

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2015 年 10 月 1 日(01.10.2015)



(10) 国際公開番号

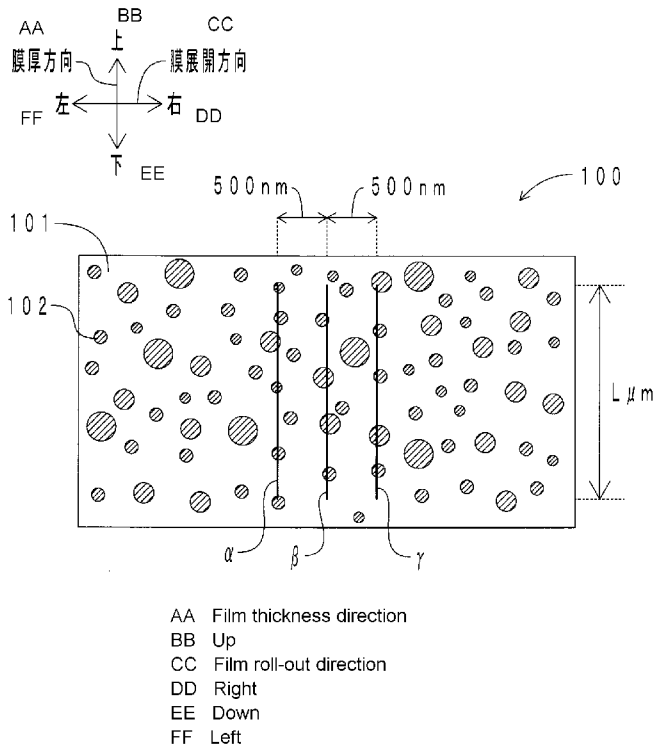
WO 2015/147167 A1

- (51) 国際特許分類:
H01B 3/00 (2006.01) H04R 19/02 (2006.01)
C08L 21/00 (2006.01) H04R 19/04 (2006.01)
H02N 11/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/059386
- (22) 国際出願日: 2015 年 3 月 26 日(26.03.2015)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2014-065612 2014 年 3 月 27 日(27.03.2014) JP
- (71) 出願人: 住友理工株式会社(SUMITOMO RIKO COMPANY LIMITED) [JP/JP]; 〒4858550 愛知県小牧市東三丁目 1 番地 Aichi (JP).
- (72) 発明者: 高橋 渉(TAKAHASHI Wataru); 〒4858550 愛知県小牧市東三丁目 1 番地 住友理工株式会社内 Aichi (JP). 吉川 均(YOSHIKAWA Hitoshi); 〒4858550 愛知県小牧市東三丁目 1 番地 住友理工株式会社内 Aichi (JP).
- (74) 代理人: 東口 倫昭, 外(HIGASHIGUCHI Michiaki et al.); 〒4510051 愛知県名古屋市西区則武新町 4-4-19 S G 名古屋駅ビル 402 号室 東口特許事務所 Aichi (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),

[続葉有]

(54) Title: DIELECTRIC FILM AND TRANSDUCER USING SAME

(54) 発明の名称: 誘電膜およびそれを用いたトランスデューサ



(57) Abstract: This dielectric film comprises an elastomer (101) and dielectric particles (102), and satisfies a condition (A) [the mean number of references is 0.8/μm or above], condition (B) [the mean number of large particles is 0.2/μm or below], and condition (C) [there are ten or fewer unit regions where the area ratio of the elastomer is 30% or below] in a cross-sectional photograph (100) of the film thickness direction captured by a scanning electron microscope. This dielectric film is flexible, has a large relative permittivity, and has large insulation breakdown strength even when thinned. This transducer is provided with the dielectric film and a plurality of electrodes arranged via the dielectric film.

(57) 要約: 本発明の誘電膜は、エラストマー(101)と誘電性粒子(102)とを含み、走査型電子顕微鏡により撮影された膜厚方向の断面写真(100)において、条件(A) [基準個数の平均値が0.8個/μm以上]、条件(B) [大粒子個数の平均値が0.2個/μm以下]、および条件(C) [エラストマーの面積割合が30%以下である単位領域の個数が10個以下]を満たす。本発明の誘電膜は、柔軟で、比誘電率が大きく、薄膜化しても絶縁破壊強度が大きい。本発明のトランスデューサは、該誘電膜と、該誘電膜を介して配置される複数の電極と、を備える。

WO 2015/147167 A1



OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：誘電膜およびそれを用いたトランスデューサ

技術分野

[0001] 本発明は、エラストマー材料を用いたトランスデューサに関し、特に、該トランスデューサに用いられる誘電膜に関する。

背景技術

[0002] トランスデューサとしては、機械エネルギーと電気エネルギーとの変換を行うアクチュエータ、センサ、発電素子等、あるいは音響エネルギーと電気エネルギーとの変換を行うスピーカ、マイクロフォン等が知られている。柔軟性が高く、小型で軽量のトランスデューサを構成するためには、誘電体エラストマー等の高分子材料が有用である。例えば、誘電体エラストマーからなる誘電膜の厚さ方向両面に一対の電極を配置して、トランスデューサを構成することができる。

[0003] 印加電圧に対する静電引力を大きくして、トランスデューサの性能向上を図るためには、誘電膜の比誘電率を大きくすることが必要である。このため、特許文献1、2に記載されているように、エラストマーにチタン酸バリウム等の比誘電率が大きい誘電性粒子を配合した誘電膜が種々提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2008-53527号公報
特許文献2：国際公開第2013/058237号
特許文献3：特開2006-244927号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] エラストマーに誘電性粒子を配合すると、誘電膜の比誘電率を大きくすることができる。しかし、粒子径が大きい誘電性粒子が含まれる場合、その粒

子が起点となり、絶縁破壊を招きやすい。また、誘電性粒子は凝集しやすいため、エラストマー中に均一に分散させることは難しい。この場合、誘電性粒子が凝集した凝集塊が起点となり、さらに絶縁破壊を招きやすくなる。

[0006] 近年では、印加電圧を低電圧化することによる安全性の向上、昇圧回路のコスト低減、用途拡大等の観点から、誘電膜の薄膜化が進められている。誘電膜の厚さが小さくなるほど、膜厚に対する誘電性粒子の大きさや凝集塊の存在の影響が顕著になる。したがって、誘電膜を薄膜化する場合、誘電性粒子に起因する絶縁破壊強度の低下が大きな問題になる。

[0007] 上記特許文献1には、比誘電率200以上の誘電性粒子を含み、厚さ10～200 μ mの誘電性ゴム層が開示されている。しかし、特許文献1においては、誘電性ゴム層の絶縁破壊強度は問題にされておらず、誘電性粒子の粒子径や分散状態に関する記載もない。

[0008] 上記特許文献2には、エラストマーと、結晶化度が80%以上のチタン酸バリウム粒子と、を含み、エラストマーおよびチタン酸バリウム粒子による架橋構造が形成されている誘電膜が開示されている。特許文献2に記載の誘電膜においては、チタン酸バリウム粒子の比誘電率は結晶性が高いほど大きくなるという知見に基づいて、結晶化度が80%以上のチタン酸バリウム粒子を用いている。また、エラストマーと結合させることにより、チタン酸バリウム粒子の凝集を抑制している。このため、チタン酸バリウム粒子の表面には、エラストマーと反応可能な官能基が必要である。このように、所望の結晶化度と官能基とを有するチタン酸バリウム粒子を製造するには、特許文献2に記載されているように、通常の製造方法ではなく、超臨界水による水熱合成法や高濃度の前駆体を用いたゾルゲル法を、採用する必要がある。また、特許文献2においても、誘電膜を薄膜化した場合の絶縁破壊強度の低下については検討されていない。

[0009] 上記特許文献3には、トランジスタのゲート絶縁膜として用いられる複合材料として、体積累積分布における50%径が100nm以下で比誘電率が50以上の粒子と、絶縁性の樹脂と、を含む複合材料が開示されている。し

かし、特許文献3に記載の複合材料の用途はトランスデューサではない。このため、マトリクスは樹脂であり、該複合材料は柔軟性に乏しい。また、樹脂に配合される粒子は、粒子径が比較的小さいものに限定されているが、マトリクス中における粒子の分散状態については考慮されていない。

[0010] 本発明は、このような実情に鑑みてなされたものであり、柔軟で、比誘電率が大きく、薄膜化しても絶縁破壊強度が大きい誘電膜を提供することを課題とする。また、該誘電膜を用いて、耐絶縁破壊性に優れ、大きな力を出力することができるトランスデューサを提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0011] (1) 本発明の誘電膜は、エラストマーと、誘電性粒子と、を含み、次の(A)、(B)、(C)の条件を満たすことを特徴とする。

(A) 走査型電子顕微鏡により撮影された膜厚方向の断面写真に、該断面写真の膜厚方向長さの $1/2$ 以上の長さを持ち膜厚方向に延びる三本の直線を膜展開方向に 500 nm ずつ離間して描き、各々の該直線ごとに、該直線と交わる該誘電性粒子の個数を数えて、該個数を該直線の長さで除することにより該直線 $1\text{ }\mu\text{ m}$ 当たりの基準個数を算出した場合に、三本の該直線における該基準個数の平均値が $0.8\text{ 個}/\mu\text{ m}$ 以上である。

(B) (A)において三本の該直線と交わる該誘電性粒子のうち、粒子径が誘電膜の膜厚の $1/10$ よりも大きい大粒子の個数を各々の該直線ごとに数えて、該個数を該直線の長さで除することにより該直線 $1\text{ }\mu\text{ m}$ 当たり的大粒子個数を算出した場合に、三本の該直線における該大粒子個数の平均値が $0.2\text{ 個}/\mu\text{ m}$ 以下である。

(C) 走査型電子顕微鏡により撮影された膜厚方向の断面写真に、 200 nm 四方の単位領域が 100 個連なって形成される測定領域を設け、該単位領域ごとに該エラストマーが占める面積を測定した場合に、該測定領域における該エラストマーの面積割合が 30% 以下である該単位領域の個数が 10 個以下である。

[0012] まず、条件(A)について説明する。図1に、本発明における条件(A)

を説明するための誘電膜の断面写真の模式図を示す。図1は、条件(A)の基準個数の算出手順を説明するための模式図である。図1は、誘電性粒子の大きさ、形状、数、配置、および誘電膜の厚さ等を含めて、本発明の誘電膜を何ら限定するものではない。

[0013] 断面写真100は、誘電膜の膜厚方向断面を走査型電子顕微鏡(SEM)により撮影したものである。エラストマー101中には、多数の誘電性粒子102が分散している。条件(A)の充足性を判断する場合は、まず、断面写真100の任意の部分に、上下方向(誘電膜の膜厚方向)に延びる三本の直線 α 、 β 、 γ を描く。三本の直線 α 、 β 、 γ の左右方向(誘電膜の膜展開方向)の間隔は、各々500nmである。また、三本の直線 α 、 β 、 γ の長さは、断面写真100の上下方向長さの $1/2$ 以上の $L\mu\text{m}$ である。次に、三本の直線 α 、 β 、 γ の各々について、直線 α 、 β 、 γ と交わる誘電性粒子102の個数を数える。ここでは、三本の直線 α 、 β 、 γ と交わる誘電性粒子102の個数を、直線 α については X 個、直線 β については Y 個、直線 γ については Z 個とする。続いて、各個数を、直線の長さ $L\mu\text{m}$ で除することにより、各直線 $1\mu\text{m}$ 当たりの基準個数を算出する。この場合、各直線における基準個数は、 X/L (個/ μm)、 Y/L (個/ μm)、 Z/L (個/ μm)となる。最後に、三つの基準個数の平均値 $[(X+Y+Z)/(3L)]$ を、算出する。そして、得られた平均値が 0.8 個/ μm 以上であるかを判断する。このようにして、条件(A)の充足性を判断する。

[0014] 条件(A)において、基準個数の平均値は、誘電性粒子の数および大きさに関係する値である。エラストマー中の誘電性粒子の数が少ないと、基準個数の平均値は小さくなる。この場合、比誘電率を大きくする効果が小さくなる。また、誘電性粒子の大きさが大きいと、誘電性粒子の数が減少する傾向にあるため、基準個数の平均値は小さくなる。この場合、誘電性粒子を起点とする絶縁破壊が生じやすい。基準個数の平均値が 0.8 個/ μm 以上であるということは、誘電性粒子の数および大きさが適当であることを示す。つまり、誘電膜は比誘電率が大きく、絶縁破壊しにくい。このように、条件(A)

A) は、比誘電率の大きさおよび絶縁破壊強度の指標となる。

[0015] 次に、条件 (B) について説明する。条件 (A) において三本の直線 α 、 β 、 γ と交わる誘電性粒子 102 のうち、粒子径が誘電膜の膜厚の $1/10$ よりも大きい大粒子の個数を数える。ここでは、大粒子の個数を、直線 α については x 個、直線 β については y 個、直線 γ については z 個とする。大粒子としては、粒子径が大きい単独の粒子の他、複数の粒子が凝集することにより粒子径が大きくなった凝集粒子を含む。続いて、各個数を、直線の長さ L μm で除することにより、各直線 $1 \mu\text{m}$ 当たり的大粒子個数を算出する。この場合、各直線における大粒子個数は、 x/L (個/ μm)、 y/L (個/ μm)、 z/L (個/ μm) となる。最後に、三つの大粒子個数の平均値 $[(x + y + z) / (3L)]$ を、算出する。そして、得られた平均値が 0.2 個/ μm 以下であるか否かを判断する。このようにして、条件 (B) の充足性を判断する。

