

(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
2010年12月23日(23.12.2010)

PCT

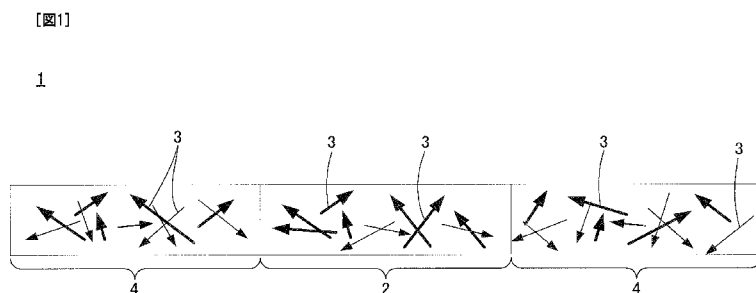
(10) 国際公開番号
WO 2010/147074 A1

- (51) 国際特許分類:
C08J 7/00 (2006.01) H01L 41/26 (2006.01)
H01L 41/193 (2006.01) C08L 101/16 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/060020
- (22) 国際出願日: 2010年6月14日(14.06.2010)
- (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 2009-142068 2009年6月15日(15.06.2009) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社村田製作所(MURATA MANUFACTURING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 Kyoto (JP). 学校法人関西大学(A SCHOOL CORPORATION KANSAI UNIVERSITY) [JP/JP]; 〒5648680 大阪府吹田市山手町3丁目3番35号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 安藤 正道 (ANDO, Masamichi) [JP/JP]; 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内 Kyoto (JP). 田實 佳郎(TAJITSU, Yoshiro) [JP/JP]; 〒5648680 大阪府吹田市山手町3丁目3番35号 学校法人関西大学システム理工学部内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 小柴 雅昭(KOSHIBA, Masaaki); 〒5430051 大阪府大阪市天王寺区四天王寺1丁目14番22号日進ビル 小柴特許事務所 Osaka (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, 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, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, 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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: PIEZOELECTRIC SHEET, METHOD FOR MANUFACTURING PIEZOELECTRIC SHEET, AND MANUFACTURING APPARATUS

(54) 発明の名称: 圧電体シート、ならびに圧電体シートの製造方法および製造装置



(57) Abstract: Disclosed is a piezoelectric sheet composed of a polylactic acid sheet and capable of exhibiting a high piezoelectricity in the thickness direction. A specific region (2) of a polylactic acid sheet (1) is heated by means of a microwave. To allow the polylactic acid sheet (1) to exhibit piezoelectricity in the thickness direction of the polylactic acid sheet (1), a high voltage is applied to the heated polylactic acid sheet (1) in the thickness direction of the polylactic acid sheet (1), and thereby the screw axes (3) of at least a part of the polylactic acid molecules are relatively aligned with the thickness direction. Then the polylactic acid sheet (1) is rapidly cooled, and thereby the polylactic acid molecules are immobilized. The same step is executed for other regions (4) of the polylactic acid sheet (1), and thereby piezoelectricity is imparted to a wide area of the polylactic acid sheet (1) in the thickness direction.

(57) 要約: ポリ乳酸シートからなるもので、厚み方向に高い圧電性を発現し得る圧電体シートを提供する。ポリ乳酸シート(1)の特定の領域(2)を、マイクロ波を用いて加熱する。ポリ乳酸シート(1)の厚み方向に圧電性を発現させるため、加熱されたポリ乳酸シート(1)の厚み方向に高電圧を印加して、少なくとも一部のポリ乳酸分子の螺旋軸(3)を相対的に厚み方向に向け、次いで、ポリ乳酸シート(1)を急冷し、ポリ乳酸分子を固定する。同様の工程を、ポリ乳酸シート(1)の他の領域(4)でも実施し、ポリ乳酸シート(1)の広い範囲にわたって、厚み方向に圧電性を付与する。



WO 2010/147074 A1

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：

圧電体シート、ならびに圧電体シートの製造方法および製造装置

技術分野

[0001] この発明は、圧電体シート、ならびに圧電体シートの製造方法および製造装置に関するもので、特に、ポリ乳酸からなる圧電シート、ならびにその製造方法および製造装置に関するものである。

背景技術

[0002] ポリ乳酸（PLA）は、図14に示すような分子構造を有している。PLAは、脱水縮合重合体であり、乳酸の環状二量体であるラクチドを開環重合することによって得られる。乳酸は不斉炭素を含むため、キラリティを有する。したがって、PLAにはL体とD体が存在し、その重合体をそれぞれL型ポリ乳酸（PLLA）、D型ポリ乳酸（PDLA）と呼ぶ。PLLAの主鎖は左巻き螺旋、PDLAの主鎖は右巻き螺旋構造をとる。微生物の力によって合成される乳酸からなるポリ乳酸はほとんどがL体であり、現在量産され利用されるPLAはPLLAである。

[0003] たとえば特許文献1および非特許文献1に記載されているように、延伸したPLAフィルムは圧電性を示す。非特許文献1によれば、PLLA結晶の点群は D_2 であり、圧電テンソルとして、図15（a）に示すような成分を有する。

[0004] PLLAは、螺旋高分子であり、螺旋軸方向（C軸方向）に大きな値の双極子を持っている。PLLAの結晶構造においては、C軸方向の双極子が交互に逆方向を向くようにパッキングされるため、マクロ的に見ると、C軸方向の双極子は互いに打ち消されて0となる。したがって、図15（b）に示すように、PLLAシートにおいて「3」軸方向に延伸が施されているとすると、この延伸された一軸配向PLLAシートの圧電テンソルは、結果的に、図15（c）のような成分となる。

- [0005] 従来の圧電性 PLLA の圧電現象は、たとえば特許文献 1 および 2 に記載されているように、図 15 (c) に示した d_{14} によるものが主体であり、その値は $10 \sim 20 \text{ pC/N}$ 程度である。この PLLA の圧電定数は高分子の中では際だって高い値である。
- [0006] 他方、現在市販されているセラミック圧電体の代表的なものである PZT は、 $d_{33} = 300 \sim 700 \text{ pC/N}$ もの値を有し、様々なアクチュエータや圧電ブザー、圧電スピーカなどに応用されている。しかしながら、PZT は、鉛を含む材料であり、環境保護の観点から無鉛の圧電材料が市場では望まれている。さらに、無機系の圧電材料はセラミックが主流であり、製造コストが高く、廃棄時には埋め立て等による処理に頼らざるを得ない。そこで、製造コストが安く、廃棄物処理の容易な高分子系の圧電材料が望まれるところであるが、PZT に匹敵する圧電定数を有するものは未だ存在しないとされている。
- [0007] PVDF (ポリフッ化ビニリデン) や PLLA は、非常に大きな圧電定数を有する高分子として有望視されている。特に PLLA は、図 14 に示したように、構成元素として C、O および H しか含まないため、焼却したとしても有害物質をもたらすことがない。また、PLLA は、加水分解—微生物分解という 2 段階の分解過程を経て、完全に水と CO_2 とに分解され得る生分解性プラスチックである。原料は現在のところトウモロコシ由来の澱粉であり、原料そのものには石油を一切使用していない。製造過程で使用されるエネルギーに起因する CO_2 を除けば、PLLA 自体は空気中の CO_2 を元々の素材としているため、分解後に空気中の CO_2 を増加させることがない。これがカーボンニュートラルと言われる所以であり、環境にやさしい材料として非常に注目されている。
- [0008] ところが、前述したように、PLLA の圧電定数は d_{14} で高々 20 pC/N 程度であり、PZT の圧電定数に比較すると極めて小さい。よって、PZT の代替材料として PLLA を用いるためには、動作時の印加電圧を非常に高くする必要があり、従来は PLLA への置き換えは非常に困難であったと言

わざるを得ない。

先行技術文献

特許文献

- [0009] 特許文献1：特開平5－152638号公報
特許文献2：特開2005－213376号公報

非特許文献

- [0010] 非特許文献1：田實佳郎，「ポリ乳酸膜の光・電気機能」，未来材料，2003年7月号，第3巻，第7号，P. 16－25

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0011] そこで、この発明の目的は、ポリ乳酸を用いながら、特に厚み方向に高い圧電定数を有する圧電体シートを提供しようとすることである。
- [0012] この発明の他の目的は、上記のような圧電体シートの製造方法および製造装置を提供しようとすることである。

課題を解決するための手段

- [0013] この発明は、ポリ乳酸からなる圧電体シートにまず向けられるものであって、上述した技術的課題を解決するため、厚み方向に圧電性を示すように、少なくとも一部のポリ乳酸分子の螺旋軸が相対的に厚み方向に向けられていることを特徴としている。
- [0014] なお、「シート」という用語と「フィルム」という用語とを、厚み寸法に応じて使い分けることもあるが、本件明細書においては、厚み寸法に関係なく、「シート」という用語を用いることにする。
- [0015] また、背景技術において説明したように、ポリ乳酸は、通常、L型ポリ乳酸として流通しているが、課題を解決するための手段として述べるポリ乳酸とは、L型ポリ乳酸、D型ポリ乳酸、あるいはそれらの混合物を概念的に含むものである。
- [0016] この発明は、また、上述した圧電体シートを製造するための方法にも向け

られる。この発明に係る圧電体シートの製造方法は、ポリ乳酸シートを用意する工程と、マイクロ波を用いてポリ乳酸シートを加熱する、加熱工程と、ポリ乳酸シートの厚み方向に圧電性を発現させるため、加熱されたポリ乳酸シートの厚み方向に高電圧を印加して、少なくとも一部のポリ乳酸分子の螺旋軸を相対的に厚み方向に向ける、高電圧印加工工程とを備えることを特徴としている。

[0017] この発明に係る圧電体シートの製造方法は、上記高電圧印加工工程の後、ポリ乳酸シートを急冷する工程をさらに備えることが好ましい。

[0018] また、この発明に係る圧電体シートの製造方法において、高電圧印加工工程は、加熱工程の少なくとも一部と同時に実施されることが好ましい。

[0019] この発明は、さらに、上述した圧電体シートを製造するための装置にも向けられる。この発明に係る圧電体シートの製造装置は、高電圧電源と、高電圧電源から供給される高電圧を、処理されるべきポリ乳酸シートの厚み方向に印加するため、ポリ乳酸シートを厚み方向に挟むように配置される対をなす高電圧印加用導体と、マイクロ波を発生するマイクロ波発生器と、マイクロ波発生器からマイクロ波を伝送する同軸線路とを備え、高電圧印加用導体は、同軸線路の内導体に接続され、マイクロ波が、ポリ乳酸シートとそれを挟む高電圧印加用導体とによって構成されるコンデンサを通過するとき、誘電損失による熱を発生するようにされていることを特徴としている。

