の対応づけ
Fig. 3.4 Dynamic time warping
(3.2)

$$(3.3)$$

$$(3.4)$$

$$(3.5)$$

3.2 音声認識システム

(1) ハードウェア

音声認識ボードの特徴は、①認識単語が200語又は有音時間124秒
②最大入力音声長さ 2秒及び③応答時間 0.3秒以内である。また、
図 3.5にシステムブロック図を示す。図 3.5において、マイク入力
された音声信号は、2段のアンプで増幅された後、音声分析器内の
プリアンプでさらに増幅される。そして、音声分析器内部にある16
チャンネルのバンドパスフィルタで周波数分析がされる。その結果
は、音声認識プロセッサで標準パターンとのマッチングが行なわれ、
認識結果が出力される。なお、認識を行なうときは、あらかじめ標
準パターンをメモリに登録しておく必要がある。

(2) ソフトウェア

音声認識ボード制御プログラムの機能は、以下の6項目である。

- 1) 音声認識ボードの初期化
- 2) 伝送手順の制御
- 3) コマンドの入力
- 4) コマンドの発行
- 5) レスポンスの表示
- 6) コマンド
 - (a) パラメータの設定
 - (b) 標準パターンのセーブ及びロード
 - (c) 単語の登録
 - (d) 認識
 - (e) 状態照会
 etc.

図 3.6にプログラムのPADを示す。本プログラムの操作手順を
簡単に説明する。プログラム起動後、ゲイン設定等の初期設定をし、
登録コマンドを入力して、標準パターンを登録する。登録時は、各
単語毎に登録番号が表示される。次に認識コマンドを入力して音声
を認識する。認識結果は、認識距離が短い第二候補までの登録番号
及び認識距離が表示される。

3.3 音声認識実験

音声認識で最も重要なことは、動作の制御信号である各単語の認
識率が高いことである。また各単語は、運動動作を連想させる表現
が望ましい。そこで本研究では、上肢の動作、方向及び移動量を表
すのに最低必要な単語を選定した。表 3.1(実験1)は、移動量を
表わす単語として数字を使用した結果である。また、表 3.2(実
験2~7)は、動作及び方向を表す単語を使用した結果である。
実験1, 2は、生の音声をマイク入力して認識させたのに対して、

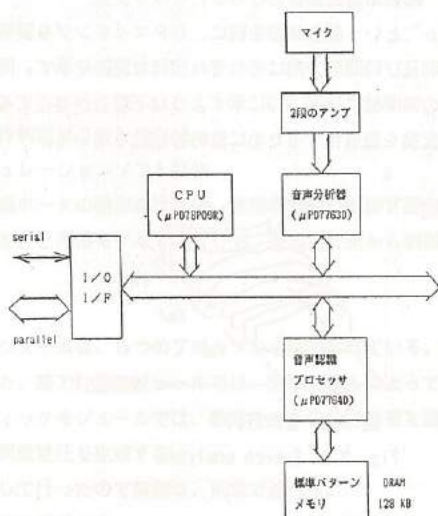


図 3.5 音声認識ボードシステムブロック図

Fig. 3.5 Block diagram of board-based speech recognition system

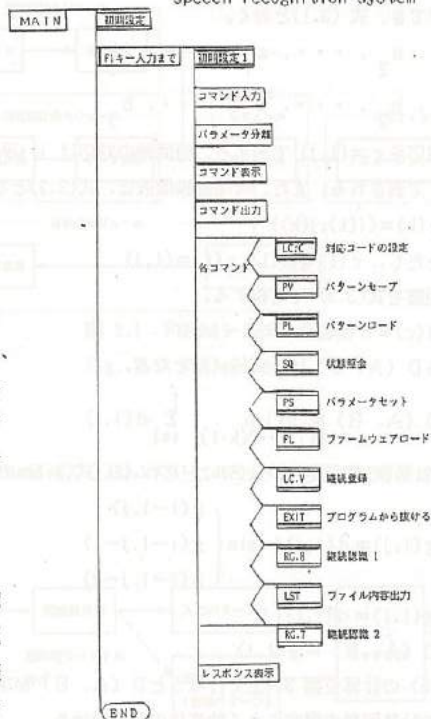


図 3.6 音声認識ボード制御プログラムPAD

Fig. 3.6 PAD programmed for control of speech recognition system

実験3～7は、録音音声を使って登録単語と認識単語の発音速度を一定にして認識させたものである。なお、実験4～7は、ボードのゲインを変化させたときの結果である。

(1) 結果から解ること

- 1) 実験1, 2から、単語によって認識率及び距離に差があり、認識しやすい単語があるといえる。
- 2) 実験2, 3から、登録単語と認識単語の発音速度に近い方が、認識率が高く、距離も小さくなる。
- 3) 実験4～7から、単語によって認識率が最大となるゲインの値がある。

表 3.1 認識実験結果 (移動量単語)

Table 3.1 Experimental result of spoken word recognition (amount of movement)

登録単語	実験1 (注2) 生の音声をマイク端子から入力した場合の正解数 (平均距離)
" 0 "	4 (92)
" 1 "	4 (85)
" 2 "	3 (93)
" 3 "	4 (69)
" 4 "	4 (89)
" 5 "	5 (80)
" 6 "	4 (95)
" 7 "	5 (74)
" 8 "	3 (58)
" 9 "	3 (104)
合計 (注1) 【総数】	39 【78%】

(注1)・認識回数: 5回/登録単語
・総認識回数: 80回/実験
(注2) 正解データの距離の総和
・平均距離 = $\frac{\text{正解データの総和}}{\text{正解データ総数}}$

表 3.2 認識実験結果 (動作及び方向単語)

Table 3.2 Experimental results of spoken word recognition (movement and direction)

登録単語	実験2 (注2) 生の音声をマイク端子から入力した場合の正解数 (平均距離)	実験3 録音音声をマイク端子から入力した場合の正解数 (平均距離)	録音音声をライン端子から入力した場合の正解数 (平均距離)			
			実験4 ゲイン 37dB	実験5 ゲイン 40dB	実験6 ゲイン 43dB	実験7 ゲイン 46dB
" のぼす "	2 (92)	4 (83)	1 (79)	5 (69)	5 (51)	4 (72)
" まげる "	3 (73)	4 (60)	4 (100)	5 (71)	5 (56)	5 (58)
" UP "	5 (69)	5 (62)	5 (67)	5 (54)	5 (42)	5 (44)
" DOWN "	5 (75)	5 (80)	5 (84)	5 (55)	5 (54)	5 (43)
" ひだり "	5 (77)	5 (79)	5 (76)	5 (78)	4 (69)	1 (55)
" RIGHT "	5 (80)	5 (88)	5 (67)	5 (55)	5 (45)	5 (44)
" かいし "	4 (89)	5 (82)	1 (115)	5 (82)	5 (76)	5 (71)
" おわり "	5 (72)	5 (67)	5 (62)	5 (80)	5 (51)	5 (51)
合計 (注1) 【総数】	34 【85%】	38 【95%】	31 【77.5%】	40 【100%】	39 【97.5%】	35 【87.5%】

(注1)・認識回数: 5回/登録単語
・総認識回数: 40回/実験
(注2) 正解データの距離の総和
・平均距離 = $\frac{\text{正解データの総和}}{\text{正解データ総数}}$

(2) 考察

- 1) 一般に、子音で始まる単語は、母音で始まる単語に比べ認識率が低い。この要因は、音素に関係し、摩擦音、鼻音及び破裂音などで、無声音の子音の振幅が小さいために、始めの音の検出ができにくかったためと考えられる。
- 2) 実験1より実験2の方が、認識率が高く、平均距離も短いのは、登録単語の差と考えられる。つまり、登録単語の音素が多いほうが特徴点が多くなり、認識率が高くなったと考えられる。
- 3) 認識率を向上させるには、母音を多く含む単語の使用と最適ゲインの設定が必要である。
- 4) 実験3の認識率が100%にならなかった要因の一つとして、マイク及び周囲の雑音の影響が考えられる。
- 5) 生の音声は同じ単語でも毎回振幅が変化するので、認識率を向上させるためには、オートゲインコントロールをつけるとよいと考えられる。

4. 筋電位計測モジュール

4.1 機能

筋電位計測モジュールは、障害者の残存機能を利用して動作コマンドを生成することを目的とする。障害者が健常部位を動かす時の動かし方と、それに対応する動作コマンドを予め設定しておき、表面電極又はワイヤ電極によって筋電位を計測し、その波形を時系列解析することによってコマンドの種別を識別する。この場合のFESシステムを図4.1に示す。将来的には、高速ワンチップマイコン等を用いて小型化の必要があるが、今回はミニコンを用いて、動作コマンド識別の前段階として動作に関与する筋の識別を行った。

図4.2に筋電位計測モジュールのブロック図を示す。電極は動作に関与する筋に接続される。電極から得られた筋電位は、増幅器を経てA/D変換され、マイコンによって時系列解析される。時系列解析では筋電位波形をARモデルで推定し、そのパラメータ値の違いから動作に関与する筋を識別する。図4.3に時系列解析の流れ図を示す。

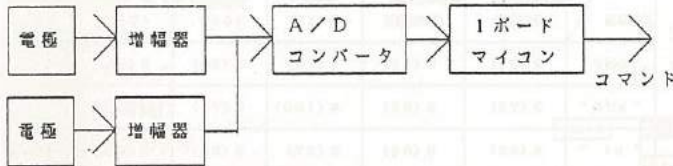


図 4.2 筋電位計測ブロック図
Fig. 4.2 Block diagram of EMG module.