[0016] 条件 (B) において、大粒子個数の平均値が 0.2 個/ μm 以下であるということは、膜厚に対して粒子径が大きい誘電性粒子の数が少ないことを示す。この場合、膜厚が小さくても、誘電性粒子を起点とする絶縁破壊が生じにくい。このように、(B) の条件は、絶縁破壊強度の指標となる。

[0017] 次に、条件 (C) について説明する。図 2 に、本発明における条件 (C) を説明するための誘電膜の断面写真の模式図を示す。図 3 に、図 2 中の単位領域の一つを拡大した模式図を示す。なお、説明の便宜上、図 2 においては、エラストマーおよび誘電性粒子を省略して示す。また、図 2、図 3 は、条件 (B) の単位領域および測定領域を説明するための模式図である。図 2、図 3 は、誘電性粒子の大きさ、形状、数、配置、および誘電膜の膜厚等を含めて、本発明の誘電膜を何ら限定するものではない。

[0018] 条件 (C) の充足性を判断する場合は、まず、図 2 に示すように、誘電膜の膜厚方向断面を走査型電子顕微鏡 (SEM) により撮影した断面写真 100 において、 $2 \mu\text{m}$ 四方の正方形の測定領域 M を設ける。測定領域 M は、上下方向 10 個 $\times$ 左右方向 10 個 (合計 100 個) の単位領域 E により、区画

されている。単位領域Eは200nm四方の正方形である。単位領域Eにおいては、図3に示すように、エラストマー101と誘電性粒子102とが観察される。次に、単位領域Eごとに、エラストマー101が占める面積を測定する。それから、図2にハッチングで示すように、エラストマー101の面積割合が30%以下である単位領域Eの個数を数える。そして、該個数が、10個以下であるか否かを判断する。このようにして、条件(C)の充足性を判断する。

[0019] ここで、単位領域Eの配置の仕方は、特に限定されない。しかし、誘電性粒子の分散状態を、膜厚方向および膜展開方向について均等に検出するという観点から、単位領域Eを、膜厚方向および膜展開方向に同数(10個×10個)配置して、測定領域Mを2μm四方の正方形とすることが望ましい(図2参照)。しかし、誘電膜の厚さが2μm未満の場合等、10個の単位領域Eを膜厚方向に揃えて配置できない場合も考えられる。この場合には、膜厚方向に配置できない残りの単位領域Eを、膜展開方向に加えて配置すればよい。

[0020] 本発明の(C)の条件において、エラストマーの面積割合が30%以下の単位領域の個数が10個以下であるということは、エラストマー成分が多い、あるいはエラストマー成分が連続して存在する領域が多いことを示す。この場合、ポリマーネットワークにより、伸びが大きくなり、誘電膜は柔軟になる。このように、(C)の条件は、柔軟性の指標となる。また、誘電膜が柔軟な場合、伸縮を繰り返しても機械的強度が低下しにくい。このため、誘電膜が柔軟であることは、変形時の絶縁破壊強度の向上にもつながる。

[0021] 以上まとめると、条件(A)、(B)、(C)を全て充足する誘電膜は、比誘電率および絶縁破壊強度が大きく、柔軟であるといえる。すなわち、条件(A)、(B)、(C)を充足する誘電性粒子の分散形態を実現することにより、柔軟で比誘電率が大きく、膜厚が小さい場合でも絶縁破壊強度が大きい誘電膜を得ることができる。

[0022] (2) 本発明のトランスデューサは、上記本発明の誘電膜と、該誘電膜を

介して配置される複数の電極と、を備えることを特徴とする。

[0023] 本発明のトランスデューサは、上記本発明の誘電膜を備える。上述したように、本発明の誘電膜の比誘電率は大きい。このため、印加電圧に対する静電引力が大きい。加えて、本発明の誘電膜は柔軟である。このため、本発明のトランスデューサによると、実用的な電圧により、大きな力および変位量を得ることができる。また、本発明の誘電膜においては、薄膜化した場合においても絶縁破壊強度が大きい。したがって、本発明のトランスデューサは耐絶縁破壊性に優れる。そして、本発明のトランスデューサによると、薄膜状態で絶縁破壊強度が大きい誘電膜を備えることにより、より低い電圧下での動作が可能になり、安全性の向上、昇圧回路のコスト低減、小型化を図ることができる。

図面の簡単な説明

[0024] [図1]本発明における条件（A）を説明するための誘電膜の断面写真の模式図である。

[図2]本発明における条件（B）を説明するための誘電膜の断面写真の模式図である。

[図3]図2中の単位領域の一つを拡大した模式図である。

[図4]本発明のトランスデューサの第一実施形態であるスピーカの斜視図である。

[図5]図4のV－V断面図である。

[図6]本発明のトランスデューサの第二実施形態であるアクチュエータの断面模式図であって、（a）は電圧オフ状態、（b）は電圧オン状態を示す。

[図7]本発明のトランスデューサの第三実施形態である静電容量型センサの上面図である。

[図8]図7のVⅠⅠⅠ－VⅠⅠⅠ断面図である。

[図9]本発明のトランスデューサの第四実施形態である発電素子の断面模式図であって、（a）は伸長時、（b）は収縮時を示す。

[図10]実施例2の誘電膜（膜厚10 μ m）の膜厚方向断面のSEM写真であ

る。

[図11]測定装置に取り付けられたアクチュエータの表側正面図である。

[図12]図11のX11-X11断面図である。

符号の説明

- [0025] 1：アクチュエータ（トランスデューサ）、10：誘電膜、11a、11b：電極、12a、12b：配線、13：電源。
- 2：スピーカ（トランスデューサ）、20：振動部材、21a～21c：誘電膜、22a～22d：電極、23a、23b：絶縁膜、220a～220d：端子部、30a：前側フレーム、30b：後側フレーム、31：ボルト、32：ナット。
- 4：静電容量型センサ（トランスデューサ）、40：誘電膜、41a、41b：電極、42a、42b：配線、43a、43b：カバーフィルム、44：コネクタ。
- 5：アクチュエータ（トランスデューサ）、50：誘電膜、51a、51b：電極、52：上側チャック、53：下側チャック。
- 6：発電素子（トランスデューサ）、60：誘電膜、61a、61b：電極、62a～62c：配線。
- 100：断面写真、101：エラストマー、102：誘電性粒子、E：単位領域、M：測定領域。

発明を実施するための形態

- [0026] 以下、本発明の誘電膜およびトランスデューサの実施形態について説明する。なお、本発明の誘電膜およびトランスデューサは、以下の実施形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において、当業者が行い得る変更、改良等を施した種々の形態にて実施することができる。

[0027] <誘電膜>

本発明の誘電膜は、エラストマーと、誘電性粒子と、を含み、上記（A）、（B）、（C）の条件を満たす。

[0028] [エラストマー]

エラストマーには、架橋ゴムおよび熱可塑性エラストマーが含まれる。これらの一種を単独で、あるいは二種以上を混合して用いることができる。エラストマーは、トランスデューサに要求される性能に応じて、適宜選択すればよい。例えば、印加電圧に対する静電引力を大きくするという観点では、極性が大きい、すなわち比誘電率が大きいエラストマーを採用することが望ましい。具体的には、比誘電率が2.8以上（測定周波数100Hz）のものが好適である。比誘電率が大きいエラストマーとしては、例えば、ニトリルゴム（NBR）、水素化ニトリルゴム（H-NBR）、アクリルゴム、天然ゴム、イソプレングム、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-酢酸ビニル-アクリル酸エステル共重合体、ブチルゴム、スチレン-ブタジエンゴム、フッ素ゴム、エピクロルヒドリングム、クロロプレングム、塩素化ポリエチレン、クロロスルホン化ポリエチレン、およびウレタンゴム等が挙げられる。また、比誘電率が小さくても、電気抵抗が大きいエラストマーは、電圧印加時に絶縁破壊しにくいという点で望ましい。電気抵抗が大きいエラストマーとしては、シリコンゴム、エチレン-プロピレン-ジエン共重合体等が挙げられる。また、官能基を導入するなどして変性したエラストマーを用いてもよい。変性エラストマーとしては、例えば、カルボキシル基変性ニトリルゴム（X-NBR）、カルボキシル基変性水素化ニトリルゴム（XH-NBR）等が好適である。X-NBR、XH-NBRにおいては、アクリロニトリル含有量（結合AN量）が33質量%以上のものが望ましい。結合AN量は、ゴムの全体質量を100質量%とした場合のアクリロニトリルの質量割合である。

[0029] 熱可塑性エラストマーは、架橋剤を使用しないため、不純物が入りにくく、好適である。熱可塑性エラストマーとしては、スチレン系（SBS、SEBS、SEPS）、オレフィン系（TPO）、塩ビ系（TPVC）、ウレタン系（TPU）、エステル系（TPEE）、アミド系（TPAE）、およびこれらの共重合体やブレンド体が挙げられる。

[0030] [誘電性粒子]

誘電性粒子は、マトリクスのエラストマーよりも、比誘電率が大きい粒子であれば、材質、製造方法等は特に限定されない。例えば、チタン酸バリウム、チタン酸ジルコン酸鉛、ランタンドープチタン酸ジルコン酸鉛、チタン酸ストロンチウム、チタン酸ビスマス、チタン酸ビスマスバリウム等の無機粒子が好適である。誘電性粒子としては、これらの一種を単独で、あるいは二種以上を混合して用いることができる。また、極性が高い官能基で表面が修飾された無機粒子を用いてもよい。極性が高い官能基としては、ハロゲン、アミド、シアノ基、アミン、リン酸、スルホン酸等を含む官能基が挙げられる。官能基による修飾は、脱水反応、エーチオール反応、加水分解反応等、公知の方法を用いればよい。誘電性粒子として有機粒子を用いる場合にも、無機粒子と同様に、表面を極性が高い官能基で修飾することができる。

[0031] 誘電性粒子の比誘電率は、粒子の結晶性が高いほど大きくなる。例えば、誘電性粒子としてチタン酸バリウムを用いる場合には、結晶格子のc軸とa軸との比(c/a比)が1.001以上の粒子を用いるとよい。このような粒子としては、例えば、堺化学工業(株)製の商品「KZM-50」等が市販されている。

[0032] 誘電性粒子の製造方法としては、固相反応法、水熱合成法、ゾルゲル法、シュウ酸法等がある。誘電性粒子の製造方法は、特に限定されるものではない。例えば、固相反応法によると、結晶性が高い粒子を得られるが、高温での焼成により粒子が凝集しやすい。焼成後に粉碎処理を行っても、粒子径が小さい粒子を得ることは難しい。一方、ゾルゲル法によると、粒子径が小さい粒子を得やすいが、得られる粒子の結晶性は低く、比誘電率が小さい。この点、水熱合成法によると、固相反応法ほどではないが比較的結晶性が高く、かつ、粒子径が小さい粒子を得やすい。したがって、水熱合成法によると、本発明の誘電膜に適した誘電性粒子を製造しやすい。

[0033] 誘電膜において、膜厚に対して粒子径が大きい粒子が多く含まれていると、その粒子が起点となり絶縁破壊を招きやすい。このため、誘電膜の絶縁破壊強度を向上させるためには、誘電性粒子の粒子径を膜厚に対して小さくす

ることが望ましい。しかし、誘電性粒子の粒子径が小さくなると、誘電性粒子の比誘電率は小さくなる。このため、誘電膜の比誘電率を大きくするためには、誘電性粒子の粒子径をできるだけ大きくすることが望ましい。したがって、誘電性粒子の粒子径については、誘電膜の厚さと、実現したい比誘電率と、を考慮して、適宜決定すればよい。

[0034] 後述するように、本発明の誘電膜は、エラストマーポリマーに、誘電性粒子の粉末と必要に応じて配合される他の成分とを混合した組成物を、所定の条件下で硬化させて製造することができる。この場合、誘電性粒子の粉末としては、誘電膜の絶縁破壊強度の観点から、粒子径の体積累積分布における95%径が誘電膜の膜厚の $1/10$ 以下である粉末を用いることが望ましい。また、誘電膜の比誘電率の観点から、個数平均粒子径が10nm以上の粉末を用いることが望ましい。

[0035] 誘電性粒子の粉末の個数平均粒子径および95%径は、例えば、動的光散乱法（DLS）等による粒度分布測定装置を用いて測定することができる。本明細書においては、大塚電子（株）製「ELS-Z-OS」にて測定された値を採用する。

[0036] 誘電膜における誘電性粒子の含有量は、誘電膜の比誘電率および柔軟性等を考慮して、適宜決定すればよい。例えば、誘電性粒子の含有量を、エラストマーの100質量部に対して20質量部以上200質量部以下とするとよい。誘電性粒子の含有量が20質量部未満の場合には、条件（A）を充足しにくく比誘電率を大きくする効果が小さい。一方、200質量部を超えると、条件（C）を充足しにくく弾性率が増加して柔軟性が損なわれる。また、誘電性粒子の分散性が低下するため、条件（B）を充足しにくく絶縁破壊強度が損なわれるおそれがある。

[0037] [他の成分]

本発明の誘電膜は、上記エラストマーおよび誘電性粒子に加えて、他の成分を含んでいてもよい。他の成分としては、架橋剤、補強材、可塑剤、老化防止剤、着色剤等が挙げられる。例えば、補強材として、絶縁性の無機粒子

等を配合すると、誘電膜の機械的強度および電気抵抗を大きくすることができる。これにより、誘電膜の絶縁破壊強度がより大きくなり、変形を繰り返した場合における耐久性が向上する。

[0038] [誘電膜の物性など]