[0020] この発明に係る圧電体シートの製造装置は、他の実施態様では、高電圧電源と、高電圧電源から供給される高電圧を、処理されるべきポリ乳酸の厚み方向に印加するため、ポリ乳酸シートを厚み方向に挟むように配置される対をなす高電圧印加用導体と、マイクロ波を発生するマイクロ波発生器と、マイクロ波発生器からマイクロ波を伝送する同軸線路と、同軸線路に接続される少なくとも1段の半同軸空洞フィルタとを備え、高電圧印加用導体の一方は、半同軸空洞フィルタの中心導体に接続され、高電圧印加用導体の他方は、半同軸空洞フィルタの外導体に接続され、マイクロ波がポリ乳酸シートと高電圧印加用導体とによって構成されるコンデンサを通過するとき、誘電損

失による熱を発生するようにされていることを特徴としている。

[0021] この発明に係る圧電体シートの製造装置において、高電圧印加用導体の一方は、複数のピン状の導体から構成され、高電圧印加用導体の他方は、平面状の導体から構成されても、あるいは、高電圧印加用導体の一方および他方が、複数のピン状の導体から構成され、これら複数のピン状の導体は過不足なく互いに対をなすようにされてもよい。

[0022] この発明に係る圧電体シートの製造装置において、マイクロ波発生器によって、互いに異なる周波数を有する複数種類のマイクロ波が発生されることが好ましい。上記複数種類のマイクロ波は、少なくとも、主に加熱に有効な周波数のものと、主にポリ乳酸の主鎖を揺するのに適した周波数のものと、主にポリ乳酸の分子同士の結合部分を破壊するのに適した周波数のものを含むことが好ましい。

[0023] この発明に係る圧電体シートの製造装置において、高電圧印加用導体は複数のピン状の導体から構成される場合、複数のピン状の導体は、複数列をなすように配置され、各列の導体の各々の位置は、隣の列の導体の各々の間に形成される間隔部分に対応するようにされていることが好ましい。さらに好ましくは、導体は断面が正方形とされ、隣り合う導体間の間隔は、各導体の断面を規定する正方形の一辺の長さと同しくされる。

[0024] この発明に係る圧電体シートの製造装置において、ポリ乳酸シートを急冷するための冷却用流体の吹き出し口が高電圧印加用導体の近傍に設けられることが好ましい。

発明の効果

[0025] バルク状態（成形後、未処理状態）のポリ乳酸シートは、長い螺旋分子が互いに絡み合った構造を有しており、たとえば厚み方向に非常に大きな電場を印加したとしても、厚み方向に圧電性が生じることはない。この発明によれば、ポリ乳酸からなる圧電体シートにおいて、上記螺旋分子の絡みをほぐし、少なくとも一部の螺旋分子について、螺旋軸が相対的に厚み方向に向けられるので、厚み方向に圧電性を示す圧電体シートを得ることができる。た

例えば、螺旋分子の10%でも、圧電体シートの厚み方向に配向させることができれば、PZTに匹敵する圧電体となり得る。もし、これを超える割合で配向させることができれば、PZTをしのぐ圧電体となり得る。また、たとえ5%の配向度であったとしても、高分子の圧電体としては驚異的に大きな圧電定数を有するものとなり得る。

[0026] 圧電アクチュエータなどによく用いられるPZTは、セラミックであり、また、鉛を含んでいるため、廃棄物としての処理が難しい。PLLAによってPZTに匹敵する圧電定数が得られれば、PZTをPLLAに置き換えることが可能となる。PLLAは、重金属を含まない単純な組成の生体高分子で、生分解性であり、かつ澱粉を原料とするため、製造時に発生するCO₂を除いて、空気中のCO₂を増加させない。さらに、製造時のCO₂は他の有機高分子の製造時の場合と比較すると極めて少ない。したがって、PZTをPLLAで置き換えることができれば、環境負荷軽減に関して絶大な効果がある。

[0027] また、ポリ乳酸は、高分子であり、PZTより高い可撓性を有しているため、アクチュエータに適用した際の変位量はPZTの場合より大きくなる。

図面の簡単な説明

[0028] [図1]この発明に係る製造方法を実施して、PLLA分子の螺旋軸3の少なくとも一部を相対的に厚み方向に配向させた状態を図解的に示す、PLLAシート1の断面図である。

[図2]この発明の一実施形態による製造装置10を示すブロック図である。

[図3]図2に示したブロック図上のPLLA加熱部17を、伝送線路型として構成した場合のより詳細な図で、PLLA加熱部17を含むPLLA処理部30を表しており、(a)はPLLA処理部30の平面図、(b)はPLLA処理部30の正面図である。

[図4] (a)は図3(b)の線A-Aに沿う断面図であり、(b)は図3(a)の線B-Bに沿う断面図である。

[図5]図4に示した一方の内導体35aを断面図で示すとともに、図4では図

示が省略されていた、筐体 3 1 および内導体 3 5 a および 3 5 b からなる伝送線路部の一方端部を図示する、図 4 (a) および (b) に対応する図である。

[図6] 図 2 に示したブロック図上の PLLA 加熱部 1 7 を、共振器型として構成した場合のより詳細な図で、PLLA 加熱部 1 7 を含む PLLA 処理部 5 0 を表しており、(a) は PLLA 処理部 5 0 の正面図、(b) は PLLA 処理部 5 0 の側面図である。

[図7] (a) は図 6 (b) の線 B-B に沿う断面図であり、(b) は図 6 (a) の線 A-A に沿う断面図である。

[図8] 図 6 および図 7 に示した PLLA 処理部 5 0 の簡略化モデルを用いて有限要素法シミュレーションを行なうことによって求められた電場の状態を示す図である。

[図9] 4 段のバンドパスとした場合の PLLA 処理部 5 0 a を示す、図 7 (b) に対応する図である。

[図10] 図 4 に示したピン導体 3 6 a の配置に関する第 1 の実施形態を示すもので、内導体 3 5 a の先端部 3 8 a の端面を PLLA シート 1 側から見て、ピン導体 3 6 a を示した図である。

[図11] 図 4 に示したピン導体 3 6 a の配置に関する第 2 の実施形態を示すもので、内導体 3 5 a の先端部 3 8 a の端面を PLLA シート 1 側から見て、ピン導体 3 6 a を示した図である。

[図12] 図 4 に示したピン導体 3 6 a の配置に関する第 3 の実施形態を示すもので、内導体 3 5 a の先端部 3 8 a の端面を PLLA シート 1 側から見て、ピン導体 3 6 a を示した図である。

[図13] 図 4 に示したピン導体 3 6 a の配置に関する第 4 の実施形態を示すもので、内導体 3 5 a の先端部 3 8 a の端面を PLLA シート 1 側から見て、ピン導体 3 6 a を示した図である。

[図14] ポリ乳酸の分子構造図である。

[図15] (a) は PLLA 結晶の圧電テンソルを示し、(b) は PLLA シー

トの延伸方向を説明するための図であり、(c)は一軸配向PLLAシートの圧電テンソルを示す。

[図16]結合した2個の乳酸分子を図解的に示す図である。

[図17]乳酸分子が脱水重合して螺旋分子となっている状態を図解的に示す図である。

[図18]図17に示した乳酸分子の螺旋軸の作用を説明するための図である。

発明を実施するための形態

[0029] PLLAは、前述の図14に示すような分子構造を有するものであるが、主鎖に、C=Oをはじめ、永久双極子を発生する分子群が存在する。乳酸分子2個が結合した分子で見れば、図16のような電気双極子が現れる。

[0030] なお、前述したように、ポリ乳酸には、L体であるPLLAと、D体であるPDLAとがあり、それらの積極的な混合物も想定されるが、本項では説明を簡単とするためにPLLAを例に挙げて説明を行なう。

[0031] 乳酸分子が脱水重合していくと、前述したように螺旋分子となる。この分子モデルを図17に示す。PLLAの螺旋構造の分子内では、各分子に生じる双極子のベクトル和が形成され、螺旋軸の方向に大きな双極子が残る。この概念図を図18に示す。

[0032] 図18に示すように、PLLA分子は10モノマーで分子が3回螺旋を巻くような10/3ヘリックス構造となる。PLLA分子における双極子を元に、分子鎖が10/3ヘリックス構造を持つと、この螺旋軸方向の双極子の大きさは1周期あたり3.5~3.7debyeとなる。

[0033] 通常、PLLA分子は、その分子量が数十万程度であり、およそ1000~3000周期により構成されている。以降、説明を簡単とするために、2000周期と仮定する。これが伸びきり鎖となって配向できるものとするれば、この長さは約100nm程度となる(通常のラメラ厚)。

[0034] このときのこの分子の双極子合計は、
(3.5~3.7)×2000、すなわち、7000~7400debyeとなる。
以降、説明を簡単とするために、これを7200debyeと仮定する。

[0035] ここで、1 debye = $3.33564 \times 10^{-30} \text{ C} \cdot \text{m}$ であるので、 $7200 \text{ debye} = 2.4 \times 10^{-26} \text{ C} \cdot \text{m}$ となる。

[0036] 2本の分子鎖が配向して平行に並んでいるとすれば、これらの分子はPLLAの螺旋半径付近まで近接分子鎖同士が接近し、PLLAの非晶、結晶構造の高次構造の相関距離から、螺旋軸間距離は $0.4 \sim 0.8 \text{ nm}$ と推定される。以降、説明を簡単とするために、この値を 0.4 nm と仮定する。

[0037] このときの分極率 P_s は、

$$P_s = 2.4 \times 10^{-26} \times 2 / (0.4 \times 10^{-9} \times 0.4 \times 10^{-9} \times 100 \times 10^{-9}) = 3.0 \text{ C/m}^2$$

となる。

[0038] ここで、マクロ的なポリマーの圧電応力定数 e は、上記分極率 P_s を用いて、以下の式(1)で表される。式(1)において、 ν はポアソン比であり、 e' はミクロ的な圧電応力定数である。

$$e_{31} = e_{31}' - \nu_{21} e_{32}' - \nu_{31} e_{33}' + (1 - \nu_{21}) P_s \quad \dots (1)$$