4.2 筋電位

筋電位 (Electromyogram : EMG) は、筋繊維が収縮する時の活動電位であり、筋の緊張度に比例して大きくなる。通常、神経筋接合部 (モーターポイント) が最も検出しやすい。筋電位は通常 $100 \mu\text{V} \sim 2\text{mV}$ 程度であり、周波数は MUAP (Motor Unit Action Potential) では約 3KHz のパルス状に現れ、表面筋電位の場合には各モーターユニットの筋電位が重畳され、約 1KHz 程度までの情報が含まれているといわれる。

積分EMG (IEMG) は、EMGを積分したもので、EMGの振幅を利用する場合に用いられる。ただし、通常の積分操作ではなく、 $50\text{ms} \sim 100\text{ms}$ 程度の区分時間内で積分される。

筋電位を表面電極で検出する場合、電極が動作によってズレたり、動作のたびに表皮と電極間のインピーダンスが変化する。さらにワイヤが動くためにノイズが混入する可能性があるなどの問題がある。最終的には、経皮性ワイヤ電極等を用いる予定である。

4.3 時系列解析

時系列解析は、時間領域での解析から系の特性を同定する方法である。系の特性は、現在の値がいくつかの過去の値の線形結合となる数学モデルで表現される。

一般に、出力信号系列 y_p は入力信号系列 x_p と系のインパルスレスポンス h_p の畳み込みに雑音 n_p が加わったものとして表される。

$$y_p = x_p * h_p + n_p \quad (4.1)$$

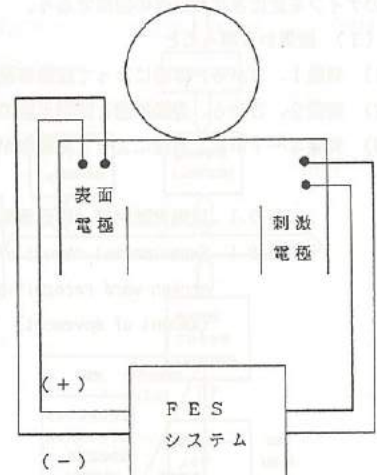


図 4.1 FESシステム
Fig. 4.1 FES system.

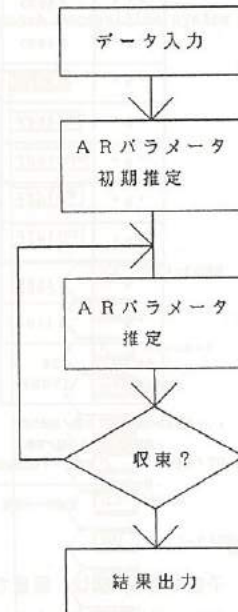


図 4.3 EMG波形解析フロー
Fig. 4.3 Flow chart of EMG analysis.

このZ変換は次式となる。

$$Y(z) = X(z)H(z) + N(z) \quad (4.2)$$

伝達関数H(z)は、一般に次のようなzの有理関数で表される。

$$H(z) = \frac{\sum_{n=0}^N b_n z^{-n}}{\sum_{n=0}^N a_n z^{-n}} \quad (4.3)$$

ここで、 $a_0 = 1$ となるように係数が正規化されているとすると、式(4.2)は、

$$Y(z) = -Y(z)\sum_{n=1}^N a_n z^{-n} + X(z)\sum_{n=0}^N b_n z^{-n} + N(z) \quad (4.4)$$

と表される。これを時間領域で表すと、逆Z変換によって

$$y_p = -\sum_{n=1}^N a_n y_{p-n} + \sum_{n=0}^N b_n x_{p-n} + n_p \quad (4.5)$$

となる。すなわち、ある時点pでの出力信号はそれまでのN個の出力信号とM+1個の入力信号の線形結合に雑音加わったものである。

(1) MAモデル

特別な場合として、 $a_0 = 1$ 、 $a_n = 0$ ($n \geq 1$)のときは、入出力の関係は

$$y_p = \sum_{n=0}^N b_n x_{p-n} + n_p \quad (4.6)$$

となる。この場合には、伝達関数に極はなく、零点のみが存在する。このモデルを移動平均モデル (moving average model : MAモデル) という。

(2) ARモデル

どれか1個の b_m を除いて他の b_m が0であり、 x_p が定常ランダム過程の場合には、 x_p は n_p と同様正規分布に従い、 n_p とは区別できない。この場合の入出力の関係は

$$y_p = -\sum_{n=1}^N a_n y_{p-n} + n_p \quad (4.7)$$

と表せる。この場合には伝達関数に零点はなく、極のみが存在する。このモデルを自己回帰モデル (autoregressive model : ARモデル) という。

一般には、伝達関数は極も零点もあるため、入出力の関係は式(4.5)で表される。この場合には両者を合わせて自己回帰移動平均モデル (ARMAモデル) といわれる。

ARモデルの推定は、出力信号の予測値 y_p' と測定値 y_p との誤差が最小となる a_n を最小二乗法によって決定される。筋電位は、本来非定常であるため、ARモデルでは扱えずMA成分を考慮したARMAモデルで扱うべきであるが、実験的に定常とみなしてARモデルで推定する。ARパラメータの次数は4次で十分モデルを表現できるといわれ、それ以上の次数では計算量が多くなるわりにはモデルの特性に変化はみられない。

4.4 装置構成

今回の実験は、ARモデルによって筋電位から動作コマンドを識別する前段階として動作に関与する筋を識別することを目的とし、専用装置を製作せず既存の計測器を利用した。装置構成を図4.4と図4.5に示す。

表面電極は、僧帽筋と三角筋に付ける。僧帽筋は首筋から肩の筋で、三角筋は肩の付け根から上腕の筋である。電極は、差動入力用の正極と負極を各筋に付ける。また、2つの筋にまたがって差動電極を

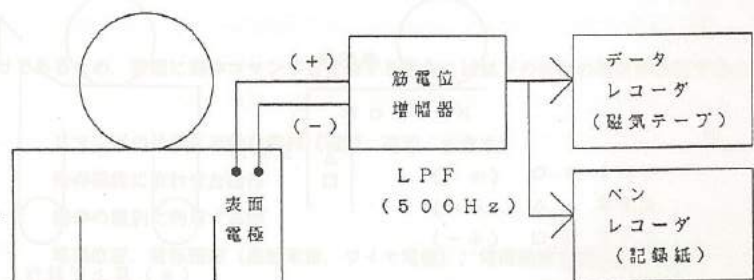


図 4.4 計測装置構成

Fig. 4.4 Experimental setup

付けた場合についても試みる。電極からえられる筋電位を増幅した後、データレコーダに記録する。このとき、同時にペンレコーダに筋電位波形を表示させて筋電位の状態を確認しながら実験を行う。データレコーダに記録された筋電位は、生のアナログデータであるため、A/Dコンバータによってデジタルデータに変換されなければならない。このとき、A/D変換のトリガとして積分EMG (IEMD) を利用する。トリガは、データレコーダからの筋電位を積分器におし、10HzのLPFをかけて生成する。FFTアナライザによってA/D変換された筋電位波形は、GP-IBによってミニコンPDP11に転送され、解析される。

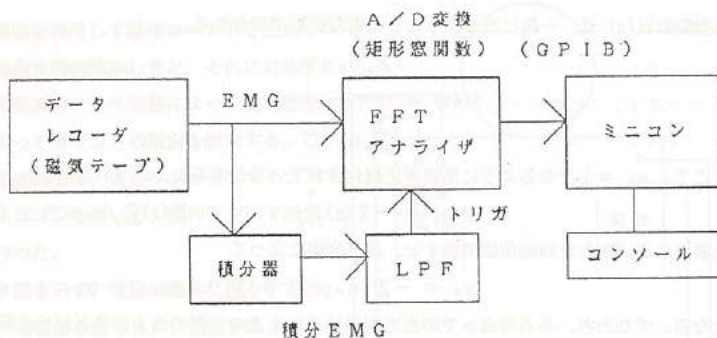


図 4.5 データ解析装置構成
Fig. 4.5 Analysis system.