本発明の誘電膜の厚さは、特に限定されないが、トランスデューサに用いる場合には、 $1\ \mu\text{m}$ 以上 $100\ \mu\text{m}$ 以下にするとよい。本発明の誘電膜によると、 $50\ \mu\text{m}$ 以下、さらには $10\ \mu\text{m}$ 以下に薄膜化した場合においても、絶縁破壊強度が大きい。印加電圧に対する静電引力を大きくするという観点から、本発明の誘電膜の比誘電率は大きい方が望ましい。例えば、比誘電率が13以上であると好適である。また、柔軟性の観点から、本発明の誘電膜の弾性率は、 100MPa 以下であると好適である。より好適な弾性率は、 50MPa 以下である。加えて、本発明の誘電膜の切断時伸びは、250%以上であると好適である。本明細書においては、弾性率を、JIS K7127:1999に規定される引張試験により得られる応力-伸び曲線から算出する（試験片には、試験片タイプ2を使用）。切断時伸びを、JIS K6251:2010に規定される引張試験により測定する（試験片には、ダンベル状5号形を使用）。

[0039] [誘電膜の製造方法]

本発明の誘電膜の製造方法は、特に限定されるものではない。例えば、エラストマーポリマー、誘電性粒子の粉末、および必要に応じて配合される他の成分を、ロールや混練機により混練りして、所定の条件下で薄膜状に成形すればよい。あるいは、エラストマーポリマー、誘電性粒子、および必要に応じて配合される他の成分を含む液状原料を、基材上に塗布して、所定の条件下で硬化させればよい。

[0040] 上記条件（A）、（B）、（C）を充足する誘電性粒子の分散形態を実現するためには、エラストマー中に、粒子径が小さい誘電性粒子をできるだけ単分散させることが望ましい。このためには、後者の方法を採用することが望ましい。この場合、エラストマーポリマーを溶剤に溶解したポリマー溶液

に、誘電性粒子が溶剤に分散されている分散液を加えて、液状原料を調製すればよい。

[0041] 上述したように、膜厚に対して粒子径が大きい誘電性粒子を少なくして絶縁破壊強度を向上させるという観点から、粒子径の体積累積分布における95%径が誘電膜の膜厚の $1/10$ 以下である誘電性粒子の粉末を用いることが望ましい。例えば、ナノメートルサイズの誘電性粒子の分散液は、誘電性粒子の粉末を溶剤に分散した予備分散液をメカノケミカル処理して製造することができる。メカノケミカル処理の方法は、均一で微細分散可能な方法であれば、特に限定されない。例えば、湿式ビーズミル、湿式ボールミル、ジェットミル、ニーダー、バンバリーミキサー、プラネタリーミキサー等を用いて行えばよい。なかでも、湿式ビーズミル、湿式ボールミルが好適である。使用するメディアの大きさは、0.3 mm以下、さらには0.1 mm以下が好適である。また、メカノケミカル処理の後、得られた分散液をフィルター処理することにより、粒子径の大きい誘電性粒子を除去することができる。こうすることにより、粒子径の体積累積分布における95%径が誘電膜の膜厚の $1/10$ 以下である誘電性粒子の粉末が溶剤に分散されている分散液を、容易に製造することができる。

[0042] 分散液を製造する場合、誘電性粒子の分散性を向上させるため、表面修飾剤により誘電性粒子を表面処理してもよい。表面修飾剤としては、誘電性粒子と化学結合するもの、あるいは誘電膜を形成する際に揮発するものが望ましい。表面修飾剤が単独で誘電膜中に残存すると、イオン化して誘電膜の電気抵抗を低下させ、絶縁破壊強度の低下を招くおそれがある。表面修飾剤としては、シラン系、チタネート系、アルミネート系、リン酸系等のカップリング剤等が挙げられる。

[0043] <トランスデューサ>

本発明のトランスデューサは、本発明の誘電膜と、該誘電膜を介して配置される複数の電極と、を備える。本発明のトランスデューサは、複数の誘電膜と複数の電極とを交互に積層させて構成してもよい。誘電膜と電極との間

に、これらの中間の電気抵抗を有する中間層を介在させてもよい。積層構造を採用すると、より大きな力を発生させることができる。本発明の誘電膜の構成および製造方法については、上述した通りである。よって、ここでは説明を省略する。なお、本発明のトランスデューサにおいても、本発明の誘電膜における好適な態様を採用することが望ましい。

[0044] 本発明のトランスデューサにおいて、電極の材質は、特に限定されるものではない。電極は、誘電膜の変形に追従して、伸縮可能であることが望ましい。この場合、誘電膜の変形が、電極により規制されにくい。したがって、本発明のトランスデューサにおいて、所望の出力を得やすくなる。例えば、オイル、エラストマー等のバインダーに導電材を混合した導電ペーストや導電塗料から、電極を形成することができる。導電材としては、カーボンブラック、ケッチェンブラック、カーボンナノチューブ、グラフェン等の炭素材料、銀等の金属粉末を使用すればよい。また、炭素繊維や金属繊維をメッシュ状に編んで、電極を形成してもよい。

[0045] 本発明のトランスデューサは、電極間に電圧を印加することによりアクチュエータとして動作して応力を発生する。また、誘電膜が変形して電極間距離が変化すると、静電容量が変化する。これにより、本発明のトランスデューサは、静電容量型センサとして機能する。また、誘電膜が変形した時に発生する電荷を電流として利用することにより、本発明のトランスデューサは、発電素子としても機能する。以下、本発明のトランスデューサの実施形態として、スピーカ、アクチュエータ、静電容量型センサ、発電素子の実施形態を説明する。

[0046] [第一実施形態]

本発明のトランスデューサをスピーカに具現化した実施形態を説明する。図4に、本実施形態のスピーカの斜視図を示す。図5に、図4のV-V断面図を示す。図4においては、前側の絶縁膜を透過して示す。まず、本実施形態のスピーカの構成について説明する。図4、図5に示すように、スピーカ2は、振動部材20と、前側フレーム30aと、後側フレーム30bと、を

備えている。

[0047] 前側フレーム30aおよび後側フレーム30bは、各々、樹脂製であり、リング状を呈している。前側フレーム30aおよび後側フレーム30bは、振動部材20の周縁部を挟んで対向して配置されている。前側フレーム30aと後側フレーム30bとは、八つのボルト31、八つのナット32により、固定されている。「ボルト31－ナット32」のセットは、スピーカ2の周方向に所定間隔ずつ離間して配置されている。ボルト31は、前側フレーム30a前面から後側フレーム30b後面までを貫通している。ナット32は、ボルト31の貫通端に螺着されている。

[0048] 振動部材20は、前側フレーム30aと後側フレーム30bとの間に介装されている。振動部材20は、三つの誘電膜21a～21cと、四つの電極22a～22dと、二つの絶縁膜23a、23bと、を備えている。振動部材20において、誘電膜21a～21cと、電極22a～22dと、は交互に積層されている。

[0049] 誘電膜21a～21cは、いずれも、カルボキシル基変性水素化ニトリルゴムとチタン酸バリウム粒子とを含み、円形の薄膜状を呈している。誘電膜21a～21cの厚さは20 μ mである。誘電膜21a～21cは、本発明の誘電膜に含まれる。電極22a～22dは、いずれも、シリコンゴムと銀粒子とを含んでいる。電極22a～22dは、各々、誘電膜21a～21cよりも小径の、円形の薄膜状を呈している。電極22a～22dは、各々、誘電膜21a～21cと略同心円状に配置されている。電極22a～22dは、各々、端子部220a～220dを有している。端子部220a～220dは、各々、電極22a～22dの上方の外周縁から拡径方向に突出している。端子部220a～220dは、各々、短冊状を呈している。端子部220a～220dには、配線（図略）を介して、外部から電圧が印加される。絶縁膜23a、23bは、いずれも、アクリルゴム製であり、誘電膜21a～21cと同じ大きさの円形の薄膜状を呈している。

[0050] 次に、本実施形態のスピーカ2の製造方法について説明する。まず、誘電

膜 2 1 a ~ 2 1 c を準備する。次に、誘電膜 2 1 a の前後両面に、シリコーンゴムに銀粉末を混合した導電塗料を印刷し、電極 2 2 a、2 2 b を形成する。そして、形成した電極 2 2 a の前面、および電極 2 2 a が形成されていない誘電膜 2 1 a の前面全体に、アクリルゴムを含む絶縁塗料を印刷し、絶縁膜 2 3 a を形成する。同様に、誘電膜 2 1 c の前後両面に、導電塗料を印刷し、電極 2 2 c、2 2 d を形成する。そして、形成した電極 2 2 d の後面、および電極 2 2 d が形成されていない誘電膜 2 1 c の後面全体に、絶縁塗料を印刷し、絶縁膜 2 3 b を形成する。それから、電極 2 2 a、2 2 b および絶縁膜 2 3 a を有する誘電膜 2 1 a と、誘電膜 2 1 b と、電極 2 2 c、2 2 d および絶縁膜 2 3 b を有する誘電膜 2 1 c と、を積層し、振動部材 2 0 を作製する。次に、作製された積層体の周縁部を、前側フレーム 3 0 a と後側フレーム 3 0 b とにより、挟持する。この状態で、前側フレーム 3 0 a と後側フレーム 3 0 b とを、八つのボルト 3 1、八つのナット 3 2 により、固定する。このようにして、スピーカ 2 を製造する。

[0051] 次に、本実施形態のスピーカ 2 の動きについて説明する。初期状態において、電極 2 2 a ~ 2 2 d には、図示しない配線を介して、所定のバイアス電圧が印加されている。この状態で、音の電気信号としての交流電圧を電極 2 2 a ~ 2 2 d に印加する。すると、誘電膜 2 1 a ~ 2 1 c の膜厚の変化により、図 5 に白抜き矢印で示すように、振動部材 2 0 が前後方向に振動する。これにより、空気が振動し、音が発生する。

[0052] 次に、本実施形態のスピーカ 2 の作用効果について説明する。本実施形態のスピーカ 2 において、誘電膜 2 1 a ~ 2 1 c は、柔軟で伸縮性に優れる。加えて、誘電膜 2 1 a ~ 2 1 c の比誘電率は大きい。また、電極 2 2 a ~ 2 2 d も、柔軟で、誘電膜 2 1 a ~ 2 1 c と一体となって伸縮可能である。したがって、スピーカ 2 においては、印加電圧に対する振動部材 2 0 の変形量が大きくなり、出力される音圧が大きくなる。また、誘電膜 2 1 a ~ 2 1 c は厚さ 20 μ m の薄膜であるが、絶縁破壊強度は大きい。このため、スピーカ 2 は耐久性に優れる。また、誘電膜 2 1 a ~ 2 1 c が薄膜であるため、よ

り低い電圧で大きな音圧を出すことができる。

[0053] 振動部材 20 は、電極 22 a ～ 22 d を介して積層された三つの誘電膜 21 a ～ 21 c を備えている。このため、一つの誘電膜の両面に電極を配置した形態と比較して、印加電圧に対する振動部材 20 の変形量が大きくなり、出力される音圧が大きくなる。また、誘電膜 21 a ～ 21 c の各々の膜厚が小さいため、スピーカ 2 は、軽量小型で、比較的安価である。

[0054] [第二実施形態]

本発明のトランスデューサをアクチュエータに具現化した実施形態を説明する。図 6 に、本実施形態のアクチュエータの断面模式図を示す。(a) は電圧オフ状態、(b) は電圧オン状態を示す。

[0055] 図 6 に示すように、アクチュエータ 1 は、誘電膜 10 と、電極 11 a、11 b と、配線 12 a、12 b と、を備えている。誘電膜 10 は、シリコーンゴムとチタン酸バリウム粒子とを含み、円形の薄膜状を呈している。誘電膜 10 の厚さは $50\ \mu\text{m}$ である。誘電膜 10 は、本発明の誘電膜に含まれる。電極 11 a は、誘電膜 10 の上面の略全体を覆うように、配置されている。同様に、電極 11 b は、誘電膜 10 の下面の略全体を覆うように、配置されている。電極 11 a、11 b は、各々、配線 12 a、12 b を介して電源 13 に接続されている。電極 11 a、11 b は、アクリルゴムとカーボンブラックとを含んでい。電極 11 a、11 b の厚さは、各々、 $10\ \mu\text{m}$ である。

[0056] オフ状態からオン状態に切り替える際は、一对の電極 11 a、11 b 間に電圧を印加する。電圧の印加により、誘電膜 10 の厚さは薄くなり、その分だけ、図 6 (b) 中白抜き矢印で示すように、拡径方向に伸長する。これにより、アクチュエータ 1 は、図中上下方向および左右方向の駆動力を出力する。

[0057] 本実施形態によると、誘電膜 10 は、柔軟で伸縮性に優れる。加えて、誘電膜 10 の比誘電率は大きい。また、電極 11 a、11 b も柔軟で、誘電膜 10 と一体となって伸縮可能である。したがって、アクチュエータ 1 によると、印加電圧に対する誘電膜 10 の変形量が大きいいため、大きな力および変

位量を得ることができる。また、誘電膜 10 の絶縁破壊強度は大きい。このため、アクチュエータ 1 は、耐絶縁破壊性に優れる。

[0058] 〔第三実施形態〕

本発明のトランスデューサを静電容量型センサに具現化した実施形態を説明する。まず、本実施形態の静電容量型センサの構成について説明する。図 7 に、静電容量型センサの上面図を示す。図 8 に、図 7 の V I I I - V I I I 断面図を示す。図 7、図 8 に示すように、静電容量型センサ 4 は、誘電膜 40 と、一对の電極 41 a、41 b と、配線 42 a、42 b と、カバーフィルム 43 a、43 b と、を備えている。

[0059] 誘電膜 40 は、ウレタンゴムとチタン酸バリウム粒子とを含み、左右方向に延びる帯状を呈している。誘電膜 40 の厚さは、 $20\mu\text{m}$ である。誘電膜 40 は、本発明の誘電膜に含まれる。