ここで、3軸はC軸方向とする。

[0039] 式(1)の第1項～第3項は、分子構造そのものに由来する圧電応力定数であり、非常に小さい。また、第4項は、分極率 P_s に依存し、ここで述べるPLLAの場合には、 P_s が非常に大きい。よって、式(1)は、以下の式(2)のように近似できる。

$$e_{31} \doteq (1 - \nu_{21}) P_s \quad \dots (2)$$

ポリマーの場合、通常 ν_{21} は $0.2 \sim 0.5$ 程度である。PLLAの場合、 $\nu_{21} \doteq 0.3$ であるため、

$$e_{31} = 0.7 P_s \quad \dots (3)$$

となる。

[0040] 前述のように、 $P_s = 3.0 \text{ C/m}^2$ であるので、

$$e_{31} = 0.7 \times 3.0 = 2.1 \text{ C/m}^2$$

となる。

[0041] ここで、圧電歪定数(d 定数)は、弾性コンプライアンスを S^E として、

$$d_{31} = e_{31} \cdot S^E \quad \dots (4)$$

と表される。PLLAの場合、未延伸フィルムの弾性定数はおよそ3.7 GPa、4倍延伸フィルムの弾性定数はおよそ1.8 GPaである。なお、延伸フィルムでは、C軸は延伸方向に配向する。

[0042] この発明に係るPLLAの場合、非常に配向が強いと仮定しており、このようなポリマーの弾性定数は約1 GPaと考えることができるので、

$$d_{31} = 2.1 / 1 \times 10^9 = 2100 \text{ pC/N}$$
と見積もることができる。

[0043] 圧電定数 d_{33} と d_{31} との関係は、ポアソン比0.3のとき、ほぼ、 $d_{33} = 2d_{31}$ と考えてよい。したがって、

$$d_{33} = 2100 \times 2 = 4200 \text{ pC/N}$$

となる。

[0044] 以上のように、PLLAの螺旋分子のC軸（螺旋軸）に沿う双極子を厚み方向に完全に配向できれば、PLLAの圧電定数は、数値的範囲を考慮すれば、1000～5000 pC/Nもの値となる可能性があるが、未だにこれを実現した例はない。

[0045] たとえば、螺旋軸がフィルムの厚み方向に垂直になるように配向し、本来のPLLAの持つポテンシャルの10%程度、つまり、C軸に沿う双極子が交互にパッキングされる状態を10%程度崩してやれば、100～500 pC/Nもの d_{33} （この場合、フィルムの厚み方向を3軸とする。）の値が生じると考えられ、PZTの持つ圧電定数にほぼ匹敵する値が得られることになる。

[0046] 上記のようなPLLAシートは、次のようにして製造することができる。

[0047] 図1を参照して説明すると、未処理状態のPLLAシート1の、たとえば0.01～1 mm²程度の非常に狭い領域2にマイクロ波を印加する。これにより、電場の交番が双極子に作用して強制的にPLLA分子が振動させられる。図1において、PLLA分子の螺旋軸3が矢印によって図解的に示され、その矢印の方向は配向の方向を示している。上述した振動の結果、加熱され、PLLA分子が動きやすい状態になるとともに、マイクロ波振動により

分子鎖同士の絡み合いがほぐれた状態が実現される。

- [0048] 上記の状態において、上記所定の領域2において、PLLAシート1の厚み方向に強電場を印加すれば、厚み方向に圧電性を示すように、少なくとも一部のPLLA分子の螺旋軸3が相対的に厚み方向に配向する。この領域2での配向状態が図1に示されている。
- [0049] 図1からわかるように、領域2においてPLLAシート1が厚み方向に圧電性を示すためには、双極子配向が互いに打ち消されない方向で、すべてのPLLA分子の螺旋軸3が厚み方向に配向している必要はない。一部のPLLA分子のみの螺旋軸3が厚み方向に配向していれば十分である。また、厚み方向に配向する螺旋軸3は、PLLAシート1の主面方向に対して垂直な方向（90度）を必ずしも向いている必要はない。主面方向に対して、たとえば5～10度というような角度であってもよく、相対的に厚み方向にさえ向いていればよい。
- [0050] 次に、上述のように、強い電場を印加した後、PLLAシート1の領域2が急冷され、PLLA分子が固定される。
- [0051] 以上のような処理が、上記領域2の隣の領域4においても実施されるように、PLLAシート1の位置をずらしながら、繰り返される。このようにして、PLLAシート1の、広い面積において、相対的に厚み方向に螺旋軸3が配向した状態が作り出され、それによって、PLLAシート1からなる高圧電定数を有する圧電体シートが得られる。
- [0052] 前述したように印加されるマイクロ波としては、単一の周波数のマイクロ波のみではなく、少なくとも、主に加熱に有効な周波数を有するものと、主に主鎖を揺るのに適した周波数を有するものと、主に分子同士の結合部分を破壊するのに適した周波数を有するものというように、互いに異なる複数の周波数をそれぞれ有する複数種類のマイクロ波をダイプレクシングもしくはミキシング（変調）したものとすることが好ましい。マイクロ波の各周波数および強度は、実験により適宜決定すればよい。
- [0053] ここで注意する点は、領域2は微小領域であることが特に好ましいという

ことである。領域2の面積を大きくするという事は、加熱領域を広げるといふことに他ならない。加熱領域を広くするとその領域に含まれる高分子が相互に作用して球晶と呼ばれる結晶が成長しやすくなる。球晶とは放射対称に球状成長する結晶である。球晶自体は無極性となるため上述したような配向は達成されない。したがって、球晶の生成を促進しないような微小領域の配向操作が必要となる。領域は小さいほど良いと考えられるが、ここに述べる実用化の観点からして、領域を円とすれば、その面積はおよそ0.01~1mm²の範囲となる。この大きさは、PLLAシート1の厚みやその分子量、PLLAシート1に添加物が分散されている場合には、その種類、その大きさによって変動するものである。

[0054] 上記の微小領域を加熱する方法としてはレーザースポットによる加熱等も考えられる。しかしながら、PLLAの螺旋軸を配向させるための強電場を印加するのに必要な電極が構成できない、もしくはこの電極が邪魔となってレーザースポットが所定の位置に照射されないという問題点がある。これに対し、ここで述べるマイクロ波による微小領域の加熱は、マイクロ波の照射と直流電場の印加が同時に行なえるという点で非常に優れている。

[0055] 図2は、この発明の一実施形態による圧電体シートの製造装置10を示すブロック図である。この製造装置10では、圧電体シートを製造するため、用意されたPLLAシート1に所定の処理が施される。

[0056] PLLAシート1を構成するPLLAの分子を振動させるためのマイクロ波は、シグナルジェネレータ11および12により発生させる。図2では、2個のシグナルジェネレータ11および12を用いる例を示したが、投入するマイクロ波の種類数に応じて適宜数を変更すればよい。発生させるマイクロ波の周波数は、PLLAを主に加熱させるための周波数、主に分子の絡みをほぐすための周波数、主に分子同士の結合（部分的な結晶化）を切るための周波数などである。これらの周波数は、素材となるPLLAの分子量、D体の混入割合、結晶化度、配向度、フィラーの配合量等により異なるため、利用する母材に応じて初期実験を行ない、最適な周波数と投入レベルを決定

すればよい。

[0057] それぞれの周波数を有するマイクロ波の投入レベルの割合は、シグナルジェネレータ 11 および 12 のそれぞれの出力レベルにより決定される。シグナルジェネレータ 11 および 12 から発生させられた互いに異なる周波数をそれぞれ有する複数種類のマイクロ波は、ミキサ 13 においてミキシングされた後、アンプ 14 へと伝送される。

[0058] なお、互いに異なる周波数を有する複数種類のマイクロ波のミキシングのために、図 2 に示した製造装置 10 では、ミキサ 13 が用いられたが、ミキサ 13 の代わりにダイプレクサが用いられてもよい。また、シグナルジェネレータを増設して、トリプレクサ、クワッドプレクサ等を用いてもよい。

[0059] アンプ 14 で増幅されたマイクロ波は、サーキュレータ 15 を通過し、次いで、バイアスティー 16 を通過し、PLL A 加熱部 17 へ至る。サーキュレータ 15 は、PLL A 加熱部 17 の不整合による反射電力がアンプ 14 に戻って、アンプ 14 が破損することを防ぐために設けられている。PLL A 加熱部 17 の不整合による反射電力は、サーキュレータ 15 により分岐され、カップラ 21 を通過してアッテネータ 22 に至り消費される。カップラ 21 にはパワーメータ 23 が接続されており、反射電力を監視するようにされている。

[0060] PLL A 加熱部 17 は、ここを直流電流が通過しないようにされている。PLL A 加熱部 17 の構成方法としては、伝送線路型や共振器利用型が考えられる。図 2 において、PLL A 加熱部 17 は、単純にコンデンサとして簡略的に図示されたに過ぎず、実際には、マイクロ波の等価回路が形成されるものである。いずれの場合も、PLL A 加熱部 17 は、電力の通過経路において、回路的に PLL A シート 1 を介してコンデンサが形成される部分を有しており、これにより直流電流が通過しないようにされている。PLL A 加熱部 17 に関しては、詳細図を図 3 以降に示す。図 3 以降を参照しての説明は後述する。

[0061] PLL A 加熱部 17 は、上述したように、電力の通過経路において、回路

的にPLL Aシート1を介してコンデンサが形成される部分を有している。マイクロ波がこの部分を通過するとき、その誘電損失により一部が熱に変換される。PLL Aの誘電正接 ($\tan \delta$) は0.01~0.012であり(たとえば、特開2002-358829号公報参照)、これを誘電体として用いたコンデンサにおいても、 $\tan \delta$ に応じた発熱が必ず発生する。加えて、電気双極子が揺すられることによる摩擦による発熱も生じる。

[0062] PLL A加熱部17を通過したマイクロ波は、バイアスティー18を通過し、次いで、カップラ24を通過して、アッテネータ25に至り消費される。カップラ24にはパワーメータ26が接続されており、通過電力を監視するようにされている。

[0063] サーキュレータ15からアッテネータ25に至る通過損失を予め測定しておき、出力電力から、パワーメータ23で観測される反射電力とパワーメータ26で観測される通過電力と予め測定した通過損失とを減じることにより、PLL A加熱部17で消費されている電力を間接的に把握することができる。PLL A加熱部17で消費されている電力は、PLL Aシート1で熱に変換されているエネルギーであり、この値をもってPLL Aシート1がどのぐらいの温度に加熱されているかをおおよそ知ることができる。正確に知るためには赤外線非接触温度計などを用いて、PLL Aシート1の温度を直接測定すればよい。