4.5 測定条件

測定条件として、電極位置と動作を図 4.6と図 4.7に示す。電極位置は肩と上腕にそれぞれ差動電極を付ける。動作は図に示すように肩上げ動作と腕振り動作である。肩上げ動作は肩だけを少し上げ、腕振り動作は、腕を横方向に約10度動かす。サンプリング条件を表 4.1に示す。

4.6 実験結果

肩上げ動作と腕振り動作を行ったときの筋電波形を図 4.8にしめす。筋電位波形からARパラメータの推定を行った結果を表 4.2に示す。また、AR1次とAR2次パラメータをプロットしたものを図 4.9に示す。

実験結果から、腕振り動作の筋電から動作に関与する筋の分離が可能である。この場合の動作は、大きな動きを伴う動作ではなく、僅かな動きの筋電位から活動する筋を識別した。

5. 今後の課題

5.1 音声認識モジュール

現在の音声認識モジュールでは、認識率の向上を図るために以下の検討を行う必要がある。例えば頸髄損傷患者など肺活量が小さく、周囲の影響を受けやすい障害者においても有用なものに改良を加えていく必要がある。

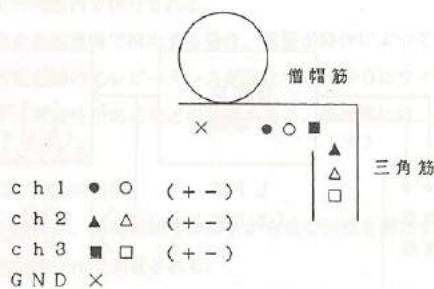


図 4.6 電極位置

Fig. 4.6 Electrode position.

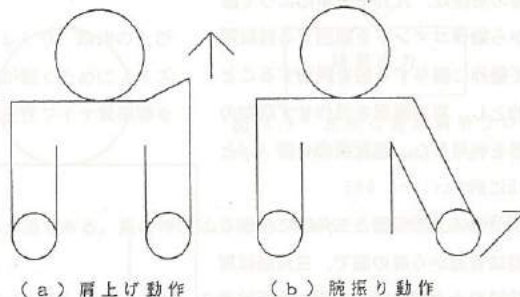


図 4.7 動作

Fig. 4.7 Selected Motion.

表 4.1 サンプリング条件

Table 4.1 Sampling condition

サンプリング周波数	2 KHz
サンプリング開始タイミング	-20ms
サンプリング時間	500ms
ウィンドウ関数	矩形関数
分解能	12bit

表 4.2 腕振り動作のARパラメータ

Table 4.2 AR parameters of swing motion

	AR1次	AR2次	AR3次	AR4次
僧帽筋	1.2853	-0.0585	-0.1684	-0.1177
三角筋	1.8269	-0.7840	-0.0666	-0.0417
僧帽筋	1.4038	-0.2499	-0.1286	-0.0442
三角筋	1.7495	-0.6880	-0.0756	-0.0563

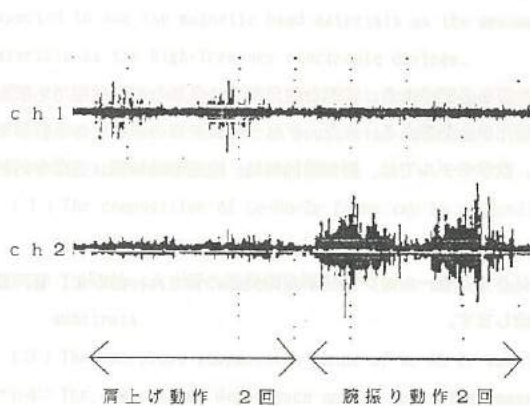


図 4.8 筋電位波形

Fig. 4.8 EMG wave form.

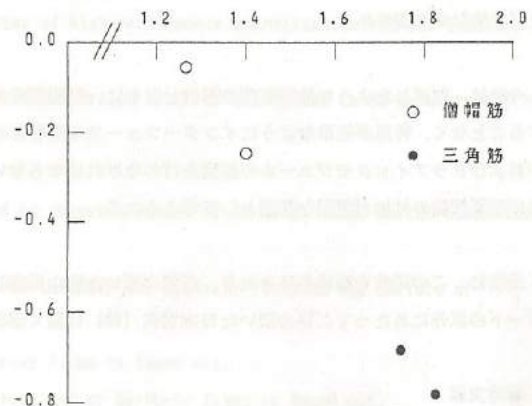


図 4.9 腕振り動作のARパラメータ

Fig. 4.9 AR parameter-plots of swing motion.

1) 認識率の向上

- a) ゲイン動特性の改善 短時間スペクトラムによる適正認識域のフィードバック
AGCの検討
- b) 統計的認識手法の検討 線形予測手法 等
- c) 訓練効果の検討
- d) 登録操作の簡素化 その日の体調に合わせて毎日登録
- e) ノイズ対策

5. 2 筋電位計測モジュール

今回の実験では、筋電を単に解析しただけであるため、実際に動作コマンドを生成する場合には以下の項目の検討が必要である。

1) 測定条件

- a) 動作の選定 コマンドの分離に有効な動作 (種類、速度、大きさ)
残存機能に合わせた動作
- b) 筋の選定 動作の識別に利用する筋
- c) 電極条件 電極位置、電極種類 (表面電極、ワイヤ電極)、電極固定方法
- d) 動作過程とサンプリング開始点の関係 動作の過程のどの部分の筋電を利用すべきか
- e) サンプリング条件 サンプリング周波数、サンプリング時間、ウィンドウ関数

f) トリガの生成 サンプリング開始トリガの生成方法

2) 解析条件

g) ARパラメータの次数

h) ARパラメータの推定誤差の許容値の検証

これらによって筋電位解析のノウハウの確立が必要である。また、FESシステムに組み込む場合には小型化と利用の簡素化が必要であるため、

3) FESシステム化

i) 小型化

マイコンの利用

j) 処理プログラムの規模

ミニコンからマイコンレベルにおとす

k) アルゴリズムの検討

計算速度、収束性

l) モデルの検討

他のモデルとの比較

などの検討が必要である。

今後は、前述したような検討事項の解決とともに、実用面での改善も必要である。劣悪な使用環境や乱暴な使用状態でも誤動作することなく、利用が簡単なようにインターフェースの改善と小型化が必要である。また、FESシステムの中核となる数学モデルおよびグラフィックモジュールの開発を行わなければならない。数学モデルでは、解剖学的制約、生理学的知識、運動学的制約及び学習機能の付加が困難な課題として考えられる。

最後に、この研究を進めるにあたり、ご協力頂いた富山県高志リハビリテーション病院研究開発部の皆さん、並びに、音声認識ボードの試作にあたってご協力頂いた日本電気(株)に深く感謝致します。

参考文献

- 1) 星宮、半田：「機能的電気刺激の現状と将来」、システムと制御、vol.31、no.6、pp.406-414、1987
- 2) 星宮 他：「麻痺上肢制御のための高機能多チャンネル機能的電気刺激システム」、電学論C、vol.108、no.7、pp.447-452、1988
- 3) R.Arsvikar, A.Seireg: "EVALUATION OF UPPER EXTREMITY JOINT FORCES DURING EXERCISE", ASME annual meeting, 1980
- 4) A.Seireg and R.J.Arsvikar: "A MATHEMATICAL MODEL FOR EVALUATION OF FORCES IN LOWER EXTREMITIES OF THE MUSCULO-SKELETAL SYSTEM", J.Biomechanics, vol.6, pp.313-326, 1973
- 5) 田中、追江：「音声認識におけるパターンマッチング手法」、計測と制御、vol.22、no.1、pp.99-105、昭 58
- 6) 白井：「パターン認識」、オーム社、1987
- 7) 三浦：「聴覚と音声」、電子通信学会編、コロナ社、昭 57
- 8) G.Heftner, W.Zucchini and G.G.Jaros: "The Electromyogram(EMG) as a Control Signal for Functional Neuromuscular Stimulation-Part1: Autoregressive Modeling as a Means of EMG Signature Discrimination", IEEE Trans.Biomed.Eng., vol.35, no.4, pp.230-237, April, 1988
- 9) G.Heftner and G.G.Jaros: "The Electromyogram(EMG) as a Control Signal for Functional Neuromuscular Stimulation-Part2: Practical Demonstration of the EMG Signature Discrimination System", IEEE Trans.Biomed.Eng., vol.35, no.4, pp.238-242, April, 1988
- 10) D.Graupe and W.K.Cline: "Functional Separation of EMG Signals via ARMA Identification Methods for Prosthesis Control Purposes", IEEE Trans.Syst., Man, Cybern., vol.SMC-5, no.2, pp.252-259, March, 1975
- 11) 城戸：「デジタル信号処理入門」、丸善、昭 62

VI. Co-Metal系アモルファス軟磁性薄膜に関する研究

Study of Co-Metal Amorphous Soft-Magnetic Thin Films

Abstract

Co-Metal(ex.Zr,Nb,Ti,Ta) amorphous films have attracted the attention of many researchers because of their high saturation magnetization, high permeability, low coercive force, and nearly zero magnetostriction. So they are expected to use the magnetic head materials as the mechanisms of high performance magnetization and the inductor materials as the high-frequency electronic devices.