[0060] 電極 41 a は、長方形状を呈している。電極 41 a は、誘電膜 40 の上面に、スクリーン印刷により三つ形成されている。同様に、電極 41 b は、長方形状を呈している。電極 41 b は、誘電膜 40 を挟んで電極 41 a と対向するように、誘電膜 40 の下面に三つ形成されている。電極 41 b は、誘電膜 40 の下面に、スクリーン印刷されている。このように、誘電膜 40 を挟んで、電極 41 a、41 b が三対配置されている。電極 41 a、41 b は、アクリルゴムとカーボンブラックとを含んでいる。電極 41 a、41 b の厚さは、各々、 $10\mu\text{m}$ である。

[0061] 配線 42 a は、誘電膜 40 の上面に形成された電極 41 a の一つ一つに、それぞれ接続されている。配線 42 a により、電極 41 a とコネクタ 44 とが結線されている。配線 42 a は、誘電膜 40 の上面に、スクリーン印刷により形成されている。同様に、配線 42 b は、誘電膜 40 の下面に形成された電極 41 b の一つ一つに、それぞれ接続されている（図 7 中、点線で示す）。配線 42 b により、電極 41 b とコネクタ（図略）とが結線されている。配線 42 b は、誘電膜 40 の下面に、スクリーン印刷により形成されている。配線 42 a、42 b は、アクリルゴムと銀粒子とを含んでいる。

[0062] カバーフィルム43aは、アクリルゴム製であって、左右方向に延びる帯状を呈している。カバーフィルム43aは、誘電膜40、電極41a、配線42aの上面を覆っている。同様に、カバーフィルム43bは、アクリルゴム製であって、左右方向に延びる帯状を呈している。カバーフィルム43bは、誘電膜40、電極41b、配線42bの下面を覆っている。

[0063] 次に、静電容量型センサ4の動きについて説明する。例えば、静電容量型センサ4が上方から押圧されると、誘電膜40、電極41a、カバーフィルム43aは一体となって、下方に湾曲する。圧縮により、誘電膜40の厚さは薄くなる。その結果、電極41a、41b間のキャパシタンスは大きくなる。このキャパシタンス変化により、圧縮による変形が検出される。

[0064] 次に、静電容量型センサ4の作用効果について説明する。本実施形態によると、誘電膜40は、柔軟で伸縮性に優れる。加えて、誘電膜40の比誘電率は大きい。また、電極41a、41bおよび配線42a、42bも、柔軟で、誘電膜40と一体となって伸縮可能である。したがって、静電容量型センサ4の応答性は良好である。また、誘電膜40の絶縁破壊強度は大きい。このため、静電容量型センサ4は、耐絶縁破壊性に優れる。なお、静電容量型センサ4には、誘電膜40を挟んで対向する電極41a、41bが、三対形成されている。しかし、電極の数、大きさ、形状、配置等は、用途に応じて、適宜決定すればよい。

[0065] [第四実施形態]

本発明のトランスデューサを発電素子に具現化した実施形態を説明する。図9に、本実施形態の発電素子の断面模式図を示す。(a)は伸長時、(b)は収縮時を示す。

[0066] 図9に示すように、発電素子6は、誘電膜60と、電極61a、61bと、配線62a～62cと、を備えている。誘電膜60は、ウレタンゴムとチタン酸バリウム粒子とを含み、円形の薄膜状を呈している。誘電膜60の厚さは50 μ mである。誘電膜60は、本発明の誘電膜に含まれる。電極61aは、誘電膜60の上面の略全体を覆うように、配置されている。同様に、

電極 6 1 b は、誘電膜 6 0 の下面の略全体を覆うように、配置されている。電極 6 1 a には、配線 6 2 a、6 2 b が接続されている。すなわち、電極 6 1 a は、配線 6 2 a を介して、外部負荷（図略）に接続されている。また、電極 6 1 a は、配線 6 2 b を介して、電源（図略）に接続されている。電極 6 1 b は、配線 6 2 c により接地されている。電極 6 1 a、6 1 b は、いずれも、アクリルゴムとカーボンブラックとを含んでいる。電極 6 1 a、6 1 b の厚さは、各々、10 μ m である。

[0067] 次に、発電素子 6 の動きについて説明する。図 9 (a) 中白抜き矢印で示すように、発電素子 6 を圧縮し、誘電膜 6 0 を電極 6 1 a、6 1 b 面に対して平行方向に伸長すると、誘電膜 6 0 の厚さは薄くなり、電極 6 1 a、6 1 b 間に電荷が蓄えられる。その後、圧縮力を除去すると、図 9 (b) に示すように、誘電膜 6 0 の弾性復元力により誘電膜 6 0 は収縮し、厚さが厚くなる。その際、蓄えられた電荷が配線 6 2 a を通して放出される。

[0068] 次に、発電素子 6 の作用効果について説明する。本実施形態によると、誘電膜 6 0 の比誘電率は大きく、絶縁破壊強度も大きい。このため、発電素子 6 は、電極 6 1 a、6 1 b 間に多くの電荷を蓄えることができると共に、耐久性に優れる。また、誘電膜 6 0 は、柔軟で伸縮性に優れる。加えて、電極 6 1 a、6 1 b も柔軟で、誘電膜 6 0 と一体となって伸縮可能である。このため、発電素子 6 の全体が柔軟であり、誘電膜 6 0 の動きが、電極 6 1 a、6 1 b により規制されにくい。

実施例

[0069] 次に、実施例を挙げて本発明をより具体的に説明する。

[0070] <誘電膜の製造>

[実施例 1]

まず、カルボキシル基変性水素化ニトリルゴム（ランクセス社製「テルバン（登録商標）XT8889」）を、アセチルアセトンに溶解して、固形分濃度が 12 質量%のポリマー溶液を調製した。次に、調製したポリマー溶液に、ポリマー分 100 質量部に対して、架橋剤 A として有機金属化合物のテ

トラキス（２－エチルヘキシルオキシ）チタン５質量部と、補強材として二酸化チタン（ TiO_2 ）ゾル５質量部と、を混合した。続いて、この溶液に、チタン酸バリウム粒子の分散液を加えて、液状原料を調製した。チタン酸バリウム粒子の分散液は、ポリマー分１００質量部に対して、チタン酸バリウム粒子が２０質量部になるように加えた。それから、調製した液状原料を基材上に塗布し、乾燥させた後、１５０℃で約６０分間加熱して、誘電膜を得た。誘電膜としては、厚さが３μm、１０μm、５０μmの三種類を製造した。

[0071] チタン酸バリウム粒子の分散液は、次のようにして製造した。まず、チタン酸バリウム粒子の粉末（戸田工業（株）製「BT-T0-020RF」、水熱合成法により製造、 c/a 比＝１．００２）を溶剤のアセチルアセトンに加えて予備分散液を調製した。次に、予備分散液を湿式ビーズミル（ウィリー・エ・バックコーフェン社製「リサーチラボ」、使用メディア径：０．１mm）を用いてメカノケミカル処理した。処理後の液を、フィルター（（株）ロキテクノ製「LPJ-MPX-006-N2」）に通して分散液とした。

[0072] 使用したチタン酸バリウム粒子の粉末を、粉末Aと称す。製造されたチタン酸バリウム粒子の分散液中のチタン酸バリウム粒子（誘電性粒子）の個数平均粒子径は２０nm、９５％径は１５０nmであった。粒度分布については、分散液中のチタン酸バリウム粒子が全体の７質量％となるように調整した測定液を使用して、大塚電子（株）製の粒度分布測定装置「ELS Z-0S」を用いて測定した（以下同じ）。

[0073] TiO_2 ゾルは、次のようにして製造した。まず、有機金属化合物のテトラ*i*-プロポキシチタン０．０１molに、２－メトキシエタノール１７４mLを加えて、１２５℃で２時間攪拌した。次に、この溶液に、２－メトキシエタノール１８０mLと、水５．４molと、を加え、７０℃で５時間攪拌した。その後、溶液を濾過し、得られた固形分をアセチルアセトンに分散して、 TiO_2 ゾルとした。

[0074] [実施例 2 ～ 4]

チタン酸バリウム粒子の分散液の配合量、すなわち、チタン酸バリウム粒子の配合量を変えた点以外は、実施例 1 と同様にして誘電膜を製造した。

[0075] [実施例 5]

チタン酸バリウム粒子の粉末として、堺化学工業（株）製「K Z M-50」（水熱合成法により製造、 c/a 比 = 1.005）を用いた点、およびチタン酸バリウム粒子の配合量を 60 質量部にした点以外は、実施例 1 と同様にして誘電膜を製造した。使用したチタン酸バリウム粒子の粉末を、粉末 B と称す。製造されたチタン酸バリウム粒子の分散液中のチタン酸バリウム粒子の個数平均粒子径は 50 nm、95% 径は 300 nm であった。

[0076] [実施例 6]

まず、シリコーンゴム（信越化学工業（株）製「KE-1935」）の A 液に、チタン酸バリウム粒子の分散液を加えて、攪拌機で攪拌した。ここに、シリコーンゴム（同上）の B 液を加えてさらに攪拌し、液状原料を調製した。チタン酸バリウム粒子の分散液は、ポリマー分 100 質量部に対して、チタン酸バリウム粒子が 150 質量部になるように加えた。次に、調製した液状原料を基材上に塗布し、乾燥させた後、150℃で約 60 分間加熱して、誘電膜を得た。誘電膜としては、厚さが 3 μ m、10 μ m、50 μ m の三種類を製造した。

[0077] チタン酸バリウム粒子の分散液は、次のようにして製造した。まず、実施例 1 と同じ粉末 A をエタノールに投入して、超音波分散機を用いて分散した。ここに、表面修飾剤のデシリルトリメトキシシラン（信越化学工業（株）製）と蒸留水とを加え、80℃下で 2 時間攪拌して、チタン酸バリウム粒子の表面処理を行った。デシリルトリメトキシシランの添加量は、チタン酸バリウム粒子 1 mol に対して 0.02 mol、蒸留水の添加量は、チタン酸バリウム粒子 1 mol に対して 0.001 mol とした。次に、処理後の液を濾過し、得られた固形分をトルエンに投入した。この液を、超音波分散機を用いて分散して、予備分散液を調製した。続いて、予備分散液を湿式ビー

ズミル（同上）を用いてメカノケミカル処理した。処理後の液を、フィルター（同上）に通して分散液とした。製造されたチタン酸バリウム粒子の分散液中のチタン酸バリウム粒子の個数平均粒子径は49 nm、95%径は295 nmであった。

[0078] [実施例7]

まず、ウレタンゴム（日本ポリウレタン工業（株）製「N5230」）を、アセチルアセトンに溶解して、固形分濃度が12質量%のポリマー溶液を調製した。次に、調製したポリマー溶液に、ポリマー分100質量部に対して、架橋剤Bとしてポリイソシアネート（同社製「コロネート（登録商標）L」）1質量部を混合した。続いて、この溶液に、実施例1と同じチタン酸バリウム粒子の分散液を加えて、液状原料を調製した。チタン酸バリウム粒子の分散液は、ポリマー分100質量部に対して、チタン酸バリウム粒子が150質量部になるように加えた。それから、調製した液状原料を基材上に塗布し、乾燥させた後、150℃で約60分間加熱して、誘電膜を得た。誘電膜としては、厚さが3 μm、10 μm、50 μmの三種類を製造した。

[0079] [実施例8]

チタン酸バリウム粒子の分散液を製造する際に、チタン酸バリウム粒子の表面処理を行った点以外は、実施例5と同様にして誘電膜を製造した。チタン酸バリウム粒子の分散液は、次のようにして製造した。まず、実施例5と同じ粉末Bをアセチルアセトンに投入して予備分散液を調製すると共に、表面修飾剤のトリ－n－オクチルホスフィンオキシド（東京化成工業（株）製）を加えて、チタン酸バリウム粒子の表面処理を行った。トリ－n－オクチルホスフィンオキシドの添加量は、チタン酸バリウム粒子1 molに対して0.01 molとした。次に、予備分散液を湿式ビーズミル（同上）を用いてメカノケミカル処理した。処理後の液を、フィルター（同上）に通して分散液とした。製造されたチタン酸バリウム粒子の分散液中のチタン酸バリウム粒子の個数平均粒子径は48 nm、95%径は180 nmであった。

[0080] [比較例1]

チタン酸バリウム粒子の分散液を配合しない点以外は、実施例 1 と同様に
して誘電膜を製造した。

[0081] [比較例 2、3]

チタン酸バリウム粒子の分散液の配合量、すなわち、チタン酸バリウム粒子の配合量を変えた点以外は、実施例 1 と同様にして誘電膜を製造した。

[0082] [比較例 4]

チタン酸バリウム粒子の配合量を 60 質量部にした点、およびチタン酸バリウム粒子の分散液の製造において、予備分散液を湿式ビーズミルではなく超音波分散機（シャープ（株）製、超音波発振機「UT304R」、超音波発振子「UI304R」）を用いて処理し、処理後の液のフィルター処理を行わなかった点以外は、実施例 1 と同様にして誘電膜を製造した。製造されたチタン酸バリウム粒子の分散液中のチタン酸バリウム粒子の個数平均粒子径は 24 nm、95%径は 3800 nm であった。

[0083] [比較例 5]

チタン酸バリウム粒子の分散液の製造において、処理後の液のフィルター処理を行わなかった点以外は、実施例 5 と同様にして誘電膜を製造した。製造されたチタン酸バリウム粒子の分散液中のチタン酸バリウム粒子の個数平均粒子径は 50 nm、95%径は 2480 nm であった。

[0084] [比較例 6]