[0064] PLL Aの融点はおよそ170°C付近にあるが、分子の配向制御を行なうにはおよそ140°C~150°C位が適していることが実験的に確かめられている。ただし、この温度は、PLL Aの分子量や、添加物、分子の末端基の処理に依存するため、実際に用いるPLL Aシート1に応じて適宜選択する。

[0065] バイアスティー16および18には、高圧直流電源20およびスイッチ19が接続されている。PLL Aシート1が配向に適する温度にまで加熱された状態で、スイッチ19をオンにし、PLL Aシート1に高電圧を印加する。マイクロ波により揺すられている双極子の少なくとも一部は、この高電圧

による電場により、相対的に厚み方向（電場の方向）に配向する。この電圧の大きさや印加時間についても、分子量や添加物、分子の末端基の処理に依存するため、実際に用いるPLLAシート1に応じて適宜選択する。

[0066] 所定の時間、マイクロ波および高電圧を印加し、これらを停止すると同時にPLLAシート1を強制的に急冷して分子を固定する。尤も、冷却のタイミングは、必ずしもマイクロ波および高電圧の停止直後である必要はなく、冷却開始後にマイクロ波および高電圧を停止してもよく、マイクロ波を停止後に冷却を開始し、続いて高電圧を停止するという順序でも構わない。

[0067] 次に、PLLA加熱部17について説明する。

[0068] 図3は、図2に示したブロック図上のPLLA加熱部17を、伝送線路型として形成した場合のより詳細な図で、PLLA加熱部17を含むPLLA処理部30を表している。ここで、図3(a)はPLLA処理部30の平面図、図3(b)はPLLA処理部30の正面図を示している。また、図4(a)は図3(b)の線A-Aに沿う断面図であり、図4(b)は図3(a)の線B-Bに沿う断面図である。

[0069] PLLA処理部30は筐体31を有し、筐体31にはPLLAシート1を挿入するための孔33および34が設けられている。孔33および34は、図4(b)によく示されているように、筐体31の上下の壁部をそれぞれ貫通するように設けられている。PLLAシート1は、これら上下の孔33および34を挿通した状態で処理される。

[0070] 筐体31には、それぞれ対をなすガイドローラ32aおよび32bならびにガイドローラ32cおよび32dが設けられており、PLLAシート1は、これらガイドローラ32a~32dによって保持されている。ガイドローラ32a~32dを回転させることにより、PLLAシート1は、図3(b)および図4(b)での上下方向に移動させることができる。図4(b)に示したガイドローラ32a~32dの各々のまわりの矢印およびPLLAシート1の上方の矢印は、ガイドローラ32a~32dの回転方向およびPLLAシート1の移動方向の一例を示している。なお、ガイドローラ32a~

32dの駆動部については、図示を省略している。

- [0071] 筐体31は、金属からなり、内部に空洞を形成しながら、同軸線路の外導体を構成している。筐体31を構成するために用いられる金属としては、銅、アルミ、真鍮、鉄、ステンレス鋼等が好適であり、必要に応じて、これらにめっきが施される。鉄またはステンレス鋼を用いる場合には、導電率が良くないので、伝送損失を考慮して、銅めっきまたは銀めっきを施すことが好ましい。
- [0072] 筐体31の空洞内には、同軸線路の内導体（中心導体）としての内導体35aおよび35bが、インシュレータ37aおよび37bによって保持された状態で配置されている。図4において、内導体35aおよび35bは断面を表示していない。インシュレータ37aおよび37bは、誘電率の低い樹脂で形成されており、特にポリテトラフルオロエチレンが好適な材料である。
- [0073] 内導体35aおよび35bは、各々の先端部38aおよび38bが互いに対向しており、これら先端部38aおよび38bは、図4(a)によく示されているように、他の部分に比べて広くなった形状を有している。これら広くなった形状を有する先端部38aおよび38bには、それぞれ、高電圧印加用導体としての複数のピン導体36aおよび36bが過不足なく互いに対をなすように設けられている。
- [0074] 筐体31ならびに内導体35aおよび35bから構成される同軸線路は、その軸線方向での中央部であって、空洞が広くなった部分を除いて、特性インピーダンス50Ωで形成されており、高周波機器とのマッチングが取りやすくされている。また、筐体31の空洞は、その軸線方向中央部において、テーパを形成しながら拡大され、かつ、内導体35aおよび35bについても、空洞のテーパに応じてテーパを形成しながら、先端部38aおよび38bが広くされているため、インピーダンス変換が円滑に行なわれ、インピーダンス不整合による電力反射が極力発生しにくい構造とされている。
- [0075] 上述したように、PLLA処理部30は伝送線路型とされているため、非

常に広帯域の周波数に対して応用が可能で、しかも設計、製作が比較的簡単であるという特徴を持つ。

[0076] ピン導体36aの各々とピン導体36bの各々とは、互いに対向しかつ互いに同一軸線上に位置するように位置合わせされている。PLLAシート1は、互いに対向するピン導体36aおよび36bによって挟持されている。そして、互いに対向するピン導体36aおよび36bの各対間で微小なコンデンサを形成するようにされている。ピン導体36aおよび36bの各々の直径は0.1mm~1mm程度とされており、ピン導体36aおよび36bの隣り合うもの同士の間隔は、ピン導体36aおよび36bの各々の半径以上とされている。ピン導体36aおよび36bの本数は適宜選択可能である。ピン導体36aおよび36bの各々の直径はPLLAシート1に球晶が形成されない程度にする必要があるため、小さい方が好ましい。

[0077] ここでは、PLLAシート1を挟持するピン導体36aおよび36bは、PLLAシート1の両側で対として構成されている例を示したが、一方をピン導体として、他方を平面状導体としても構わない。このような形は後述のPLLA処理部50の説明の中で例示する。

[0078] なお、図4に示すように、ピン導体36aおよび36bが両方で対とされていれば、PLLAシート1における、より極小な範囲の加熱に適している。これに代えて、一方をピン導体として、他方を平面状導体とした場合には、装置の組立が非常に簡単であるという利点をもたらされる。

[0079] 内導体35aおよび35bならびにピン導体36aおよび36bは、筐体31と同様、金属から構成される。ここで用いられる金属としては、銅、アルミニウム、真鍮、鉄、ステンレス鋼、インバー、42アロイ合金等が好適であり、必要に応じて、これらにめっきが施される。鉄、ステンレス鋼、インバーまたは42アロイ合金を用いる場合には、導電率が良くないので、伝送損失を考慮して、銅めっきや銀めっきを施すことが好ましい。

[0080] また、マイクロ波を伝送することにより、PLLAシート1が加熱されるが、内導体35aおよび35bならびにピン導体36aおよび36bの熱伝

導率が高いと、PLL Aシート1の熱が逃げてしまうため、これら内導体35 aおよび35 bならびにピン導体36 aおよび36 bについては、鉄、ステンレス鋼、インバー、42アロイ合金等の熱伝導率の比較的低い材料を用いて構成することが好適である。特に、ピン導体36 aおよび36 bについては、熱膨張も考慮して、インバーまたは42アロイ合金から構成することが好ましい。

[0081] なお、上記ピン導体36 aおよび36 bの好ましい配置例については、図10ないし図13を参照して後述する。

[0082] 上述のように、ピン導体36 aおよび36 bによってPLL Aシート1が挟持された状態で、マイクロ波を入力してPLL Aシート1を局部的に加熱し、かつ高電圧を印加して、少なくとも一部のPLL A分子の螺旋軸を相対的に厚み方向に配向させた後、急冷することにより、PLL A分子を固定することが行なわれる。

[0083] 急冷時には、たとえば、筐体31の内部空洞に冷却用ガスを吹き込むようにされる。冷却用ガスを吹き込むための通路は、図3および図4には図示されていないが、内導体35 aおよび35 bの内部に冷却用ガスが流れる通路を設け、冷却時には、ピン導体36 aおよび36 bの付近に設けられた吹き出し口から、直接、PLL Aシート1に向けて冷却用ガスが噴射されるようにすることが好ましい。冷却するための構造の具体例については、図5を参照して後述する。

[0084] 内導体35 aおよび35 bは、それぞれ、図4(a)に矢印39および40で示す方向に移動可能とされており、処理終了後に、内導体35 aおよび35 bを移動させて、PLL Aシート1に対する挟持を解除し、ガイドローラ32 a~32 dを回転させて、PLL Aシート1を所望量移動させる。PLL Aシート1の移動後に再び内導体35 aおよび35 bを移動させて、ピン導体36 aおよび36 bにてPLL Aシート1を挟持し、上述したマイクロ波加熱、高電圧印加、急冷のプロセスを実施する。これを繰り返すことにより、広い範囲にわたって、相対的に厚み方向に螺旋分子軸が配向した高圧

電定数のPLLAシート1を得ることができる。

- [0085] 次に、図5を参照して、PLLAシート1を冷却するために適した構造について説明する。図5は、図4に示した一方の内導体35aを断面図で示すとともに、図4では図示が省略されていた、筐体31および内導体35aおよび35bからなる伝送線路部の一方端部を図示している。
- [0086] 図5に示すように、内導体35aは内部が空洞とされ、ピン導体36aが設けられている先端部38aの端面には、ピン導体36aの各位置の近傍に複数の吹き出し口41が設けられている。マイクロ波による電流は、表皮効果により内導体35aの表層を流れるため、内導体35aの内部の空洞は、マイクロ波の伝送電流には影響しない。上記内導体35aは、別の内導体42に電氣的に連結され、内導体42側から伝送される電力を反射することなく伝えるようにされている。内導体42が位置している同軸線路についても、特性インピーダンスが50Ωとされている。
- [0087] 内導体35aの他方端には、たとえばポリテトラフルオロエチレンからなるチューブ43が挿入されている。冷却用ガスは、矢印44の方向からチューブ43へと導入され、次いで、吹き出し口41から矢印45の方向へ吹き出されることによって、ピン導体36aおよびPLLAシート1（図5では図示を省略）を冷却する。冷却用ガスとしては、HFC（-134a）またはLPGが好適である。なお、冷却用ガスに代えて、液体を用いてもよい。液体としては、たとえば液体窒素が好適に用いられ、この場合、液体窒素は吹き出し口41から噴霧されることが好ましい。
- [0088] 上述したような冷却のための構造は、内導体35a側のみに設けられても、他方の内導体35bにのみ設けられても、さらには、内導体35aおよび35bの双方に設けられてもよい。
- [0089] 上述のような冷却のための構造によれば、PLLAシート1を効率良く冷却することができるとともに、冷却用ガスまたは液体を無駄なく用いることができる。
- [0090] 次に、伝送線路型とは異なった形式のPLLA加熱部17について説明す