In this study, we investigated the structural and magnetic properties of Co-Zr, Co-Nb and Co-Nb-Zr amorphous thin films deposited by RF magnetron sputtering method.

Results are summarized as follows:

- (1) The composition of Co-Nb-Zr films can be controlled by changing number of Zr or Nb chips on the composite target consisted of Co-disk and them.
- (2) The deposition rate of Co-Nb-Zr films can be improved to apply the magnetic field on the surface of substrata.
- (3) The amorphous composition range of Co-Nb-Zr sputtering films is found out.
- (4) The composition dependence on the saturation magnetization of Co-Nb-Zr films is found out.
- (5) The best composition of Co-Nb-Zr amorphous sputtering films is Co=87, Nb=8 and Zr=5 atom% from the magnetic characteristics.
- (6) We may be able to make the excellent inductor with Co-Nb-Zr sputtering thin films for high-frequency use.

1. 緒言

近年、電子部品においては小型化、高周波化に対応できるものの開発要望が強く、磁気素子についても例外ではない。現在、これらの要望を満たすために軟磁性アモルファス合金薄膜の利用が検討されているが、十分に対応できる材料の開発は未だ見られず、アモルファス薄帯以外の新しい製造方法および複合材料などの開発による高性能の磁気素子材料の出現が望まれている。このような背景の中で注目されているものには、スパッタ法によるアモルファス軟磁性薄膜、特にCo-Me系アモルファススパッタ膜があげられる。Co-Me系スパッタ膜には、(1)アモルファス相が得られる組成範囲が広く、多種の新しいアモルファス組成が得られる、(2)この系では全体にわたり飽和磁化が大きい、結晶化温度が高い及び磁歪が小さいなどの基本的に優れた特性がある、(3)Coを主成分とするため不純物の混入が少なく、軟磁性に優れ、機械的強度の高い合金が得られる、などの利点があり、磁気ヘッド材料(一部実用化)、高周波磁心材料などへの応用が強く期待されている⁽¹⁾。

本研究では、スパッタ法の中でもスパッタ効率の非常に高いRFマグネトロンスパッタ法を用い、Co-Me系において良好な軟磁気特性が得られる2元系のCo-Zr、Co-Nb、さらに良好な特性が得られる3元系Co-Nb-Zrスパッタ膜を作製して、作製条件と基本的特性の検討を行った。また、これらの結果をもとにしてCo-Me系軟磁性アモルファススパッタ膜を用いた高周波用薄膜インダクタの構造、形状などに検討を加えたので、得られた成果の概要を報告する。

2. 実験方法

2.1 薄膜作製方法

薄膜作製装置には、高周波マグネトロンスパッタ装置（日電アネルパ製 SPF-332H、概略図：図1参照）を使用し、ターゲットには図2に示すようなCo円板（ $\phi 76$ 、ただしスパッタ有効部分は $\phi 52$ である）上にZrチップ（ $\phi 10$ ）あるいはNbチップ（ 10×10 ）を配置した複合ターゲットを用いて、パイレックスガラス基板上に膜を形成するものとした。なお、詳細な作製条件については、各検討項目ごとの実験結果で述べる。

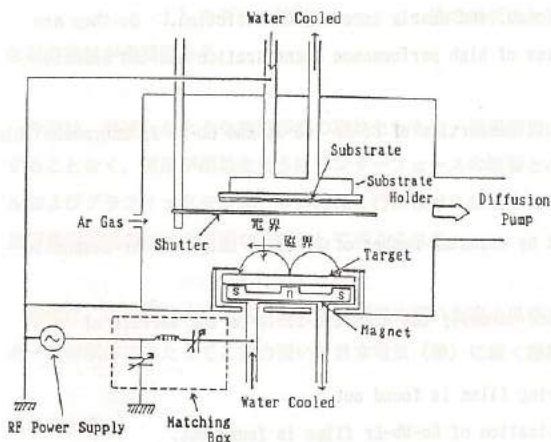


図1 RFマグネトロンスパッタ装置の構造概略図

Fig.1. The structure of RF magnetron sputtering instrument.

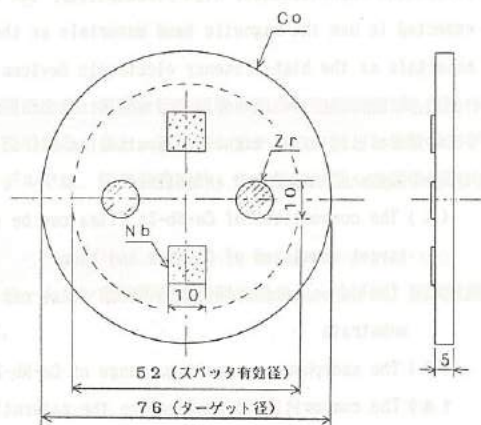


図2 複合ターゲット構成図

Fig.2. The composite target.

2.2 実験項目

- (1) 複合ターゲット上の各金属面積比を変化させ、薄膜組成に及ぼす影響などの検討。
- (2) 基板表面への磁界印加に伴う着膜速度、薄膜組成変化などの検討。
- (3) 作製した磁性薄膜の構造（アモルファス組成域の解析）、飽和磁化特性及び透磁率などの測定。
- (4) 上記結果をもとにした高周波薄膜インダクタの試作。

2.3 諸特性評価方法

作製した薄膜の諸特性は、以下に示す方法で検討を加えた。

- (a) 膜厚：表面粗さ計により、基板面と着膜面との段差を測定した。
- (b) 薄膜組成：EPMAにより分析した。
- (c) 飽和磁化：試料振動型磁化測定器（VSM）を用い測定した。
- (d) 透磁率：リング状試料（外径19mm、内径8mm、膜厚1.5 μ m）に巻線を施し、インピーダンスアナライザーで測定した。

なお、今回の諸特性の検討は全て as-sputtered 試料で行った。

3. 実験結果および考察

3.1 複合ターゲットによるスパッタ膜の成分制御

3.1.1 Co-Zrスパッタ膜

表1に示すスパッタ条件を固定し、複合ターゲット上のZrチップ数を変化させてスパッタを行い、得られた薄膜の組成と複合ターゲット上のZrの占める面積比（Zr面積/スパッタ有効面積）との関係に検討を加えた。図3はその結果を示す。図より、両者の間には直線関係があり、

$$y = 0.5 X \quad (3.1)$$

x : Zr面積/スパッタ有効面積 (%)、

y : Zr量 (at%)

で表すことができる。

3.1.2 Co-Nbスパッタ膜

Co-Zrスパッタ膜の場合と同様な実験を行った。図4は得られた結果を示す。図より、薄膜組成（Nb量）と複合ターゲット上のNbの占める面積比（Nb面積/スパッタ有効面積）との間にはCo-Zr膜と同様に直線関係があり、

$$y = 0.54 X \quad (3.2)$$

x : Nb面積/スパッタ有効面積 (%)

y : Nb量 (at%)

で表すことができる。

また、(3.1) (3.2) 式の傾きは、Zrの場合は0.50、Nbの場合は0.54と1よりはるかに小さい。従って、Zr及びNbはCoに比べてスパッタされにくいことがわかる。ZrとNbの比較では、Nbの方が若干スパッタされやすい。

3.1.3 Co-Nb-Zrスパッタ膜

表2は、Co-Nb(2)-Zr(2)及びCo-Nb(3)-Zr(3)スパッタ膜（カッコ内は、各々のチップ数）について、(3.1) (3.2) 式より算出した推定組成値とEPMAによる分析値を示す。表より、両者はほぼ一致しており(3.1) (3.2) 式による組成の推定は有効である。

表1 スパッタ条件（複合ターゲットによる成分制御実験）

Table 1. Sputtering condition

進行波電力	: 200 W
反射波電力	: 40 W
Arガス圧	: 5×10^{-3} torr
基板温度	: 100°C 以下
基板-ターゲット 間距離	: 70 mm

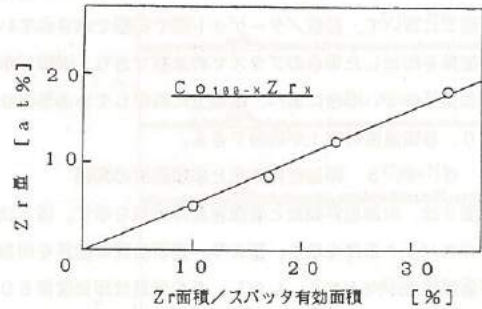


図3 複合ターゲット上のZr面積比と薄膜組成の関係

Fig. 3. Relationship between Zr area on a composite target and the composition of sputtering films.