チタン酸バリウム粒子の粉末として、共立マテリアル（株）製「BT-H P9DX-100」（固相反応法により製造、 c/a 比 = 1.005）を用いた点、およびチタン酸バリウム粒子の配合量を 60 質量部にした点以外は、実施例 1 と同様にして誘電膜を製造した。使用したチタン酸バリウム粒子の粉末を、粉末 C と称す。製造されたチタン酸バリウム粒子の分散液中のチタン酸バリウム粒子の個数平均粒子径は 180 nm、95%径は 1000 nm であった。

[0085] [比較例 7]

チタン酸バリウム粒子の粉末として、共立マテリアル（株）製「BT-H

P9DX-400」(固相反応法により製造、 c/a 比=1.005)を用いた点、チタン酸バリウム粒子の配合量を60質量部にした点、および処理後の液のフィルター処理を行わなかった点以外は、実施例1と同様にして誘電膜を製造した。使用したチタン酸バリウム粒子の粉末を、粉末Dと称す。製造されたチタン酸バリウム粒子の分散液中のチタン酸バリウム粒子の個数平均粒子径は590nm、95%径は6000nmであった。

[0086] [比較例8]

チタン酸バリウム粒子の分散液を配合しない点以外は、実施例6と同様にして誘電膜を製造した。

[0087] [比較例9]

チタン酸バリウム粒子の粉末として比較例6と同じ粉末Cを用いた点以外は、実施例6と同様にしてチタン酸バリウム粒子の分散液を製造し、誘電膜を製造した。製造されたチタン酸バリウム粒子の分散液中のチタン酸バリウム粒子の個数平均粒子径は280nm、95%径は1985nmであった。

[0088] [比較例10]

チタン酸バリウム粒子の分散液を配合しない点以外は、実施例7と同様にして誘電膜を製造した。

[0089] [比較例11]

粉末Cを用いた比較例6と同じチタン酸バリウム粒子の分散液を配合した点以外は、実施例7と同様にして誘電膜を製造した。

[0090] [比較例12]

まず、ビスフェノールA型エポキシ樹脂(三菱化学(株)製「JER(登録商標)828」)100質量部に、硬化剤としてフェノールノボラック樹脂(昭和電工(株)製「BRG#558」)4.8質量部を加えて、ポリマー溶液を調製した。次に、調製したポリマー溶液に、実施例5と同じチタン酸バリウム粒子の分散液を加えて、液状原料を調製した。チタン酸バリウム粒子の分散液は、ポリマー分100質量部に対して、チタン酸バリウム粒子が60質量部になるように加えた。それから、調製した液状原料を基材上に

塗布し、乾燥させた後、 150°C で約60分間加熱して、誘電膜を得た。誘電膜としては、厚さが $3\mu\text{m}$ 、 $10\mu\text{m}$ 、 $50\mu\text{m}$ の三種類を製造した。

[0091] 実施例および比較例の誘電膜の製造に使用した原料の種類および配合量については、後出の表1、表2にまとめて示す。

[0092] <誘電膜の評価>

製造した誘電膜を、以下の項目により評価した。誘電膜の評価結果については、後出の表1、表2にまとめて示す。

[0093] [条件(A)、(B)、(C)の充足性]

製造した誘電膜について、膜厚方向断面のSEM写真を撮影し、条件(A)、(B)、(C)を満たすか否かを調べた。まず、各誘電膜をエポキシ樹脂で包埋し、ミクロトームにより膜厚方向の断面を切り出した。次に、該断面のSEM写真を撮影した(倍率 $1000\sim 5000$ 倍)。SEM写真の一例として、図10に、膜厚 $10\mu\text{m}$ の実施例2の誘電膜の膜厚方向断面のSEM写真を示す。図10に示すように、実施例2の誘電膜においては、エラストマー中に微細なチタン酸バリウム粒子が略均一に分散されていることが確認された。

[0094] 1. 条件(A)

図10に示すように、まず、SEM写真の右側の領域に、膜厚方向に延びる長さ $2\mu\text{m}$ の三本の直線を、 500nm 間隔で描いた。次に、各々の直線ごとに、直線と交わるチタン酸バリウム粒子の個数を数えた(図10中、黒線で囲んで示す)。続いて、得られた個数を直線の長さで除して、各々の直線ごとに基準個数を算出した。そして、三つの基準個数の平均値を算出した。

[0095] 2. 条件(B)

条件(A)において三本の直線と交わるチタン酸バリウム粒子のうち、粒子径が誘電膜の膜厚の $1/10$ よりも大きい、すなわち粒子径が $1\mu\text{m}$ を超える大粒子の個数を数えた。次に、得られた個数を直線の長さで除して、各々の直線ごとに大粒子個数を算出した。そして、三つの大粒子個数の平均値

を算出した。

[0096] 3. 条件 (C)

図10に示すように、まず、SEM写真の左側の領域に、 $2\mu\text{m}$ 四方の正方形の測定領域を設けた。次に、測定領域を、 200nm 四方の正方形の単位領域100個（縦10個×横10個）に分割した。続いて、バイナリ画像解析ソフトを用いて、各単位領域を白黒のビットマップに変換した。そして、単位領域ごとに、エラストマーおよびチタン酸バリウム粒子の画素数から、エラストマーの占める面積割合を算出した。

[0097] [比誘電率]

誘電膜の比誘電率については、誘電膜をサンプルホルダー（ソーラトロン社製、12962A型）に設置して、誘電率測定インターフェイス（同社製、1296型）、および周波数応答アナライザー（同社製、1255B型）を併用して測定した（周波数 100Hz ）。

[0098] [弾性率]

誘電膜の弾性率については、JIS K7127:1999に規定される引張試験を行い、得られた応力-伸び曲線から算出した。試験片には、試験片タイプ2を使用した。

[0099] [切断時伸び]

誘電膜の切断時伸びについては、JIS K6251:2010に規定される引張試験を行って測定した。試験片には、ダンベル状5号形を使用した。

[0100] [体積抵抗率]

誘電膜の体積抵抗率については、JIS K6271:2008に規定される平行端子電極法に準じて測定した。測定は、直流電圧 100V を印加して行った。

[0101] <アクチュエータ特性の評価>

製造した誘電膜を用いて、トランスデューサの一形態であるアクチュエータを製造し、アクチュエータ特性を評価した。まず、アクリルゴムポリマー

溶液にカーボンブラックを混合、分散させて導電塗料を調製した。次に、導電塗料を、製造した誘電膜の厚さ方向両面にスクリーン印刷して、電極を形成した。実施例の誘電膜を備えるアクチュエータは、本発明のトランスデューサに含まれる。

[0102] 製造したアクチュエータの特性として、絶縁破壊強度および最大発生応力を測定した。まず、測定装置および測定方法について説明する。図11に、測定装置に取り付けられたアクチュエータの表側正面図を示す。図12に、図11のX11-X11断面図を示す。

[0103] 図11、図12に示すように、アクチュエータ5の上端は、測定装置における上側チャック52により把持されている。アクチュエータ5の下端は、下側チャック53により把持されている。アクチュエータ5は、予め上下方向に延伸された状態で、上側チャック52と下側チャック53との間に、取り付けられている（延伸率25%）。上側チャック52の上方には、ロードセル（図略）が配置されている。

[0104] アクチュエータ5は、誘電膜50と一对の電極51a、51bとからなる。誘電膜50は、自然状態で、縦50mm、横25mmの長方形の薄膜状を呈している。電極51a、51bは、誘電膜50を挟んで表裏方向に対向するように配置されている。電極51a、51bは、自然状態で、各々、縦40mm、横25mm、厚さ10 μ mの長方形の薄膜状を呈している。電極51a、51bは、上下方向に10mmずれた状態で配置されている。つまり、電極51a、51bは、誘電膜50を介して、縦30mm、横25mmの範囲で重なっている。電極51aの下端には、配線（図略）が接続されている。同様に、電極51bの上端には、配線（図略）が接続されている。電極51a、51bは、各々の配線を介して、電源（図略）に接続されている。

[0105] 電極51a、51b間に電圧を印加すると、電極51a、51b間に静電引力が生じて、誘電膜50を圧縮する。これにより、誘電膜50の厚さは薄くなり、延伸方向（上下方向）に伸長する。誘電膜50の伸長により、上下方向の延伸力は減少する。電圧印加前後において減少した延伸力を、ロード

セルにより測定して、発生応力とした。発生応力の測定は、印加する電圧を段階的に増加させて、誘電膜50が破壊されるまで行った。そして、誘電膜50が破壊される寸前における発生応力を、最大発生応力とした。また、その時の電圧値を誘電膜50の膜厚で除した値を、絶縁破壊強度とした。絶縁破壊強度および最大発生応力の測定結果については、後出の表1、表2にまとめて示す。

[0106] <スピーカへの適用性>

アクチュエータの評価において、最大発生応力が2.8 MPa以上であり、膜厚10 μm の場合の絶縁破壊強度が70 V/ μm 以上である誘電膜については、スピーカに用いると、優れた音圧特性を発揮し耐久性にも優れる。したがって、最大発生応力および絶縁破壊強度の観点から、誘電膜のスピーカへの適用性を評価した。すなわち、上記特性を満足する場合を適用可能（後出表1、表2中、○印で示す）、満足しない場合を適用不可（後出表1、表2中、×印で示す）とした。

[0107] 誘電膜の製造に使用した原料の種類および配合量と、誘電膜、アクチュエータ特性、およびスピーカへの適用性の評価結果とを、表1、表2にまとめて示す。実施例については表1に、比較例については表2に示す。

[表1]

原料(質量部)		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
ポリマー	XH-NBR	100	100	100	100	100	—	—	100
	シリコーンゴム	—	—	—	—	—	100	—	—
	ウレタンゴム	—	—	—	—	—	—	100	—
	エポキシ樹脂	—	—	—	—	—	—	—	—
誘電性粒子 (チタン酸 バリウム)	粉末A(ビースミル+フィルター)	20	60	150	200	—	—	150	—
	粉末A(表面処理ビースミル+フィルター)	—	—	—	—	—	150	—	—
	粉末A(超音波分散)	—	—	—	—	—	—	—	—
	粉末B(ビースミル+フィルター)	—	—	—	—	60	—	—	—
	粉末B(表面処理ビースミル+フィルター)	—	—	—	—	—	—	—	60
	粉末B(ビースミル)	—	—	—	—	—	—	—	—
	粉末C(ビースミル+フィルター)	—	—	—	—	—	—	—	—
	粉末C(表面処理ビースミル+フィルター)	—	—	—	—	—	—	—	—
補強材	粉末D(ビースミル)	—	—	—	—	—	—	—	—
	—	5	5	5	5	5	—	—	5
	—	5	5	5	5	5	—	—	5
	—	—	—	—	—	—	—	1	—
評価結果		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
条件(A)	基準個数の平均値[個/μm]	1.3	3.3	6.8	12.7	2.5	7.1	6.5	2.5
条件(B)	大粒子個数の平均値 [個/μm]	0	0	0.1	0.1	0.2	0.2	0.2	0.1
	膜厚3μm	0	0	0	0	0.1	0.1	0.1	0
	膜厚10μm	0	0	0	0	0	0	0	0
条件(C)	単位領域の個数[個]	0	0	0	0	0	0	0	0
	—	0	1	2	4	2	4	3	2
	—	14	18	28	32	18	14	15	18
物性	弾性率[MPa]	9	14	27	36	13	48	49	13
	切断伸び[%]	420	385	300	290	420	390	500	450
	体積抵抗率[Ω・cm]	1.5×10^{14}	3.0×10^{14}	5.9×10^{14}	7.8×10^{14}	2.1×10^{14}	1.9×10^{15}	1.0×10^{13}	3.0×10^{14}
	最大発生応力[MPa]	0.28	0.35	0.53	0.58	0.36	0.29	0.37	0.36
アクチュエータ 特性	膜厚3μm	90	85	75	65	75	90	70	80
	膜厚10μm	100	95	85	70	85	120	80	95
	膜厚50μm	120	110	100	75	105	145	95	110
スリカへの適用性		○	○	○	○	○	○	○	○

[表2]

原料(質量部)		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12
ポリマー	XH-NBR	100	100	100	100	100	100	100	—	—	—	—	—
	シリコーンゴム	—	—	—	—	—	—	—	100	100	—	—	—
	ウレタンゴム	—	—	—	—	—	—	—	—	100	100	100	—
	エポキシ樹脂	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	100
	粉末A(ヒースミル+フィルター) d95=150nm	—	10	250	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	粉末A(表面処理ヒースミル+フィルター) d95=295nm	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	粉末A(超音波分散) d95=3800nm	—	—	—	60	—	—	—	—	—	—	—	—
	粉末B(ヒースミル+フィルター) d95=300nm	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	60
	粉末B(表面処理ヒースミル+フィルター) d95=180nm	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	粉末B(ヒースミル) d95=2480nm	—	—	—	—	60	—	—	—	—	—	—	—
誘電性粒子 (チタン酸バリウム)	粉末C(ヒースミル+フィルター) d95=1000nm	—	—	—	—	—	60	—	—	—	—	150	—
	粉末C(表面処理ヒースミル+フィルター) d95=1985nm	—	—	—	—	—	—	—	150	—	—	—	—
	粉末D(ヒースミル) d95=6000nm	—	—	—	—	—	—	60	—	—	—	—	—
	補強材	5	5	5	5	5	5	5	—	—	—	—	—
	架橋剤A	5	5	5	5	5	5	5	—	—	—	—	—
架橋剤B	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1	—	
評価結果													
条件(A)	基準個数の平均値[個/μm]	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12
条件(B)	大粒子個数の平均値 [個/μm]	0	0	0.3	1.2	0.7	2.2	3.0	0	2.9	0	0.2	0.6
	膜厚3μm	0	0	0.3	1.2	0.7	2.2	3.0	0	2.9	0	0.2	0.6
	膜厚10μm	0	0	0.3	0.7	0.4	1.2	1.7	0	1.3	0	0.1	0.4
条件(C)	膜厚50μm	0	0	0.2	0.3	0.1	0.1	0.4	0	0.9	0	0	0
	単位領域の個数[個]	0	0	13	3	2	7	14	0	6	0	2	3
物性	比誘電率	10	12	38	18	18	18	19	2.5	11	7	15	4
	弾性率[MPa]	6	7	102	13	12	13	12	32	45	35	48	2200
	切断時伸び[%]	560	480	180	260	415	440	280	420	330	520	420	220
	体積抵抗率[Ω・cm]	1.0×10 ⁻³	9.0×10 ⁻³	8.0×10 ⁻⁴	2.1×10 ⁻⁴	2.9×10 ⁻⁴	1.1×10 ⁻⁴	8.9×10 ⁻³	1.0×10 ⁻⁵	1.8×10 ⁻⁵	4.0×10 ⁻²	5.0×10 ⁻³	1.0×10 ⁻⁵
	最大発生応力[MPa]	0.25	0.27	—	—	0.36	—	—	0.09	—	0.14	—	—
特性	膜厚3μm	95	90	30	20	35	40	20	100	20	80	30	45
	膜厚10μm	100	100	35	40	45	45	25	130	25	100	35	55
	膜厚50μm	120	120	45	45	100	60	40	150	45	110	45	120
	Zn-Feへの適用性	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×