る。

[0091] 図6は、図2に示したブロック図上のPLLA加熱部17を、共振器型として構成した場合のより詳細な図で、PLLA加熱部17を含むPLLA処理部50を表している。ここで、図6(a)はPLLA処理部50の正面図、図6(b)はPLLA処理部50の側面図を示している。また、図7(a)は図6(b)の線B-Bに沿う断面図であり、図7(b)は図6(a)の線A-Aに沿う断面図である。

[0092] PLLA処理部50は筐体51を有し、筐体51にはPLLAシート1を挿入するための孔55aおよび55bが設けられている。なお、図7(a)に示すように、孔55aが設けられた壁面と対向する壁面には孔55aと同様の孔が設けられている。図示していないが、孔55bが設けられた壁面と対向する壁面にも同様に孔55bと同様の孔が設けられている。PLLAシート1は、図7(a)によく示されているように、孔55aとそれに対向する孔とを挿通するように、また、孔55bとそれに対向する孔とを挿通するように配置される。図7においては、前述の図3および図4に示したPLLA処理部30において設けられたガイドローラ32a~32dに対応するガイドローラの図示を省略している。

[0093] 筐体51は導電率の良い金属から構成されている。用いられる金属としては、銅、アルミニウム、真鍮、鉄、ステンレス鋼が好適であり、必要に応じて、これらにめっきが施される。鉄またはステンレス鋼を用いる場合には、導電率が良くないので、挿入損失を考慮して、銅めっきまたは銀めっきを施すことが好ましい。

[0094] 筐体51は、電磁波をシールドする役目を担っており、内部の空洞が共振空洞となる。PLLA処理部50は基本的に半同軸空洞フィルタをなす。筐体51は半同軸空洞フィルタの外導体となる。図6および図7に示したものは、2段のバンドパスフィルタを構成している。

[0095] 筐体51の外側には、フィルタに電力を供給する入出力部としてコネクタ52aおよび52bが設けられている。このようなバンドパスフィルタは基

本的に対称形状であるため、コネクタ 5 2 a および 5 2 b のどちらを入力としても出力としても構わない。ここでは便宜上、コネクタ 5 2 a を入力側、コネクタ 5 2 b を出力側として説明する。

- [0096] コネクタ 5 2 a の中心導体には金属線からなる入力リード 5 6 a の一方端が接続されている、入力リード 5 6 a の他方端は中心導体 5 7 a と接続されている。中心導体 5 7 a の一方端には複数のピン導体 5 8 a が設けられている。ピン導体 5 8 a の先端に対向するように、平面状導体を与えるベース電極 6 0 a が設けられている。ピン導体 5 8 a の先端とベース電極 6 0 a との間にはわずかな隙間があり、ここに P L L A シート 1 が挟持され、この部分は等価回路的にコンデンサを形成している。中心導体 5 7 a の他方端は、所定の距離を隔てて、周波数調整ねじ 5 3 a の先端と対向している。
- [0097] 詳細な説明は省略するが、コネクタ 5 2 b に関連して設けられる、出力リード 5 6 b、中心導体 5 7 b、ピン導体 5 8 b、ベース電極 6 0 b、および周波数調整ねじ 5 3 b は、図 7 (b) から明らかなように、それぞれ、上述したコネクタ 5 2 a に関連して設けられる、出力リード 5 6 a、中心導体 5 7 a、ピン導体 5 8 a、ベース電極 6 0 a、および周波数調整ねじ 5 3 a と同様な構成および配置とされている。
- [0098] 中心導体 5 7 a と中心導体 5 7 b との中間付近には結合調整ねじ 5 4 が挿入されている。
- [0099] 図示した構成では、P L L A シート 1 を挟持しているのは、ピン導体 5 8 a とベース電極 6 0 a、あるいはピン導体 5 8 b とベース電極 6 0 b である。前述の図 3 および図 4 に示した P L L A 処理部 3 0 の場合と同様、ベース電極 6 0 a および 6 0 b に代えてピン導体を配置して、ピン導体 5 8 a および 5 8 b の各々と対となるような構造としても構わない。
- [0100] P L L A 処理部 5 0 においては、周波数調整ねじ 5 3 a および 5 3 b、結合調整ねじ 5 4、入力リード 5 6 a、ならびに出力リード 5 6 b を調整することにより、元々の電気設計を逸脱しない範囲内で、フィルタを所望の特性に調整することができる。

- [0101] 中心導体57aおよび57b、周波数調整ねじ53aおよび53b、結合調整ねじ54、ベース電極56aおよび56b、ならびにピン導体58aおよび58bは、金属から構成されている。筐体51の場合と同様に、ここで用いられる金属としては、銅、アルミニウム、真鍮、鉄、ステンレス鋼が好適であり、必要に応じて、これらにめっきが施される。鉄またはステンレス鋼を用いる場合には、導電率が良くないので、挿入損失を考慮して、銅めっきまたは銀めっきを施すことが好ましい。
- [0102] 中心導体57aおよび57bは、図示していないが、低誘電率の絶縁性素材によって筐体51に固定されている。低誘電率素材として、ポリテトラフルオロエチレンが好適である。
- [0103] ピン導体58aおよび58bの構成に関しては、前述したPLLA処理部30の場合と同様の説明となるため、ここでは説明を省略する。
- [0104] ベース電極60aおよび60bには、図7(a)に示すように、外側に向く開口を有する凹部(座繰り部)61が形成され、この凹部61の底面壁62は非常に薄く形成されている、底面壁62の厚みは、具体的には0.3~0.8mm程度であることが好ましい。ベース電極60aおよび60bは、熱伝導率の良い金属で形成するのが好ましく、たとえばアルミニウム、銅が好適である。
- [0105] ピン導体58aおよび58bとベース電極60aおよび60bとによって挟持された、PLLAシート1は、マイクロ波を入力することにより加熱される。前述したように、加熱されたPLLAシート1には、高電圧を印加した後、急冷が必要である。凹部61の底面壁62に直接冷却ガスを吹き付けることによって、底面壁62は瞬時に冷却され得る。このとき、底面壁62が熱伝導率の良い金属から構成され、その厚みが十分に薄いと、PLLAシート1もほぼ同時に冷却されることとなる。冷却ガスに関しては前述と同様である。
- [0106] このPLLA処理部50は、共振器型とされているために、PLLAシート1に加わる電界強度が伝送線路型に比較して格段に高くなり、中心周波数

2.4 GHzで設計したフィルタでは、電界強度は伝送線路型の100倍にもなる。

[0107] 図8は、PLL A処理部50の簡略化モデルを用いて有限要素法シミュレーションを行なった結果を示している。図8において、矢印は電場ベクトルを示しており、その大きさが電場の強さを示している。PLL Aシート1を挿入する位置に非常に大きな電場ベクトルがあることがわかる。よって、このPLL A処理部50によれば、マイクロ波による加熱の際に、伝送線路型と比較してアンプの出力を下げるのが可能である。

[0108] 前述したように、図6および図7に示したPLL A処理部50は、2段のバンドパスフィルタを構成している。半同軸共振器を1つだけ使用した1段のフィルタとしても使用可能であるが、この場合には、共振周波数を含めて極近傍の周波数のみを通過するバンドパスフィルタとなるため非常に狭帯域であり挿入できる周波数が限られる。逆に、フィルタの段数を増やすことも可能であり、必要に応じて2段~10段程度のフィルタとすることができる。尤も、フィルタの段数に制限はないが、作製の手間を考えると10段までとするのが経験上好ましい。比帯域幅4%程度のフィルタであれば、4段~8段程度の段数で比較的容易に作製することができる。このときの通過帯域の中心周波数を2GHzとすれば、帯域幅70MHzのバンドパスフィルタとなり、複数の周波数を同時に印加できる装置とすることができる。

[0109] 図9は、PLL A処理部を4段のバンドパスとした場合の例を示している。図9は、図7(b)に対応する図である。図9において、図7(b)に示した要素に相当する要素には同様の参照符号を付し、重複する説明は省略する。図9に示したPLL A処理部50aは、中心導体57aおよび57bに加えて、中心導体57cおよび57dをさらに備え、周波数調整ねじ53aおよび53bに加えて、周波数調整ねじ53cおよび53dをさらに備えている。また、3個の結合調整ねじ54a、54bおよび54cを備えている。

[0110] 図9に示したPLL A処理部50aでは、PLL Aシート1に対するマイ

クロ波加熱部は、必ず入力段、もしくは出力段、またはその両方に設けることができる。多段のバンドパスフィルタでは、入出力段に比較的大きなエネルギーが蓄積されるため、この部分の電界強度が大きい。また、高電圧は、バイアスティー１６および１８（図２参照）を介して印加されるため、伝送線路（コネクタ）の中心導体から直接導体で接続される入出力段では高電圧の印加を簡単に行なうことができる。

[0111] なお、ここではコムライン型の４段の半同軸空洞フィルタの例について示したが、一般的によく知られているように、インターディジタル型にすることにより、非常に広帯域のフィルタとすることもできる。

[0112] 次に、図４に示したピン導体３６aおよび３６bの好ましい配置に関するいくつかの実施形態について、図１０ないし図１３を参照して説明する。図１０ないし図１３は、図４に示した一方の内導体３５aの先端部３８aの端面をＰＬＬＡシート１側から見て、ピン導体３６aを示した図である。なお、これらの図面において、前述の図５に示した吹き出し口４１の図示は省略されている。また、他方のピン導体３６bについては、図示および説明を省略するが、図示したピン導体３６aと実質的に対称の配置となっている。

[0113] まず、図１０を参照して、複数のピン導体３６aが、互いの間に所定の間隔を隔てながら１列に配置されている。

[0114] 図１０に示した実施形態によれば、圧電性発現のための一連の処理（加熱、高電圧印加および冷却）が完了した後に、ＰＬＬＡシートを、所定の距離ずつ、上下方向にずらしたり、左右方向にずらしたりし、この状態で、圧電性発現のための一連の処理を再び実施し、このような操作を繰り返すことにより、ＰＬＬＡシートの広い範囲にわたって、圧電性発現のための処理が施される。