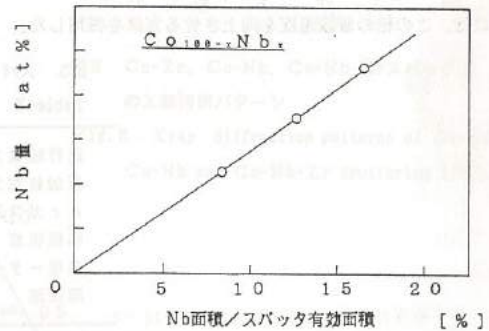


図4 複合ターゲット上のNb面積比と薄膜組成の関係

Fig. 4. Relation between Nb area on a composite target and the composition of sputtering films.

表2 Co-Nb-Zrスパッタ膜における推定組成値と分析値の比較

Table 2. Comparison of calculated composition and analyzed composition.

スパッタ膜	成分 (at%)			
		Co	Nb	Zr
Co-Nb(2)-Zr(2)	推定値	91.2	5.1	3.7
	分析値	91.3~92.0	5.1~5.6	2.9~3.1
Co-Nb(3)-Zr(3)	推定値	86.8	7.6	5.6
	分析値	86.8	7.5	5.7

3. 2 基板表面への磁界印加による着膜速度の向上

3. 2. 1 磁界印加方法

図5は磁界印加方法の一例を示す。図のように、基板裏面に永久磁石を装着することにより、基板表面に磁界を印加した。印加磁界の強度変化は、永久磁石の強度を変化させることにより行った。なお、基板表面での磁界強度は、基板中央部における測定値を採用した。測定器にはガウスメータを使用した。

3. 2. 2 磁界印加によるプラズマ分布状態の変化

図5において、基板/ターゲット間で実線で示されているのが磁界を印加した場合のプラズマの状態であり、破線で示した印加磁界のない場合に比べ、基板上に集中している形になっており、着膜速度の向上が期待できる。

3. 2. 3 印加磁界強度と着膜速度の関係

図6は、印加磁界強度と着膜速度の関係を示す。表3はこの時のスパッタ条件を示す。図より、基板表面に磁界を印加すると着膜速度が向上する。しかし、その効果は印加磁界800~1000 Oe程度で飽和する。図7は印加磁界強度と膜組成の関係を示す。図より、800 Oeまでの領域では印加磁界強度の変化によるスパッタ膜組成の変化は見られない。また、X線回折により、すべてアモルファスであることを確認しており、この方法を用いるとスパッタ膜の組成、構造を変えることなしに、着膜速度を向上させることができる。従って、以後の諸特性の検討には、この種の着膜速度を向上させる方法を採用した。

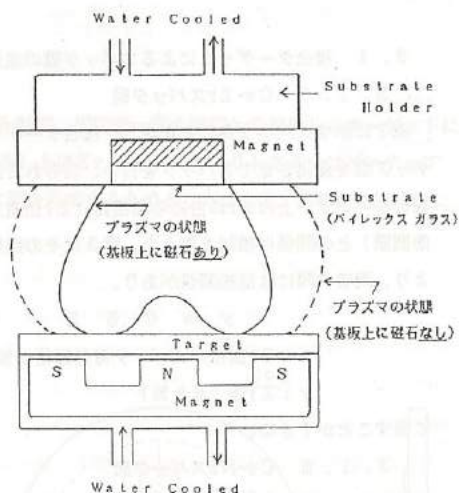


図5 基板表面への印加磁界概略図

Fig. 5. Magnetizing method for surface of a substrate.

表3 スパッタ条件 (磁界印加条件)

Table 3. Sputtering condition.

進行波電力	: 300 W
反射波電力	: 70 W
Arガス圧	: 5×10^{-3} torr
基板温度	: 100°C 以下
基板-ターゲット 間距離	: 70 mm

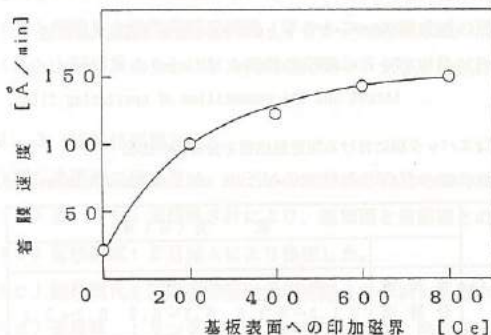


図6 基板表面への印加磁界強度と着膜速度

Fig. 6. Relation between magnetic field

intensity and the deposition rate.

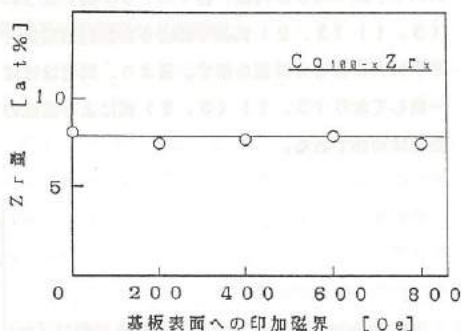


図7 基板表面への印加磁界強度と薄膜組成の関係

Fig. 7. Relation between magnetic field intensity

and the composition of sputtering films.

3.3 Co-Nb-Zrスパッタ膜の諸特性

3.3.1 アモルファス組成領域

図8のX線回折図に示すように、Co-Zrスパッタ膜においては、Zr量が5at%以上でハローパターンを描くようになり、アモルファス状態となっている。Co-Zr合金薄帯でのアモルファス領域は、Zr量が10at%以上であるので⁽¹⁾、スパッタ法の場合はアモルファス組成域が拡大していることがわかる。

Co-Nbスパッタ膜では、 $\text{Co}_{95}\text{Nb}_{5}$ は完全に結晶化し、 $\text{Co}_{93}\text{Nb}_7$ においてもきれいなハローパターンではなく、一部結晶化しているものと思われる。それに対し $\text{Co}_{90}\text{Nb}_{10}$ は、ハローパターンを示しアモルファス状態となっており、アモルファス領域と結晶化領域の境界が $\text{Co}_{93}\text{Nb}_7$ 付近にあるものと考えられる。アモルファス組成域の限界からアモルファス化可能域を考えた場合、ZrとNbの比較では、Zrの方が高い。Co-Nb-Zrスパッタ膜は、作製した膜すべてがアモルファスとなっている（一例を図8に示す）。これらの結果からCo-Nb-Zr3元素でのアモルファス組成領域は、図9のように推定できる。ただし、X線回折により求められた境界線では、境界線近傍のアモルファス領域は、原子配列的には完全なアモルファスとは言いがたい。このため、図中には完全なアモルファスが得られる推定境界線も合わせて破線で示した。なお、推定線はCo-Zr系では $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$ が完全アモルファス化境界点になるという報告がある⁽¹⁾ので、その点を通るようにX線回折より求めた境界線を平行移動したものである。

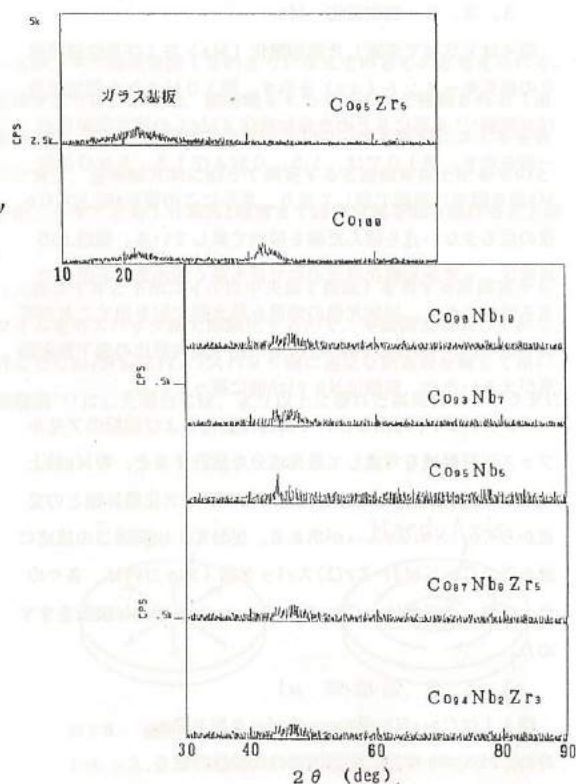


図8 Co-Zr, Co-Nb, Co-Nb-Zrスパッタ膜のX線回折パターン

Fig. 8. X-ray diffraction patterns of Co-Zr, Co-Nb and Co-Nb-Zr sputtering films.