[0108] 実施例の誘電膜については、95%径が誘電膜の膜厚の1/10以下であるチタン酸バリウム粒子の粉末が溶剤に分散した分散液を用いて製造した。これにより、実施例の誘電膜は、いずれも条件（A）～（C）を全て満たす。したがって、実施例の誘電膜においては、比誘電率および絶縁破壊強度の両方が大きくなった。実施例の誘電膜によると、10 μ m以下の薄膜の場合でも、大きな絶縁破壊強度を維持できることが確認された。また、実施例の誘電膜は、いずれも大きな体積抵抗率を有していた。また、実施例の誘電膜の弾性率は最大でも49 MPaであった。このように、実施例の誘電膜は柔軟であるため、アクチュエータを構成した場合に変形しやすい。このため、実施例のアクチュエータは、大きな力を出力できることが確認された。また、実施例5と実施例8とを比較すると、チタン酸バリウム粒子に表面処理を施した実施例8の誘電膜の方が、粒子の分散性が向上したことにより、絶縁破壊強度が大きくなった。

[0109] 一方、比較例1、8、10の誘電膜には、チタン酸バリウム粒子が配合されていない。このため、比較例1、8、10の誘電膜の比誘電率は、小さかった。したがって、比較例1、8、10の誘電膜を用いてアクチュエータを構成しても、発生応力が小さく、十分な力を出力することができなかった。これに対して、比較例2～7、9、11の誘電膜には、チタン酸バリウム粒子が配合されている。よって、その分だけ比誘電率は大きくなった。しかし、比較例2の誘電膜は、チタン酸バリウム粒子の配合量が少ないため、条件（A）を満たさない。このため、比誘電率の向上効果は小さく、アクチュエータの発生応力は小さかった。反対に、比較例3の誘電膜は、チタン酸バリウム粒子の配合量が多いため、条件（C）を満たさない。このため、弾性率が大きくなり、伸びが低下した。また、10 μ m以下の薄膜の場合には、条件（B）も満たさない。このため、絶縁破壊強度が小さくなった。

[0110] 比較例4～7、9、11の誘電膜の製造に用いた分散液は、粒子径が大きいチタン酸バリウム粒子を多く含む。このため、膜厚が小さくなるほど、条件（B）を満たしにくくなる。条件（B）を満たさない場合には、絶縁破壊

強度が小さくなった。

[0111] 比較例 1 2 の誘電膜のマトリクスは、エラストマーではなく樹脂である。このため、比較例 1 2 の誘電膜においては、弾性率が大幅に大きくなった。したがって、比較例 1 2 の誘電膜を用いてアクチュエータを構成しても、ほとんど変形せず、力を取り出すことはできなかった。

[0112] 全ての実施例の誘電膜は、所望のアクチュエータ特性を満たしており、スピーカに好適であることが確認された。一方、比較例の誘電膜は、いずれも所望のアクチュエータ特性を満たさなかったため、スピーカには適用できないという結果になった。

産業上の利用可能性

[0113] 本発明の誘電膜を用いたトランスデューサは、機械エネルギーと電気エネルギーとの変換を行うアクチュエータ、センサ、発電素子等、あるいは音響エネルギーと電気エネルギーとの変換を行うスピーカ、マイクロフォン、ノイズキャンセラ等として、広く用いることができる。

請求の範囲

- [請求項1] エラストマーと、誘電性粒子と、を含み、次の（Ａ）、（Ｂ）、（Ｃ）の条件を満たすことを特徴とする誘電膜。
- （Ａ）走査型電子顕微鏡により撮影された膜厚方向の断面写真に、該断面写真の膜厚方向長さの $1/2$ 以上の長さを持ち膜厚方向に延びる三本の直線を膜展開方向に 500 nm ずつ離間して描き、各々の該直線ごとに、該直線と交わる該誘電性粒子の個数を数えて、該個数を該直線の長さで除することにより該直線 $1\text{ }\mu\text{ m}$ 当たりの基準個数を算出した場合に、三本の該直線における該基準個数の平均値が $0.8\text{ 個}/\mu\text{ m}$ 以上である。
- （Ｂ）（Ａ）において三本の該直線と交わる該誘電性粒子のうち、粒子径が誘電膜の膜厚の $1/10$ よりも大きい大粒子の個数を各々の該直線ごとに数えて、該個数を該直線の長さで除することにより該直線 $1\text{ }\mu\text{ m}$ 当たり的大粒子個数を算出した場合に、三本の該直線における該大粒子個数の平均値が $0.2\text{ 個}/\mu\text{ m}$ 以下である。
- （Ｃ）走査型電子顕微鏡により撮影された膜厚方向の断面写真に、 200 nm 四方の単位領域が 100 個連なって形成される測定領域を設け、該単位領域ごとに該エラストマーが占める面積を測定した場合に、該測定領域における該エラストマーの面積割合が 30% 以下である該単位領域の個数が 10 個以下である。
- [請求項2] 膜厚が $1\text{ }\mu\text{ m}$ 以上 $100\text{ }\mu\text{ m}$ 以下である請求項 1 に記載の誘電膜。
- [請求項3] 弾性率が 100 MPa 以下である請求項 1 または請求項 2 に記載の誘電膜。
- [請求項4] 前記誘電性粒子の含有量は、前記エラストマーの 100 質量部に対して 20 質量部以上 200 質量部以下である請求項 1 ないし請求項 3 のいずれかに記載の誘電膜。
- [請求項5] 粒子径の体積累積分布における 95% 径が誘電膜の膜厚の $1/10$ 以下である誘電性粒子の粉末が溶剤に分散されている分散液を用いて

製造される請求項 1 ないし請求項 4 のいずれかに記載の誘電膜。

[請求項6] 前記分散液は、誘電性粒子の粉末を溶剤に分散した予備分散液をメカノケミカル処理して製造される請求項 5 に記載の誘電膜。

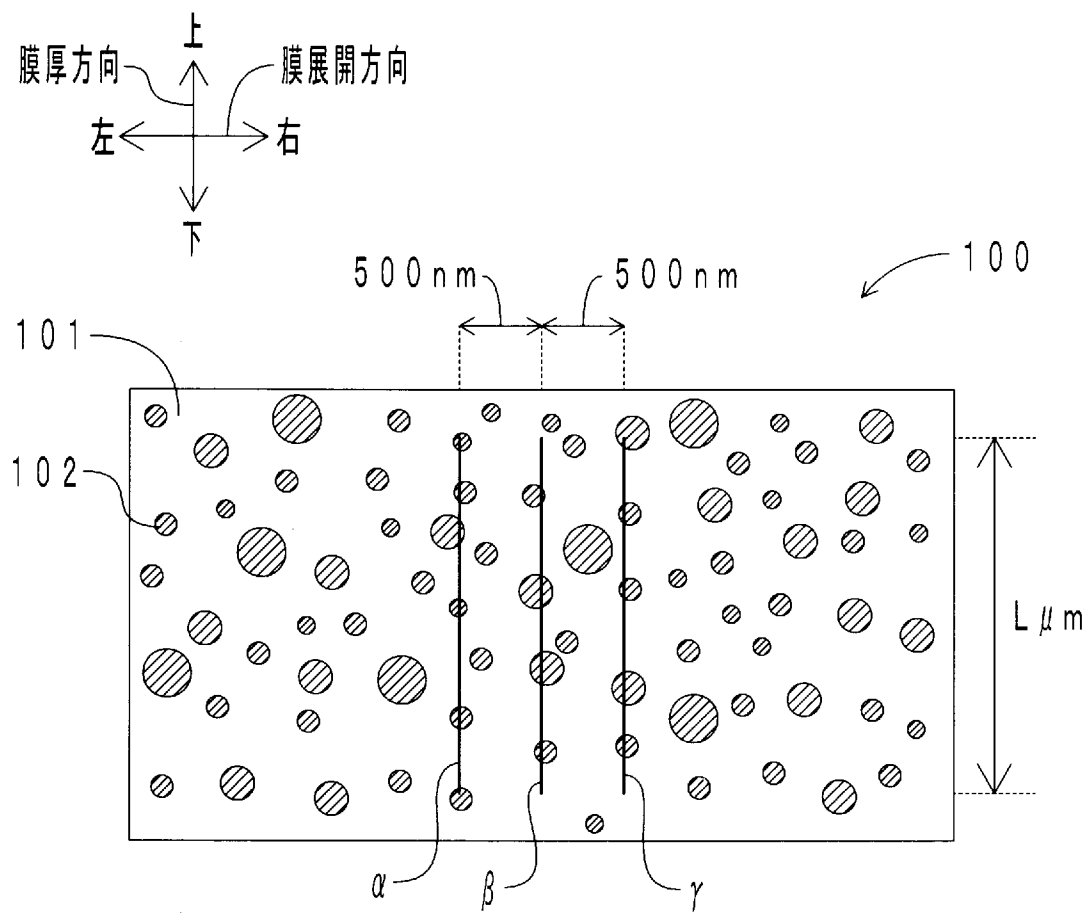
[請求項7] 前記分散液は、前記メカノケミカル処理の後、さらにフィルター処理して製造される請求項 6 に記載の誘電膜。

[請求項8] 前記誘電性粒子は、チタン酸バリウム、チタン酸ジルコン酸鉛、ランタンドープチタン酸ジルコン酸鉛、チタン酸ストロンチウム、チタン酸ビスマス、チタン酸ビスマスバリウムから選ばれる一種以上である請求項 1 ないし請求項 7 のいずれかに記載の誘電膜。

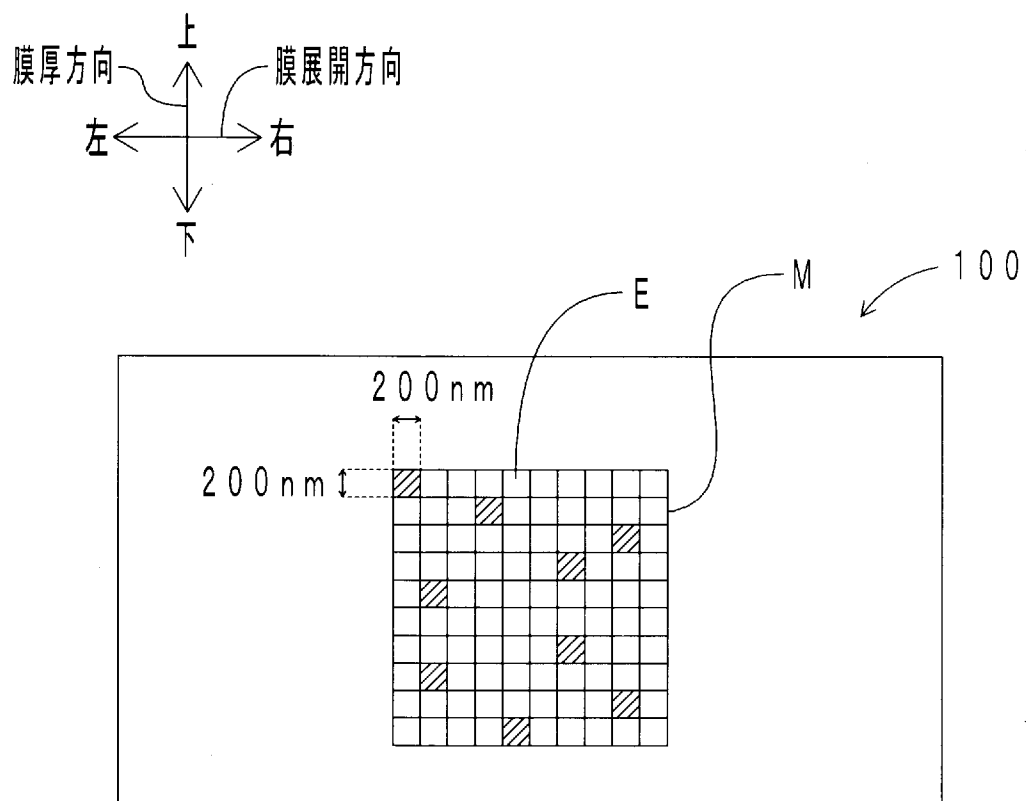
[請求項9] 前記エラストマーは、ニトリルゴム、水素化ニトリルゴム、アクリルゴム、天然ゴム、イソプレンゴム、エチレンープロピレンジエン共重合体、エチレンー酢酸ビニル共重合体、エチレンー酢酸ビニルーアクリル酸エステル共重合体、ブチルゴム、スチレンーブタジエンゴム、フッ素ゴム、シリコーンゴム、エピクロルヒドリンゴム、クロロプレンゴム、塩素化ポリエチレン、クロロスルホン化ポリエチレン、およびウレタンゴムから選ばれる一種以上である請求項 1 ないし請求項 8 のいずれかに記載の誘電膜。