[0115] 次に、図１１に示した実施形態では、複数のピン導体３６aが、互いの間に所定の間隔を隔てながら２列をなして配置されている。そして、各列のピン導体３６aの各々の位置は、他の列のピン導体３６aの各々の間に形成される間隔部分に対応するようにされている。

- [0116] 図 1 1 に示した実施形態によれば、圧電性発現のための一連の処理が完了した後に、PLLAシートを距離 d だけ上方（または下方）にずらし、この状態で、圧電性発現のための一連の処理を再び実施し、このような操作を繰り返すことにより、PLLAシートの広い範囲にわたって、圧電性発現のための処理が施される。
- [0117] 次に、図 1 2 に示した実施形態では、複数のピン導体 3 6 a が、互いの間に所定の間隔を隔てながら 4 列をなして配置されている。そして、各列のピン導体 3 6 a の各々の位置は、隣の列のピン導体 3 6 a の各々の間に形成される間隔部分に対応するようにされている。
- [0118] 図 1 2 に示した実施形態によれば、圧電性発現のための一連の処理が完了した後に、PLLAシートを距離 d だけ上方（または下方）にずらし、この状態で、圧電性発現のための一連の処理を再び実施し、次は、PLLAシートを距離 d の 3 倍だけ上方（または下方）にずらし、この状態で、圧電性発現のための一連の処理を再び実施し、その次は、PLLAシートを距離 d だけ上方（下方）にずらし、この状態で、圧電性発現のための一連の処理を再び実施する。以後、ずらす操作を距離 d の 3 倍で行なう場合とずらす操作を距離 d で行なう場合とを交互に実施しながら、上述のような操作を繰り返すことにより、PLLAシートの広い範囲にわたって、圧電性発現のための処理が施される。
- [0119] より広い面積にわたって圧電性発現のための処理を一括して行なえる点で、図 1 2 に示した実施形態が最も優れており、次に優れているのは図 1 1 に示した実施形態である。
- [0120] 内導体 3 5 a および 3 5 b の寸法ならびにピン導体 3 6 a および 3 6 b の横方向および縦方向での配置数は、設計に応じて適宜選択すればよい。また、ピン導体 3 6 a および 3 6 b は、必ずしも断面が円形である必要はなく、楕円、長円、正方形、多角形等であってもよい。
- [0121] 図 1 3 には、ピン導体 3 6 a の断面が正方形とされた例が示されている。図 1 3 に示したピン導体 3 6 a の配置は、図 1 2 に示したものと実質的に同

様であるが、隣り合うピン導体 36 a 間の間隔は、各ピン導体 36 a の断面を規定する正方形の一辺の長さと同しくされている。なお、図 13 では、ピン導体 36 a の位置をわかりやすくするため、ピン導体 36 a に網掛けが施されている。

[0122] 図 13 に示した実施形態では、PLLA シートに対する圧電性発現のための処理を実施するにあたっては、図 12 に示した実施形態の場合と同様の操作が実施される。しかしながら、図 12 に示した実施形態の場合と異なるのは、図 13 に示した実施形態によれば、未処理部分のより少ない高圧電定数の PLLA シートを得ることができるという点である。

[0123] なお、図 10 ないし図 13 を参照して説明したピン導体 36 a および 36 b の好ましい配置は、図 7 および図 9 に示したピン導体 58 a および 58 b の配置においても採用され得る。

符号の説明

- [0124]
- 1 PLLA シート
 - 2 PLLA 分子の螺旋軸
 - 10 製造装置
 - 11, 12 シグナルジェネレータ
 - 13 ミキサ
 - 14 アンプ
 - 16, 18 バイアスティー
 - 17 PLLA 加熱部
 - 20 高圧直流電源
 - 30, 50, 50 a PLLA 処理部
 - 31, 51 筐体
 - 35 a, 35 b 内導体
 - 36 a, 36 b, 58 a, 58 b ピン導体
 - 41 吹き出し口
 - 57 a, 57 b, 57 c, 57 d 中心導体

60 a, 60 b ベース電極

請求の範囲

- [請求項1] ポリ乳酸からなる圧電体シートであって、厚み方向に圧電性を示すように、少なくとも一部のポリ乳酸分子の螺旋軸が相対的に厚み方向に向けられている、圧電体シート。
- [請求項2] ポリ乳酸シートを用意する工程と、
マイクロ波を用いて前記ポリ乳酸シートを加熱する、加熱工程と、
前記ポリ乳酸シートの厚み方向に圧電性を発現させるため、加熱された前記ポリ乳酸シートの厚み方向に高電圧を印加して、少なくとも一部のポリ乳酸分子の螺旋軸を相対的に厚み方向に向ける、高電圧印加工程と
を備える、圧電体シートの製造方法。
- [請求項3] 前記高電圧印加工程の後、前記ポリ乳酸シートを急冷する工程をさらに備える、請求項2に記載の圧電体シートの製造方法。
- [請求項4] 前記高電圧印加工程は、前記加熱工程の少なくとも一部と同時に実施される、請求項2または3に記載の圧電体シートの製造方法。
- [請求項5] 高電圧電源と、
前記高電圧電源から供給される高電圧を、処理されるべきポリ乳酸シートの厚み方向に印加するため、前記ポリ乳酸シートを厚み方向に挟むように配置される対をなす高電圧印加用導体と、
マイクロ波を発生するマイクロ波発生器と、
前記マイクロ波発生器からマイクロ波を伝送する同軸線路と
を備え、
前記高電圧印加用導体は、前記同軸線路の内導体に接続され、前記マイクロ波が、前記ポリ乳酸シートとそれを挟む前記高電圧印加用導体とによって構成されるコンデンサを通過するとき、誘電損失による熱を発生するようにされている、
圧電体シートの製造装置。
- [請求項6] 高電圧電源と、

前記高電圧電源から供給される高電圧を、処理されるべきポリ乳酸の厚み方向に印加するため、前記ポリ乳酸シートを厚み方向に挟むように配置される対をなす高電圧印加用導体と、

マイクロ波を発生するマイクロ波発生器と、

前記マイクロ波発生器からマイクロ波を伝送する同軸線路と、

前記同軸線路に接続される少なくとも1段の半同軸空洞フィルタとを備え、

前記高電圧印加用導体の一方は、前記半同軸空洞フィルタの中心導体に接続され、

前記高電圧印加用導体の他方は、前記半同軸空洞フィルタの外導体に接続され、

前記マイクロ波が前記ポリ乳酸シートと前記高電圧印加用導体とによって構成されるコンデンサを通過するとき、誘電損失による熱を発生するようにされている、

圧電体シートの製造装置。

[請求項7] 前記高電圧印加用導体の一方は、複数のピン状の導体から構成され、前記高電圧印加用導体の他方は、平面状の導体から構成されている、請求項6に記載の圧電体シートの製造装置。

[請求項8] 前記高電圧印加用導体の一方および他方は、複数のピン状の導体から構成され、前記複数のピン状の導体は過不足なく互いに対をなすようにされている、請求項6または7に記載の圧電体シートの製造装置。

[請求項9] 前記マイクロ波発生器によって、互いに異なる周波数を有する複数種類のマイクロ波が発生される、請求項5ないし8のいずれかに記載の圧電体シートの製造装置。

[請求項10] 前記複数種類のマイクロ波は、少なくとも、主に加熱に有効な周波数のものと、主にポリ乳酸の主鎖を揺するのに適した周波数のものと、主にポリ乳酸の分子同士の結合部分を破壊するのに適した周波数の

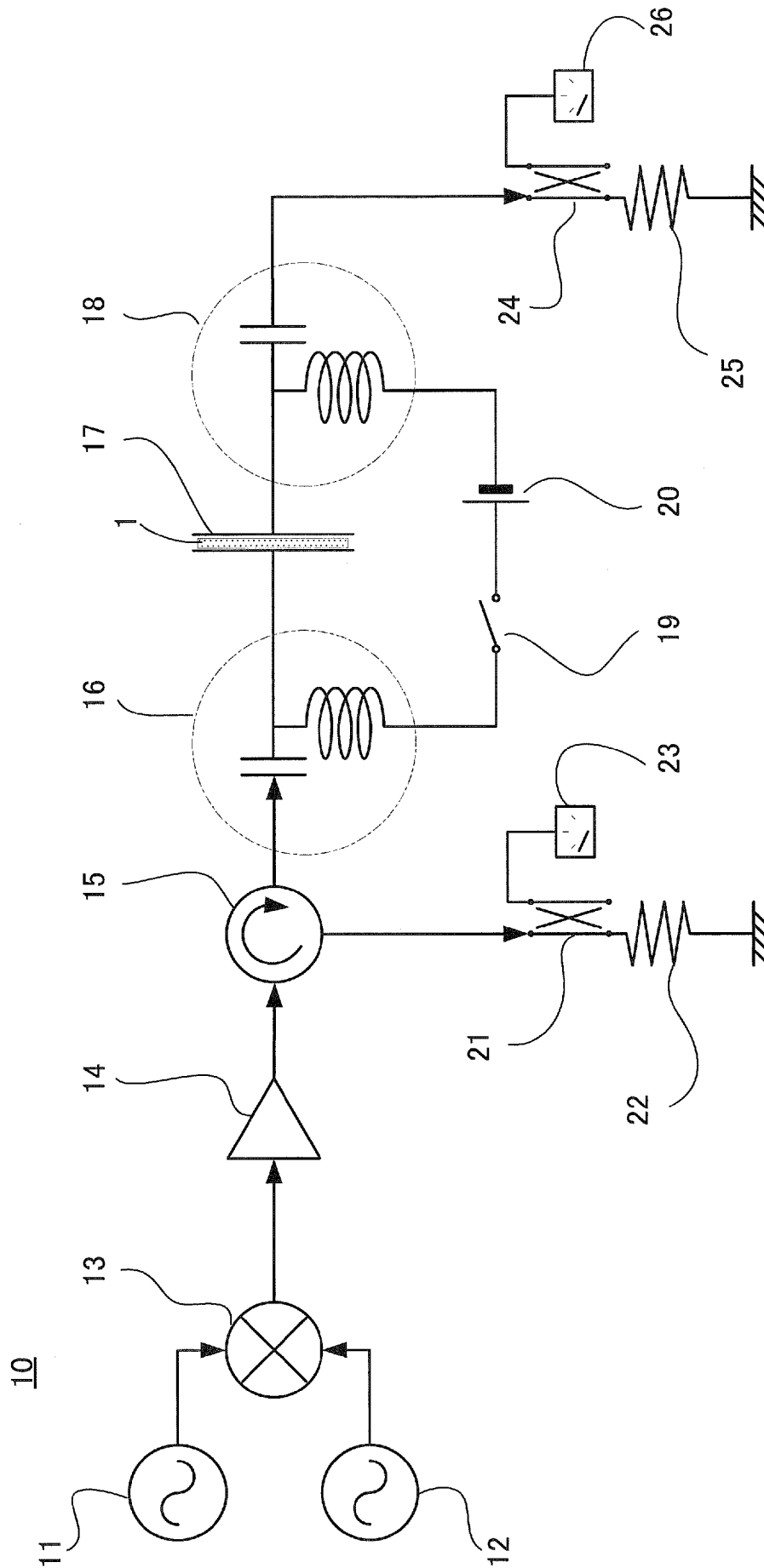
ものを含む、請求項 9 に記載の圧電体シートの製造装置。

[請求項 11] 前記高電圧印加用導体は、複数のピン状の導体から構成され、かつ、複数列をなすように配置され、各列の前記導体の各々の位置は、隣の列の前記導体の各々の間に形成される間隔部分に対応するようにされている、請求項 7 または 8 に記載の圧電体シートの製造装置。