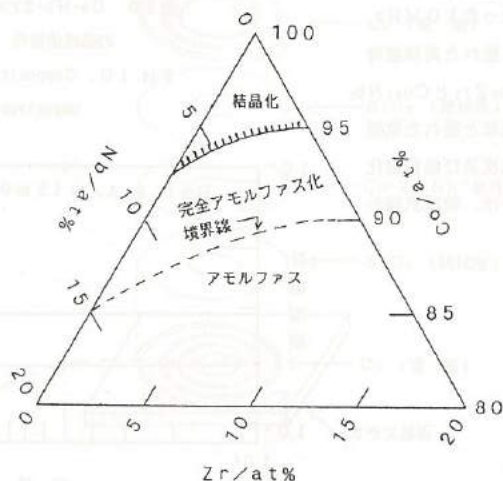


図9 Co-Nb-Zrスパッタ膜アモルファス組成域

Fig. 9. The amorphous composition areas of Co-Nb-Zr sputtering films.

3. 3. 2 飽和磁化 Ms

表4はVSMで測定した飽和磁化(Ms)および単位体積当りの磁気モーメント(σ_s)を示す。図10はこれら測定値及び文献値⁽¹⁾を基にまとめた飽和磁化(Ms)の組成依存性の一例を示す。図10では、15.0および13.5 kGの等Ms線を図中に実線で表しており、さらにこの等Ms線上でCo量の最も少ない点を結んだ線を破線で表している。破線上の組成は、一定飽和磁化組成の中で最も多く添加元素を配合できる組成であり、添加元素の効果を最大限に引き出すことが可能である。Nb添加の系はZr添加に比べ飽和磁化の低下抑制効果が大いいため、破線はNb rich側に寄っている。

Co-Nb-Zr系において高飽和磁化および前記のアモルファス化可能域を考慮して最良成分を設計すると、等Ms線上の最小Co量点を結んだ線と完全アモルファス化境界線との交点から $\text{Co}_{87}\text{Nb}_8\text{Zr}_{5\text{sat}}$ が求まる。従って、以降はこの組成に最も近いCo-Nb(3)-Zr(3)スパッタ膜(カッコ内は、各々のチップ数。分析値は、 $\text{Co}_{87}\text{Nb}_8\text{Zr}_{5\text{sat}}$)を中心に実験をすすめた。

3. 3. 3 透磁率 μ_i

図11は $\text{Co}_{87}\text{Nb}_8\text{Zr}_{5\text{sat}}$ スパッタ膜と $\text{Co}_{82}\text{Nb}_5\text{Zr}_3$ スパッタ膜の初透磁率の周波数特性を、これらスパッタ膜と同等の初透磁率を有するMn-Znフェライトの場合⁽²⁾と比較した一例を示す。図よりMn-Znフェライトは、500 kHz程度から初透磁率が低下し始めるのに対し、Co-Nb-Zrスパッタ膜は今回測定の上限となった10 MHzまでほぼ一定を保った状態であり優れた高周波特性を示している。また、 $\text{Co}_{87}\text{Nb}_8\text{Zr}_5$ と $\text{Co}_{82}\text{Nb}_5\text{Zr}_3$ の比較では前者の方が高透磁率と優れた軟磁性を有しており、アモルファス化度及び飽和磁化から最良組成として設計した成分は、軟磁性特性の面においても優れている。

表4 Co-Nb-Zr系の飽和磁化(Ms)

Table 4 Saturation magnetization(Ms) of Co-Nb-Zr sputtering films

スパッタ膜 ()内は チップ数	組成 (at%) Co Nb Zr	飽和磁束密度 Ms [kG]	飽和磁気 モーメント σ_s [emu/g]
CoZr(3)	95 - 5	14.5	130
CoNb(3)	93 7 -	14.4	129
CoNb(1)Zr(2)	(94.5 2.5 3)*	13.6	122
CoNb(2)Zr(1)	(93 5 2)*	14.6	131
CoNb(2)Zr(2)	92 5 3	15.0	134
CoNb(3)Zr(3)	87 8 5	13.5	121
Co(参考)	100 - -	17.9	161

*推定値

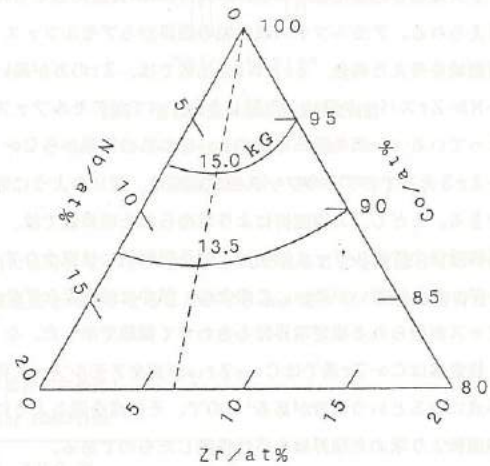


図10 Co-Nb-Zrスパッタ膜における飽和磁化(Ms)の組成依存性

Fig. 10. Composition dependence of the saturation magnetization(Ms) of Co-Nb-Zr sputtering films.

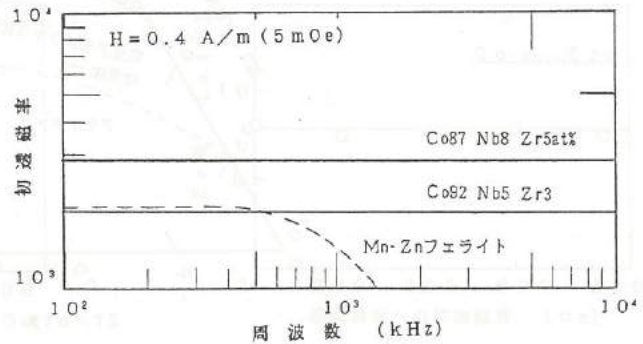


図11 Co-Nb-Zr スパッタ膜における初透磁率の周波数依存性

Fig. 11. Initial permeability(μ_i) of Co-Nb-Zr sputtering films VS. frequency.

3. 4 高周波薄膜インダクタの試作設計

今回作製、検討したスパッタ膜は、基板表面に磁界を印加しているが、その磁束は図12のようにになっているものと考えられる。このような磁界中でスパッタされた薄膜中の磁区状態は、図13に示すように、容易軸、困難軸をもつであろうと推察される（通常、磁界を印加しない場合は磁区は一定方向を向かず不規則である）。従って、今回測定した透磁率はリング状試料にコイルを巻いているため、困難軸方向に沿って測定していることになる。これに対し、容易軸方向に沿って測定すると透磁率は上がるものと考えられる。ただし、この場合は、周波数特性は悪くなるであろうが、少なくとも10MHz程度までは一定値を保ち続けると予測できるので、現状での高周波インダクタ用途には問題ない。

従って、我々は図14に示すようなスパイラル型の往復コイル（上部コイルと下部コイルは中央部で接続）を有する薄膜素子を薄膜の容易軸を利用したインダクタとして提案する。このものはコイルをもスパッタ法で薄膜化するので、平面構造を有しており、表面実装タイプとしても有効である。なお、磁性層は今回成分設計した $\text{Co}_{0.7}\text{Nb}_0.3\text{Zr}_{0.1}\text{Si}_{0.9}$ スパッタ膜に適正な熱処理を施して用いるか、あるいは、更に SiO_2 の絶縁層（100Å程度）を介した積層膜⁽⁴⁾にした場合には、より以上に優れた高周波インダクタになり得るものと考えられる。

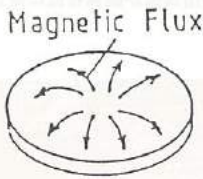


図12 磁界を印加した場合の基板表面での磁束状態
Fig.12 Magnetic flux on the magnetizing surface of a substrate.

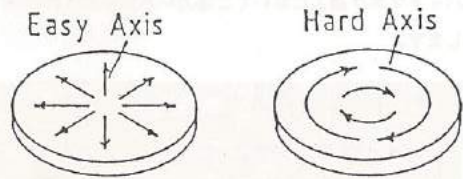


図13 磁界印加スパッタ膜の磁区状態
Fig.13 Domain structure of films in magnetic field.