[請求項10] 請求項 1 ないし請求項 9 のいずれかに記載の誘電膜と、
該誘電膜を介して配置される複数の電極と、
を備えることを特徴とするトランスデューサ。

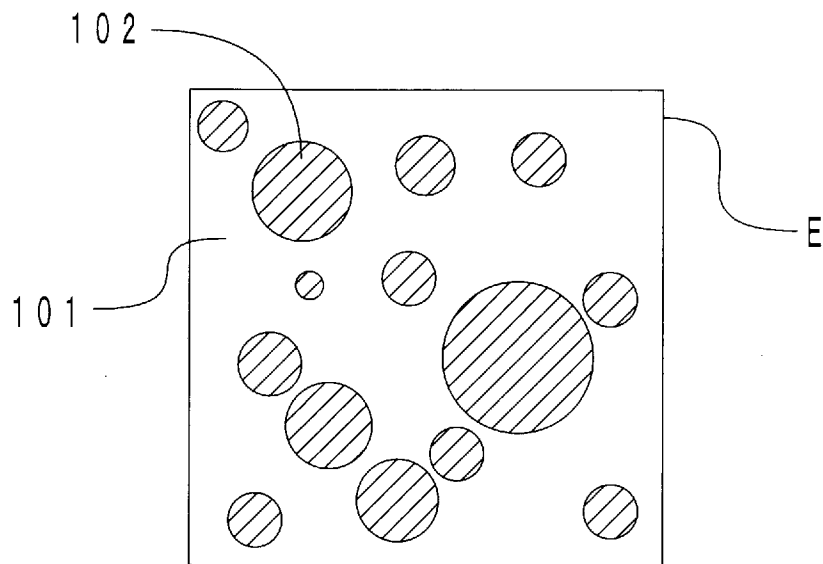
[図1]



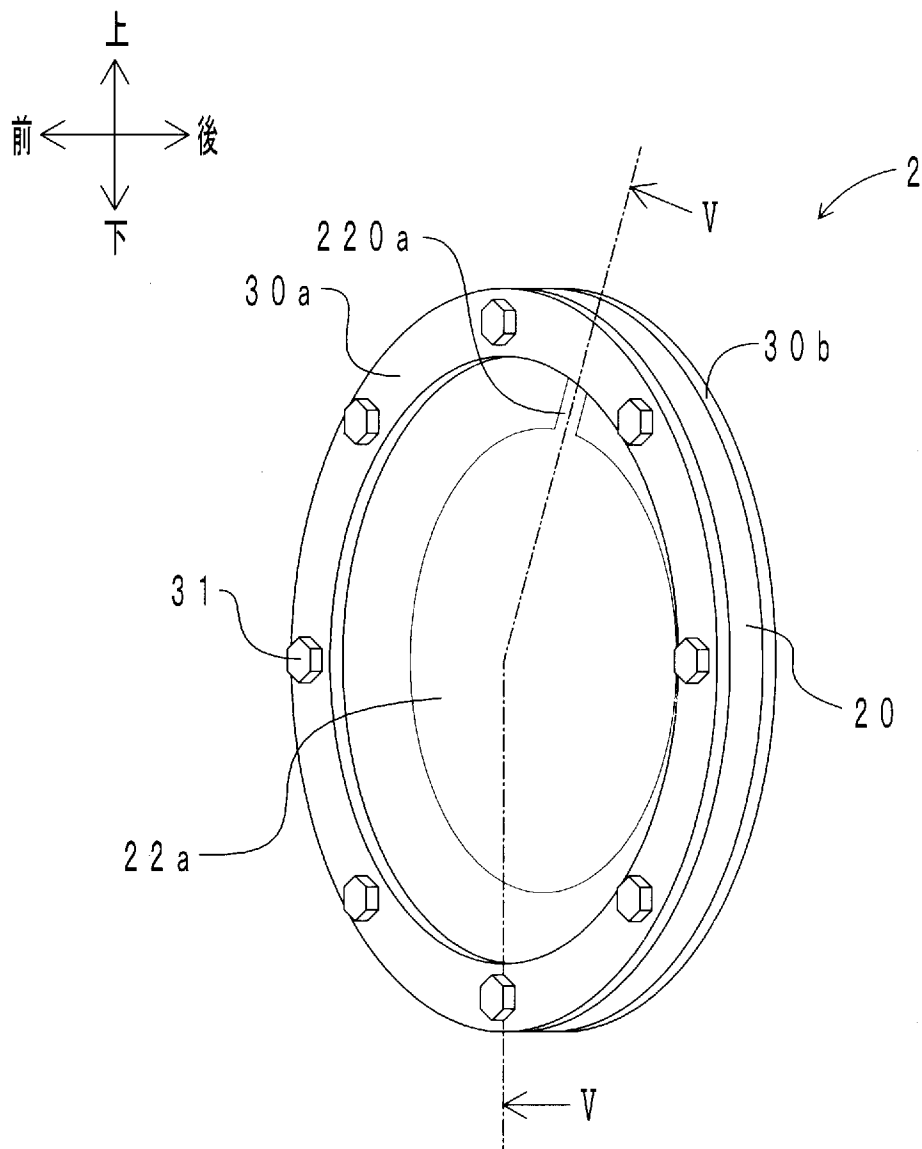
[図2]



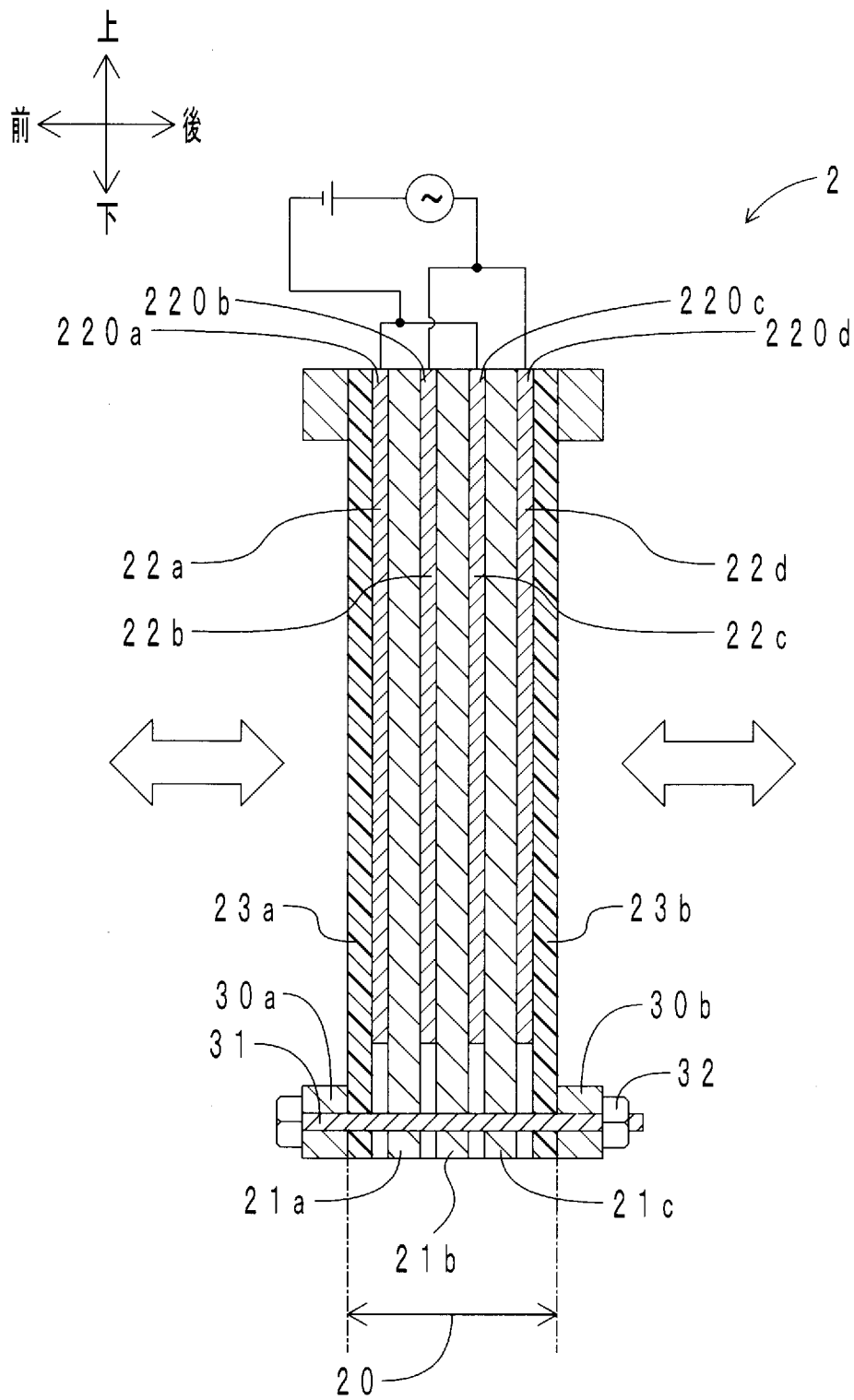
[図3]



[図4]

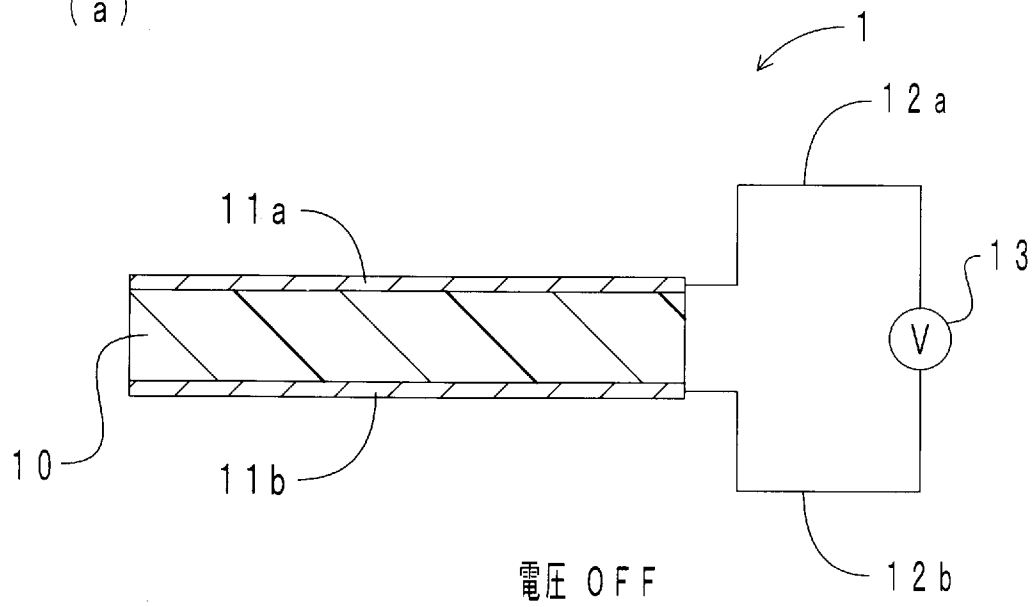


[図5]

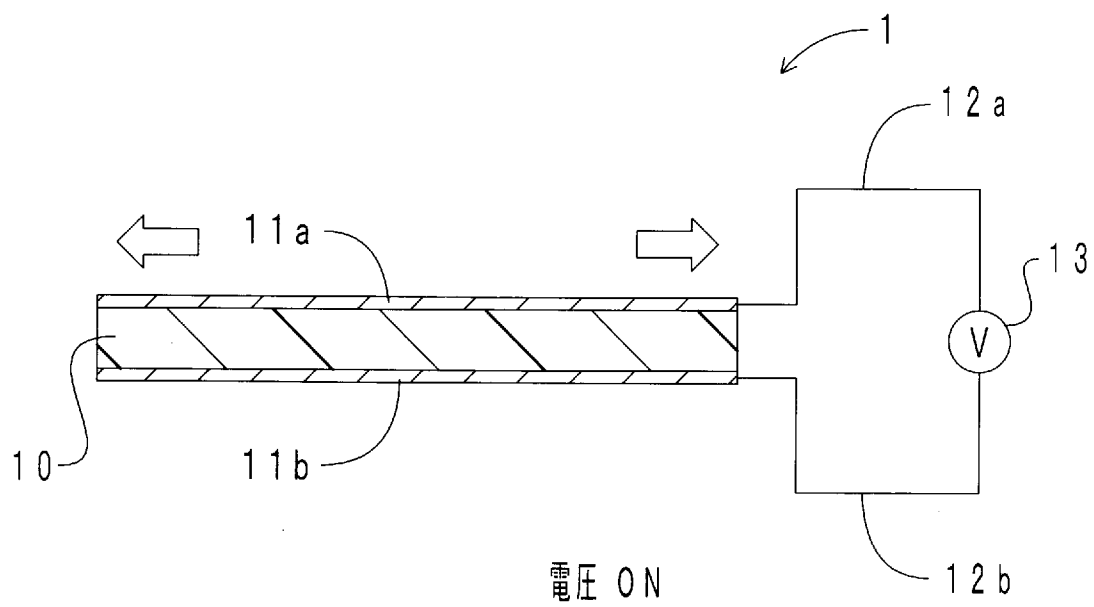


[図6]