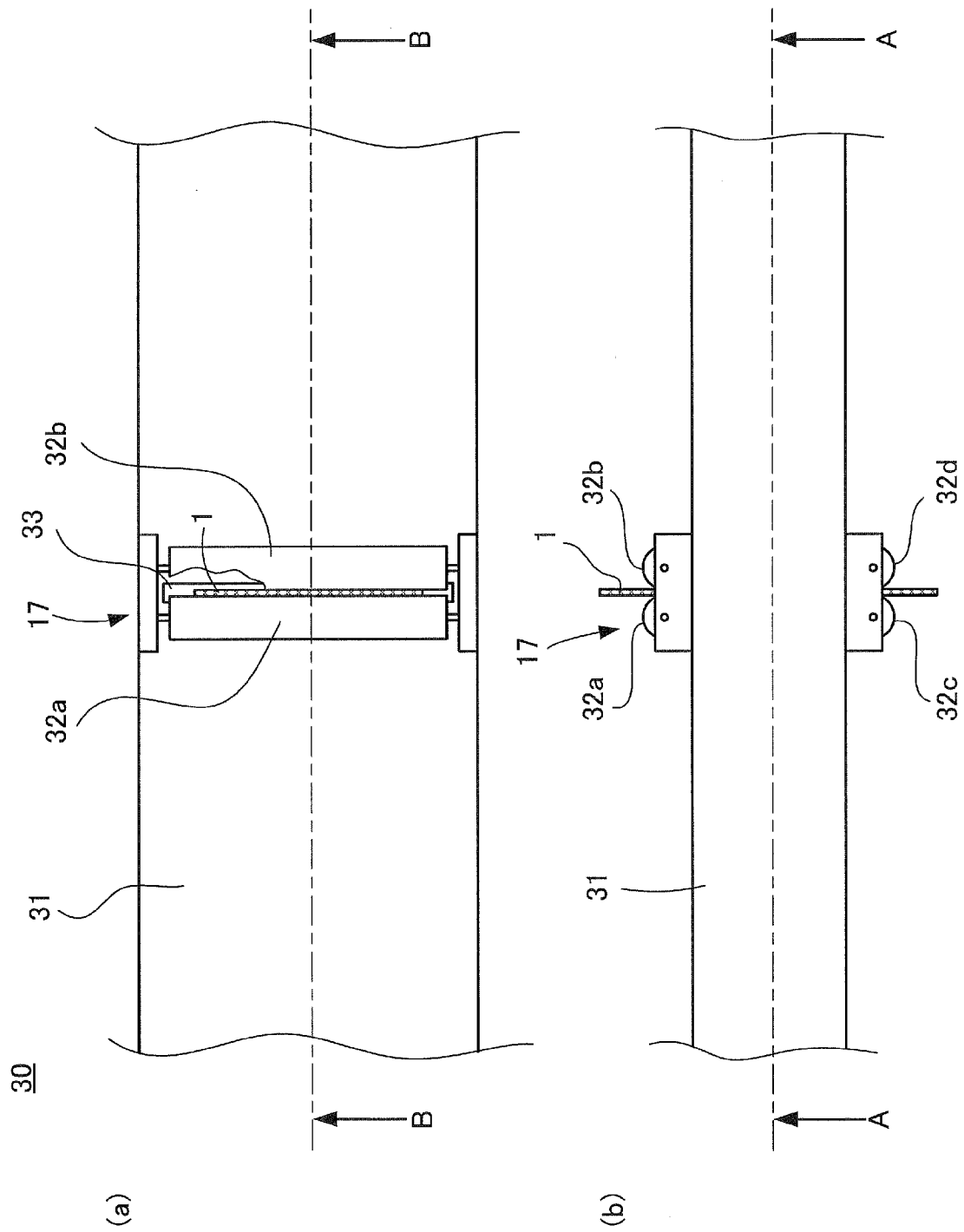
[請求項 12] 前記導体は断面が正方形とされ、隣り合う前記導体間の間隔は、各導体の断面を規定する正方形の一辺の長さと同しくされる、請求項 11 に記載の圧電体シートの製造装置。

[請求項 13] 前記高電圧印加用導体の近傍に設けられる、前記ポリ乳酸シートを急冷するための冷却用流体の吹き出し口をさらに備える、請求項 5 なし 12 のいずれかに記載の圧電体シートの製造装置。

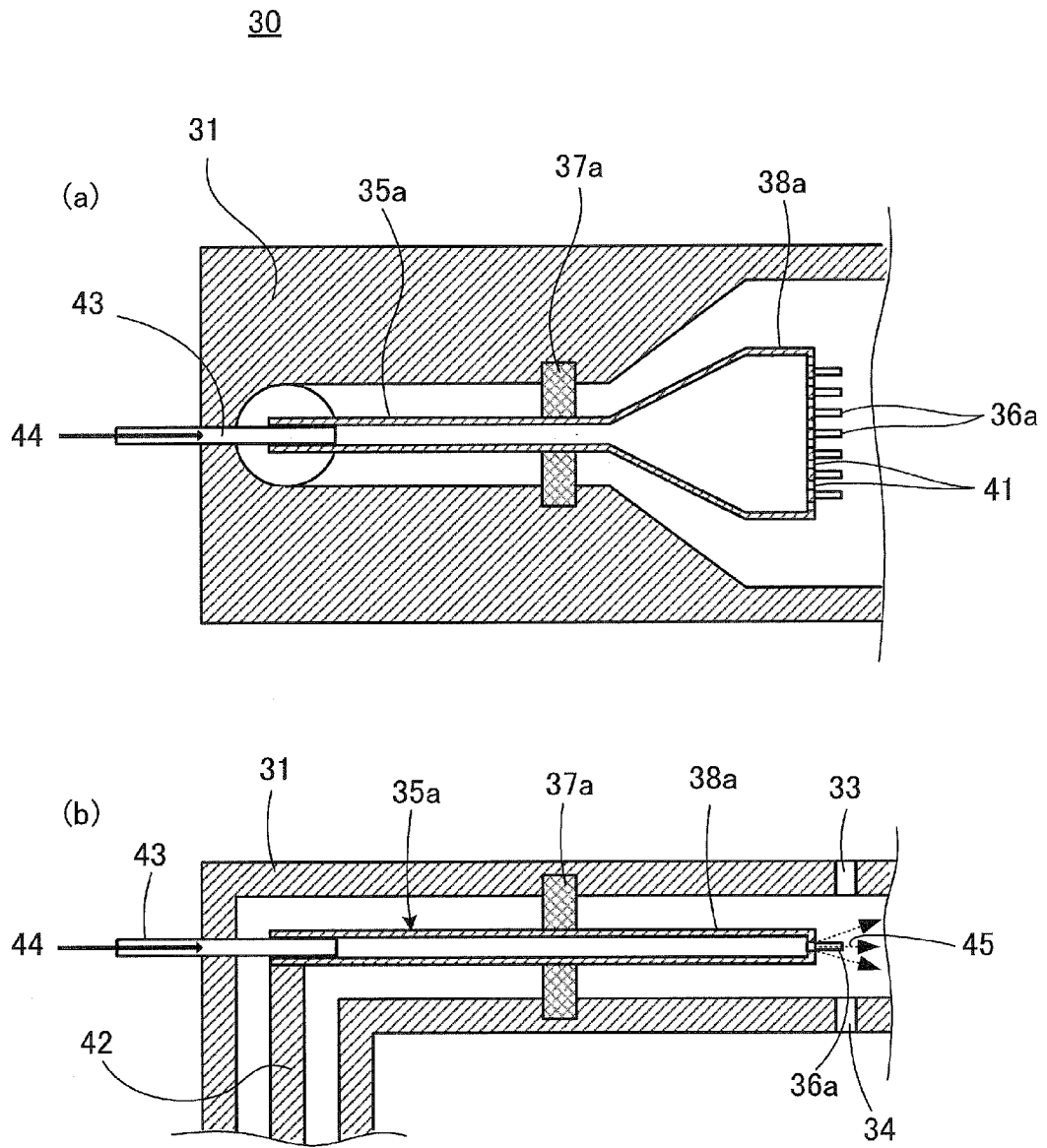
[図2]