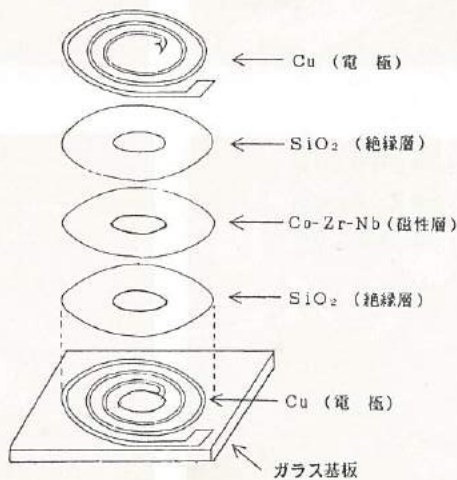


図14 高周波薄膜インダクタの構成図
Fig.14. The structure of the thin film inductor for high frequency use.

4. 結 言

本研究では、RFマグネトロンスパッタ法により作製したCo-Zr、Co-Nb及びCo-Nb-Zr薄膜に種々の検討を加えた。その結果、次の結論を得た。

- (1) Co円板上にZrあるいはNbチップを配置する複合ターゲットを用いると、チップ数の調整により、作製薄膜の成分をコントロールすることができる。
- (2) 磁性薄膜作製の場合には、基板表面に磁界を印加することにより、着膜速度を向上させることができる。
- (3) Co-Nb-Zr3元系スパッタ膜において、アモルファス化度、高飽和磁化及び高透磁率を満たす最良成分は $Co_{0.7}Nb_0.2Zr_{0.1}$ である。
- (4) $Co_{0.7}Nb_0.2Zr_{0.1}$ スパッタ膜を用い、磁区状態をスパッタ時に制御し、その磁区をうまく利用してやると、表面実装可能な優れた特性を有する高周波薄膜インダクタを作製できる可能性がある。

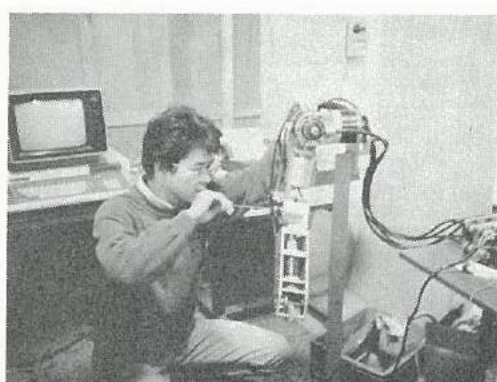
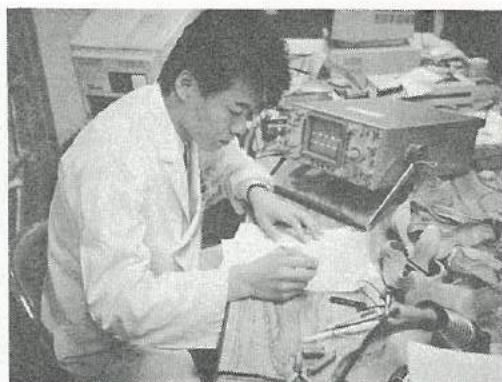
5. 謝 辞

本研究を進めるに当たり、VSMでの測定においてご協力頂いた電子磁気工業(株)の石川氏、井上氏、また、成分分析、スパッタマスク加工においてご協力いただいた工業技術センター中央研究所の松井氏、向山氏ほか関係各位に対し深く感謝致します。

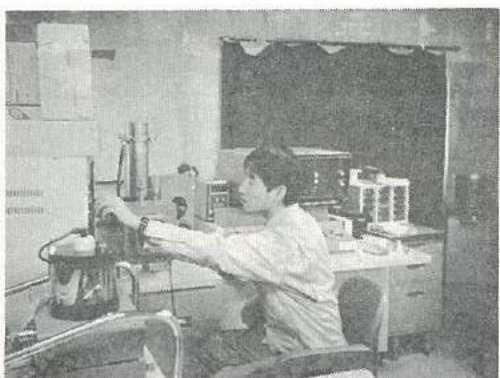
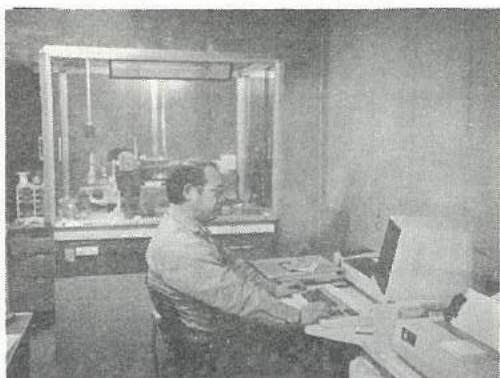
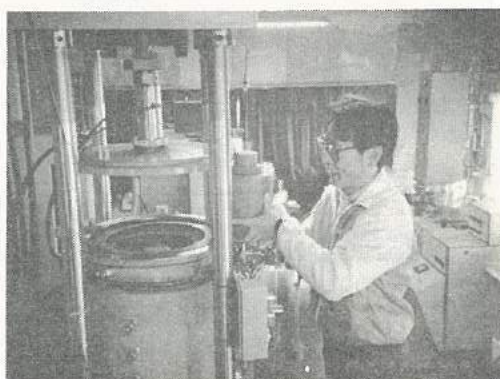
6. 参考文献

- (1) 島田: 日本金属学会会誌 Vol. 22 No. 11 (1983)
- (2) 電気工学ハンドブック
- (3) 白江: 日本応用磁気学会誌 Vol. 10 No. 2 (1986)
- (4) 島田: 第11回日本応用磁気学会学術講演概要集 1pC-10 (1987)

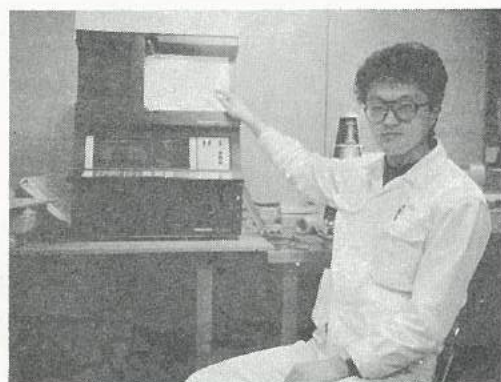
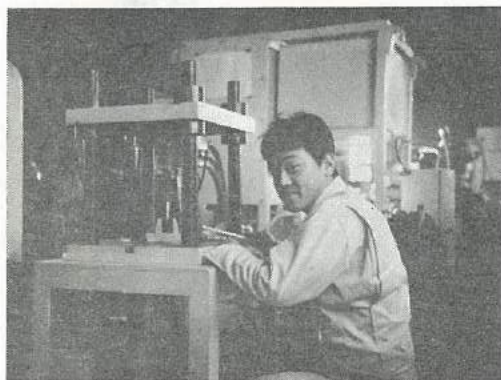
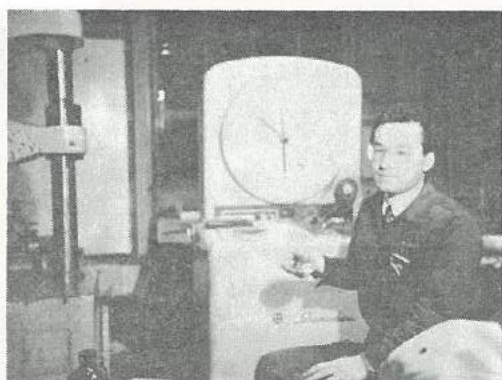
『フレキシブルハンドの開発』グループの研究活動風景



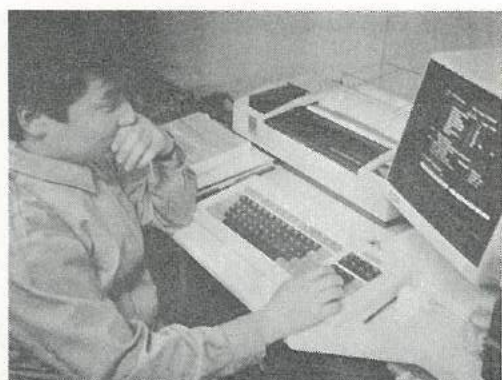
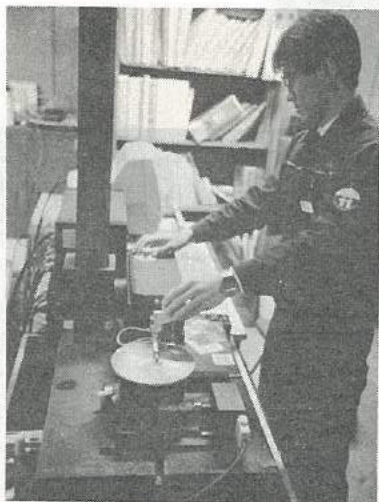
『ZnO系薄膜の開発』グループの研究活動風景