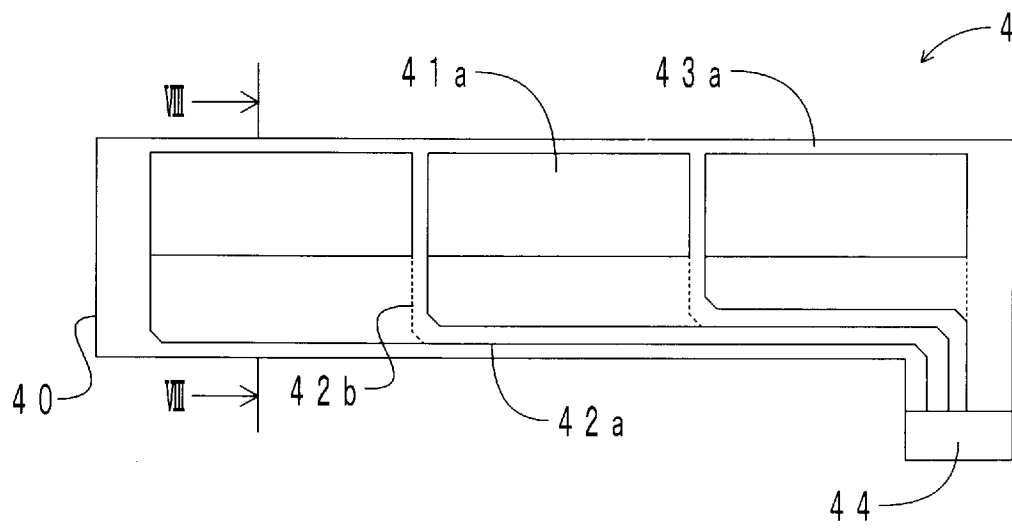
(a)



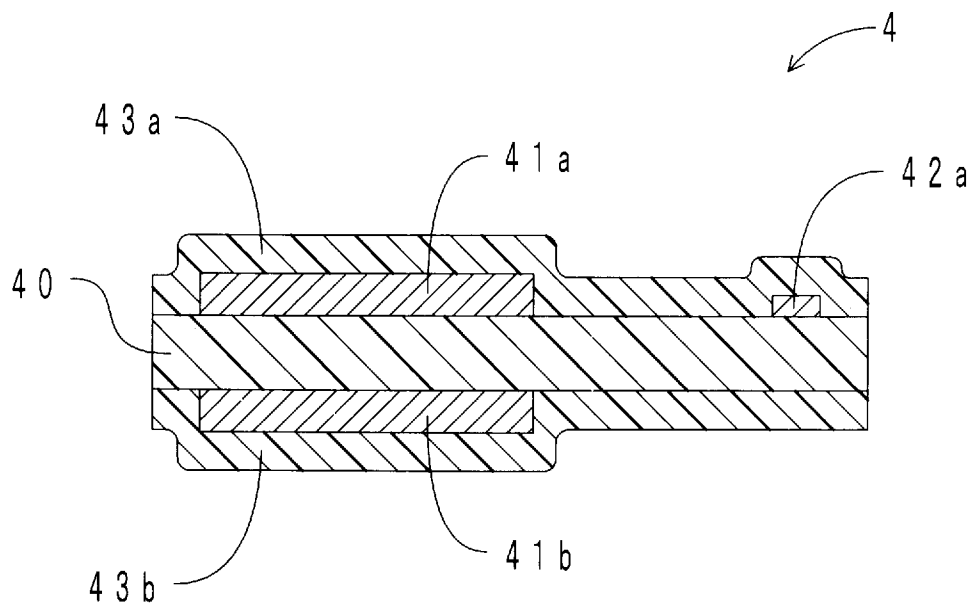
(b)



[図7]

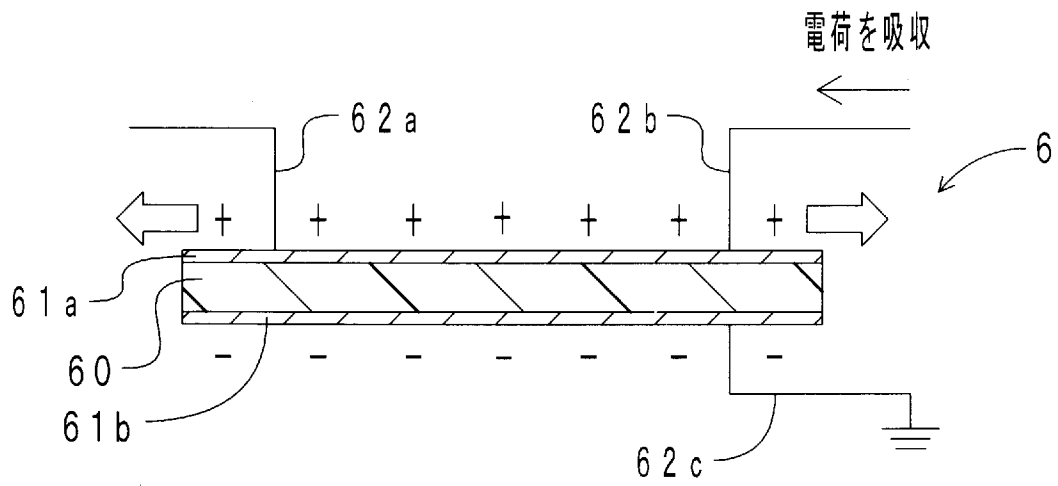


[図8]

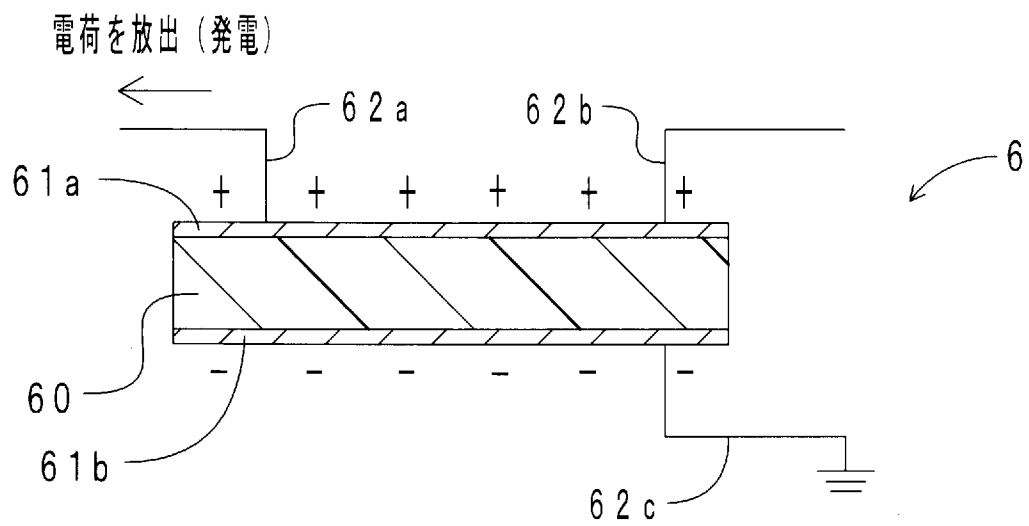


[図9]

(a) 伸長時



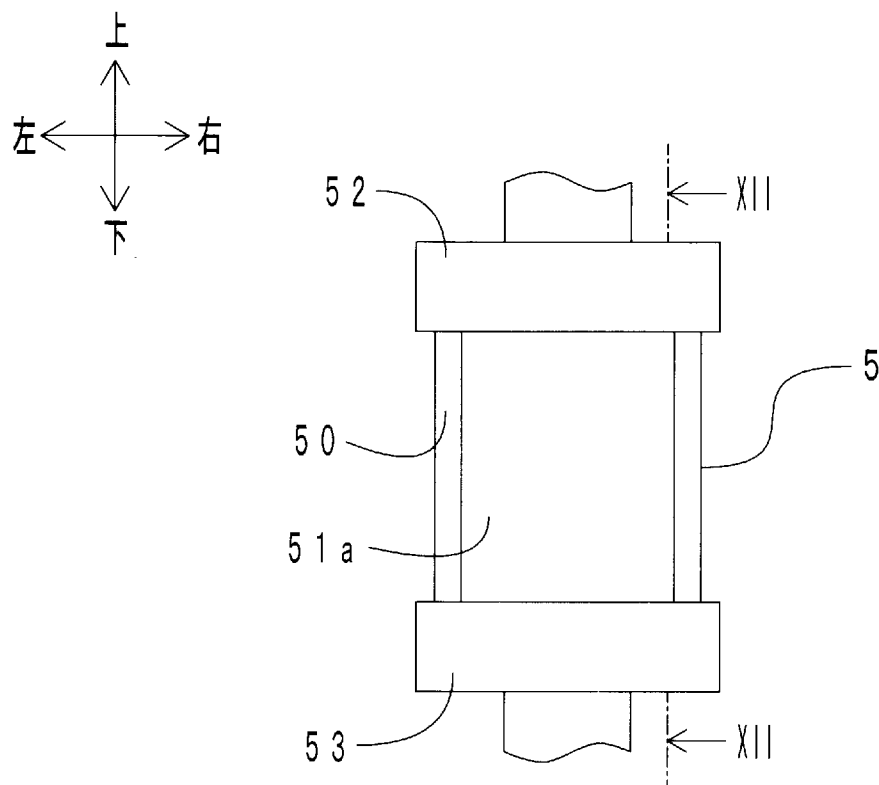
(b) 収縮時



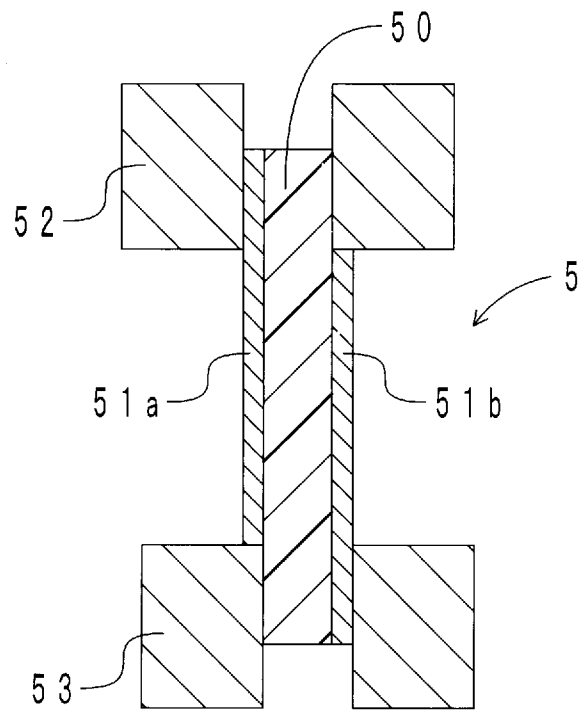
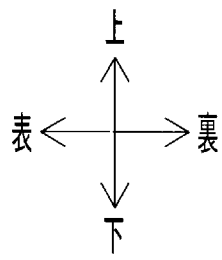
[図10]



[図11]



[図12]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/059386

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01B3/00(2006.01)i, C08L21/00(2006.01)i, H02N11/00(2006.01)i, H04R19/02(2006.01)i, H04R19/04(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01B3/00, C08L21/00, H02N11/00, H04R19/02, H04R19/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2013/058237 A1 (Sumitomo Riko Co., Ltd.), 25 April 2013 (25.04.2013), claims; paragraphs [0008] to [0048]; examples & US 2014/0004364 A1 & EP 2770510 A1 & CN 103563012 A & KR 10-2014-0007955 A	1-10
A	JP 2008-112147 A (Toray Industries, Inc.), 15 May 2008 (15.05.2008), entire text (Family: none)	1-10
A	JP 2013-60576 A (Nitto Denko Corp.), 04 April 2013 (04.04.2013), entire text & US 2014/0234617 A1 & WO 2013/027492 A1 & CN 103858179 A	1-10

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
30 April 2015 (30.04.15)

Date of mailing of the international search report
19 May 2015 (19.05.15)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/059386

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2011-201993 A (Tokai Rubber Industries, Ltd.), 13 October 2011 (13.10.2011), entire text (Family: none)	1-10
A	JP 2012-248340 A (Bando Chemical Industries, Ltd.), 13 December 2012 (13.12.2012), entire text (Family: none)	1-10

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01B3/00(2006.01)i, C08L21/00(2006.01)i, H02N11/00(2006.01)i, H04R19/02(2006.01)i, H04R19/04(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01B3/00, C08L21/00, H02N11/00, H04R19/02, H04R19/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2013/058237 A1（住友理工株式会社）2013.04.25, 特許請求の範囲, 段落 0 0 0 8 - 0 0 4 8, 実施例 & US 2014/0004364 A1 & EP 2770510 A1 & CN 103563012 A & KR 10-2014-0007955 A	1-10
A	JP 2008-112147 A（東レ株式会社）2008.05.15, 全文（ファミリーなし）	1-10

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

3 0 . 0 4 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

1 9 . 0 5 . 2 0 1 5

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

山下 裕久

4 X

3 9 5 1

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 7 7

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2013-60576 A (日東電工株式会社) 2013. 04. 04, 全文 & US 2014/0234617 A1 & WO 2013/027492 A1 & CN 103858179 A	1-10
A	JP 2011-201993 A (東海ゴム工業株式会社) 2011. 10. 13, 全文 (ファミリーなし)	1-10
A	JP 2012-248340 A (バンドー化学株式会社) 2012. 12. 13, 全文 (ファミリーなし)	1-10