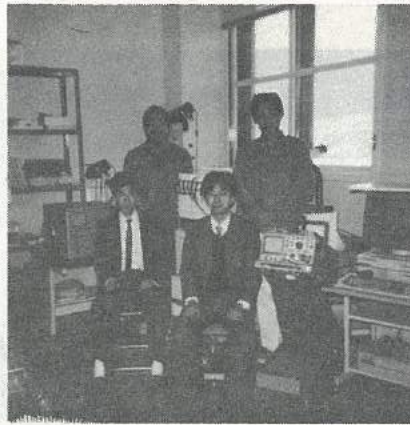
『複合材バネの開発』グループの研究活動風景



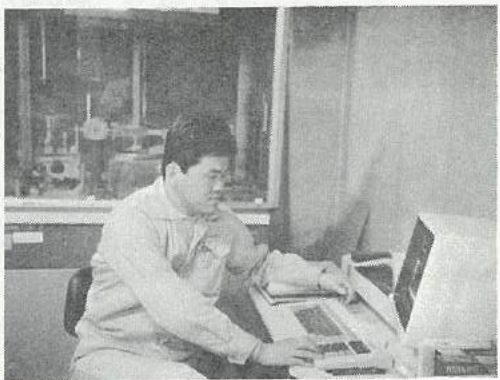
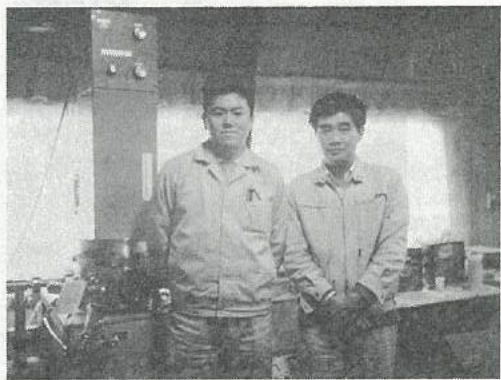
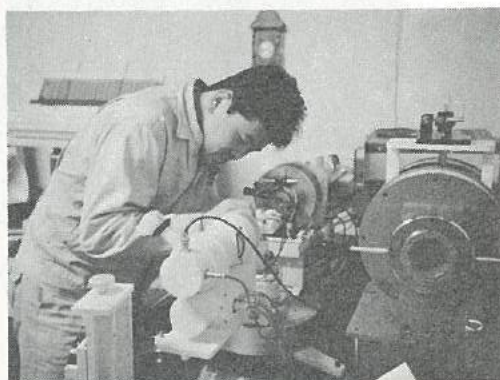
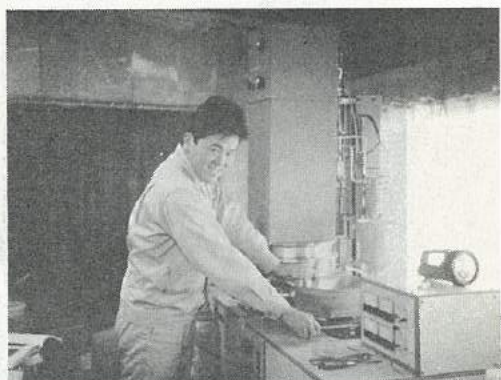
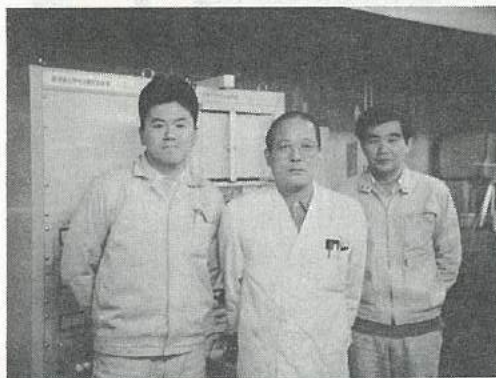
『Pb系薄膜の開発』グループの研究活動風景



『マンマシンシステムの開発』グループの研究活動風景



『磁性薄膜の開発』グループの研究活動風景



会 員 企 業

平成元年3月23日現在(50音順)

	企 業 名	代表者名	当会運営委員	電 話
1	㈱和泉電気富山製作所	藤田 貞三	大木 茂	0764-69-2151
2	㈱インテック	金岡 幸二	水野 武	0764-32-5511
3	エルコー㈱	鮎 久晴	町野 利道	0764-32-8151
4	北日本電子㈱	中村 正夫	北村 紹幸	0764-51-2155
5	㈱黒田精型	黒田 辰春	米陀 正行	0765-32-8006
6	㈱斉藤製作所	斉藤 恵三	森本 政典	0764-23-4541
7	㈱スギノマシン	杉野 健二	龍口 幹夫	0765-24-5111
8	ダイヤモンドエンジニアリング㈱ 魚津事業所	早川 元彦	高橋 博	0765-24-5670
9	㈱タカギセイコー	松木 康祐	上野 栄進	0766-24-5522
10	タカノギケン㈱	高野 啓良	春田 修	0764-55-2525
11	武内プレス工業㈱	武内 宗八	中沢 行雄	0764-41-1856
12	立山科学工業㈱	水口昭一郎	掘田 孝章	0764-29-3588
13	立山電化工業㈱	園 晶雄	鈴木 富雄	0766-23-1680
14	㈱タナカエンジニアリング	田中儀一郎	川上 吉夫	0764-51-5600
15	東洋化工㈱	中田翁斗松	田上 輝次	0764-75-2125
16	㈱東洋電制製作所	片山 俊雄	近堂 純也	0764-72-0381
17	長柄鉄工㈱	長柄 勝	長柄 勝	0766-22-3170
18	NKK(日本鋼管㈱)富山製造所	原田 保雄	中川 恵一	0766-84-4171
19	㈱不二越東富山製鋼所	竹内 淳	吉田 正就	0764-38-4411
20	北陸電気工業㈱	中村 正夫	岡本 信二	0764-67-1111
21	マルマス機械㈱	平野 治親	浅野 浩一	0764-72-2233
22	吉田工業㈱黒部工場	吉田 隆久	吉田 允	0765-57-1111
23	燐化学工業㈱	中村 久一	金山 敦	0766-86-2511

「若い研究者を育てる会」グループの研究活動報告

(第10号) 588円(税別) 発行

品 番	品 名	単 位	単 価	備 考
1815-08-487
1818-08-487
0008-08-487
0104-08-487
0601-08-487
0700-08-487
0701-08-487
0702-08-487
0703-08-487
0704-08-487
0705-08-487
0706-08-487
0707-08-487
0708-08-487
0709-08-487
0710-08-487
0711-08-487
0712-08-487
0713-08-487
0714-08-487
0715-08-487
0716-08-487
0717-08-487
0718-08-487
0719-08-487
0720-08-487
0721-08-487
0722-08-487
0723-08-487
0724-08-487
0725-08-487
0726-08-487
0727-08-487
0728-08-487
0729-08-487
0730-08-487
0731-08-487
0732-08-487
0733-08-487
0734-08-487
0735-08-487
0736-08-487
0737-08-487
0738-08-487
0739-08-487
0740-08-487
0741-08-487
0742-08-487
0743-08-487
0744-08-487
0745-08-487
0746-08-487
0747-08-487
0748-08-487
0749-08-487
0750-08-487
0751-08-487
0752-08-487
0753-08-487
0754-08-487
0755-08-487
0756-08-487
0757-08-487
0758-08-487
0759-08-487
0760-08-487
0761-08-487
0762-08-487
0763-08-487
0764-08-487
0765-08-487
0766-08-487
0767-08-487
0768-08-487
0769-08-487
0770-08-487
0771-08-487
0772-08-487
0773-08-487
0774-08-487
0775-08-487
0776-08-487
0777-08-487
0778-08-487
0779-08-487
0780-08-487
0781-08-487
0782-08-487
0783-08-487
0784-08-487
0785-08-487
0786-08-487
0787-08-487
0788-08-487
0789-08-487
0790-08-487
0791-08-487
0792-08-487
0793-08-487
0794-08-487
0795-08-487
0796-08-487
0797-08-487
0798-08-487
0799-08-487
0800-08-487

発 行 者	若い研究者を育てる会
発行者住所	〒930 富山市高田529 富山技術交流センター内
編集責任者	谷 野 克 巳・藤 城 敏 史
発行年月日	平成元年3月23日発行
印 刷 所	有限会社 新 響 社

* 無断転載を禁ずる。