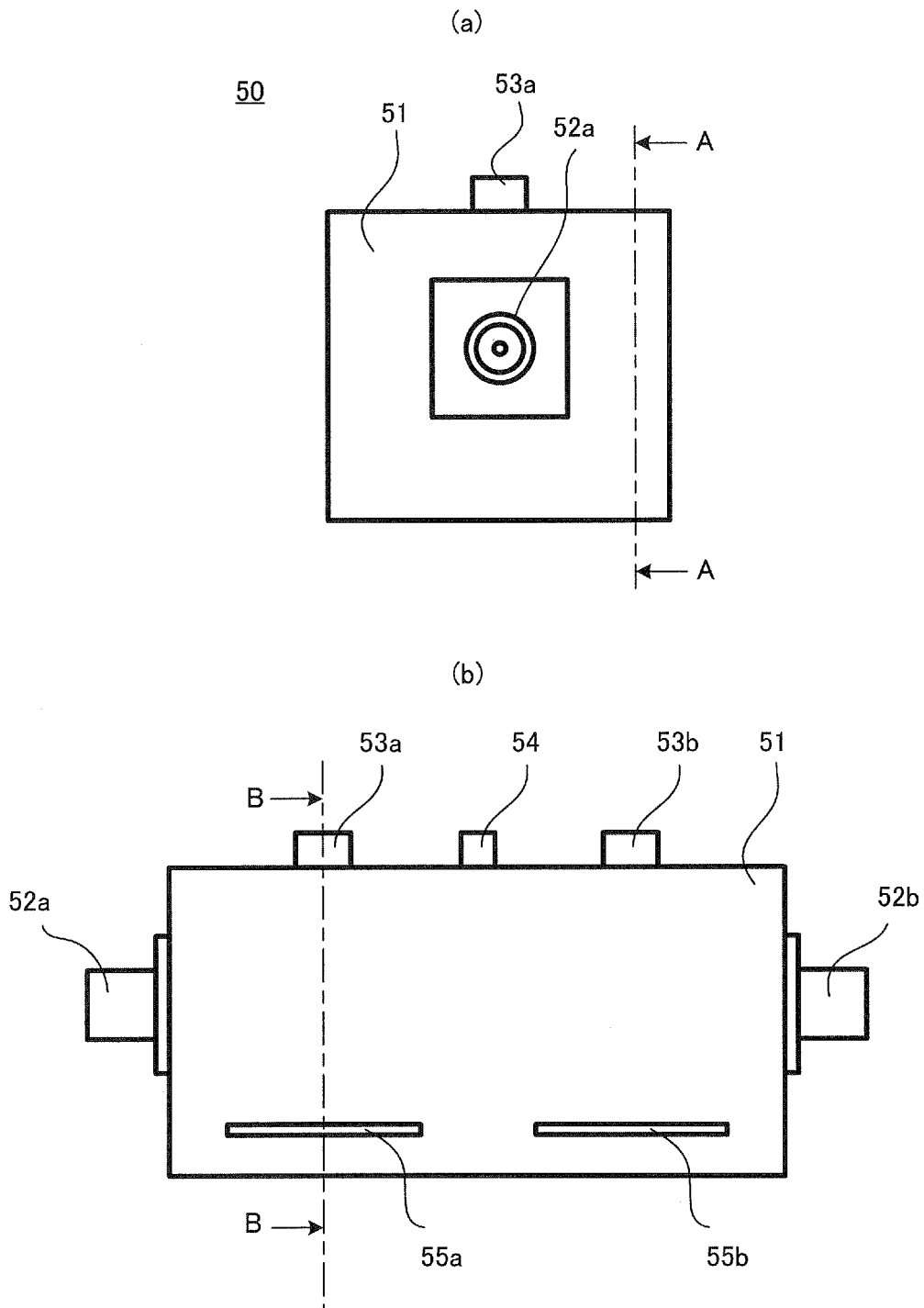
[3]



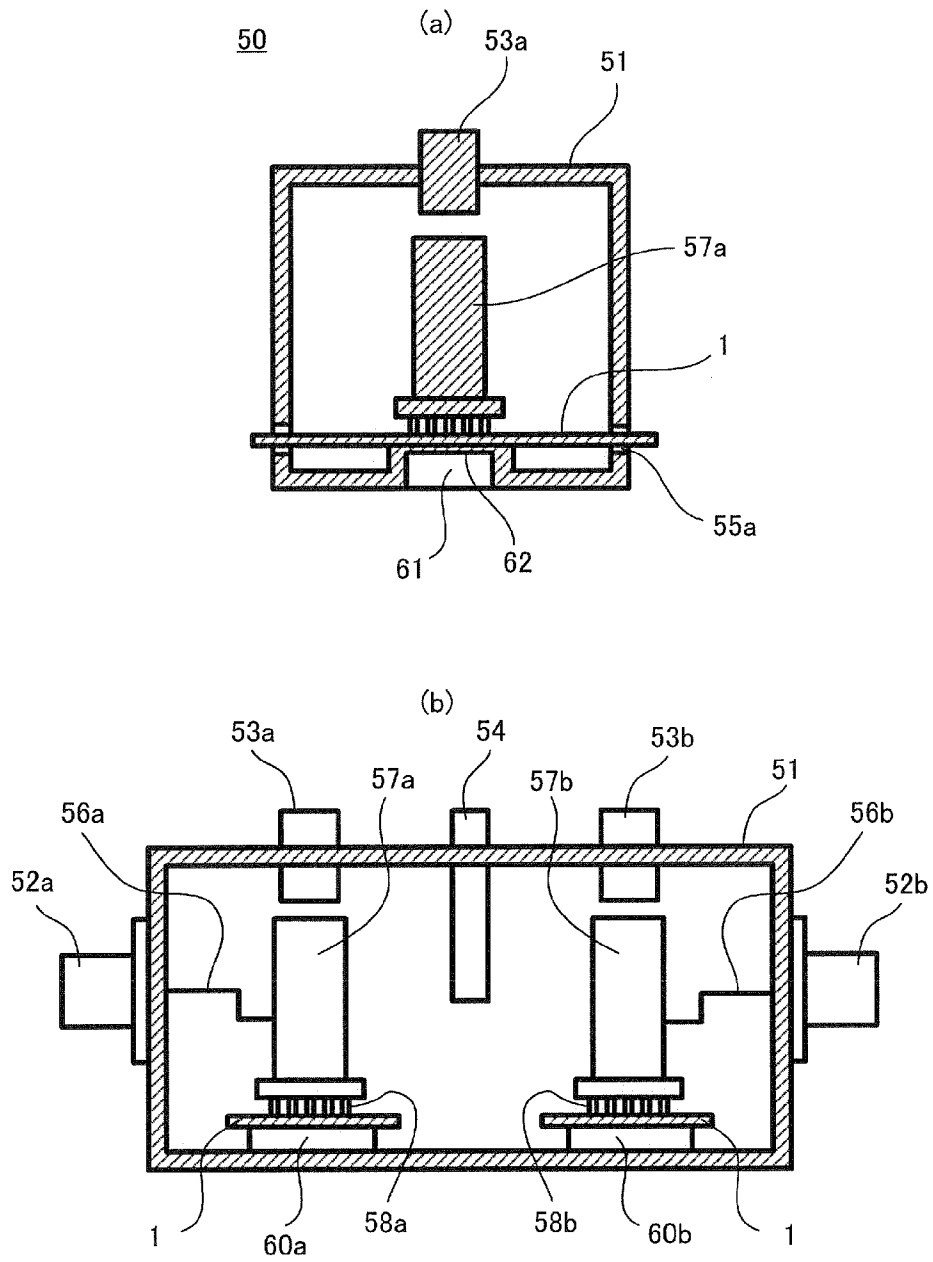
[図5]



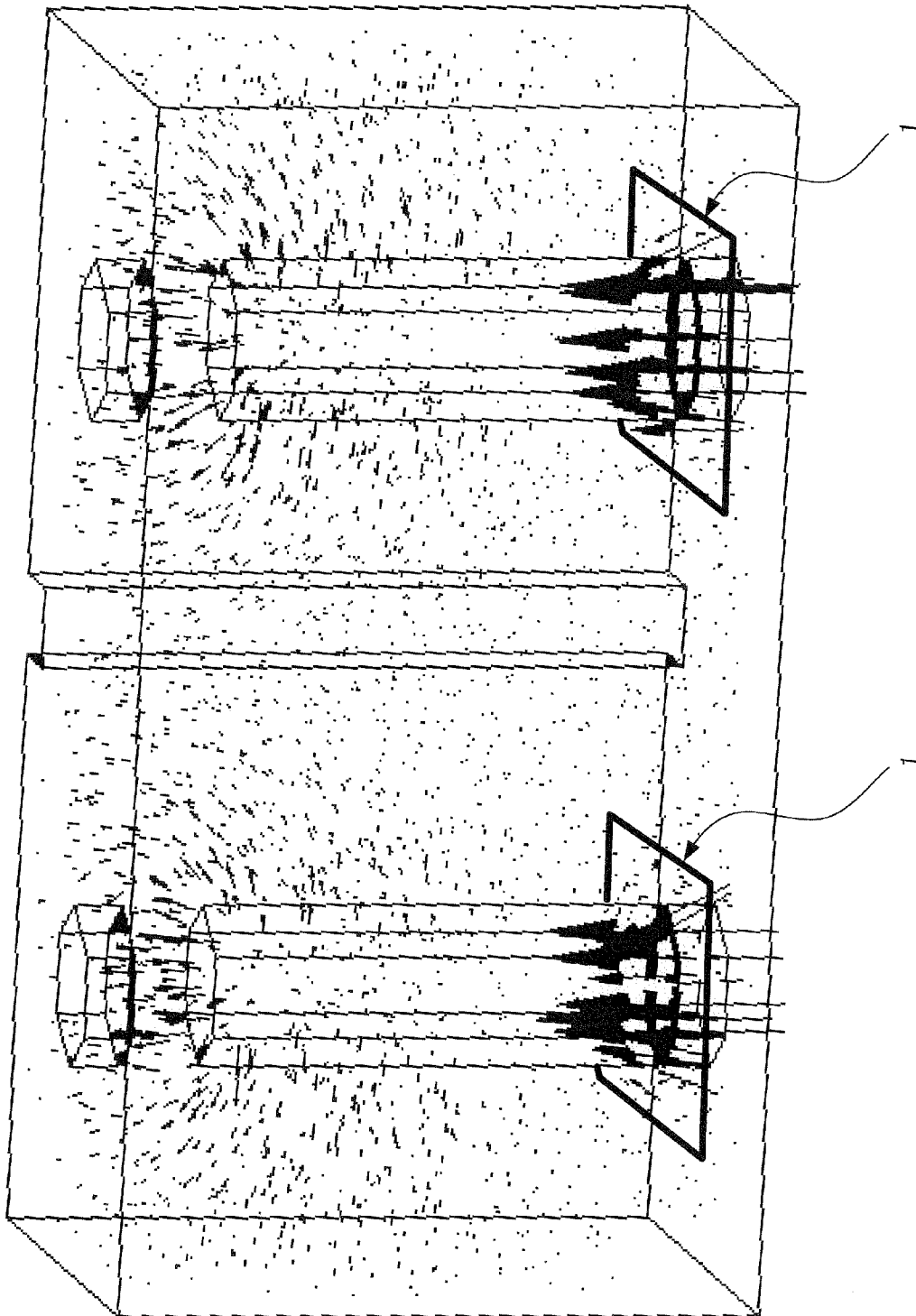
[図6]



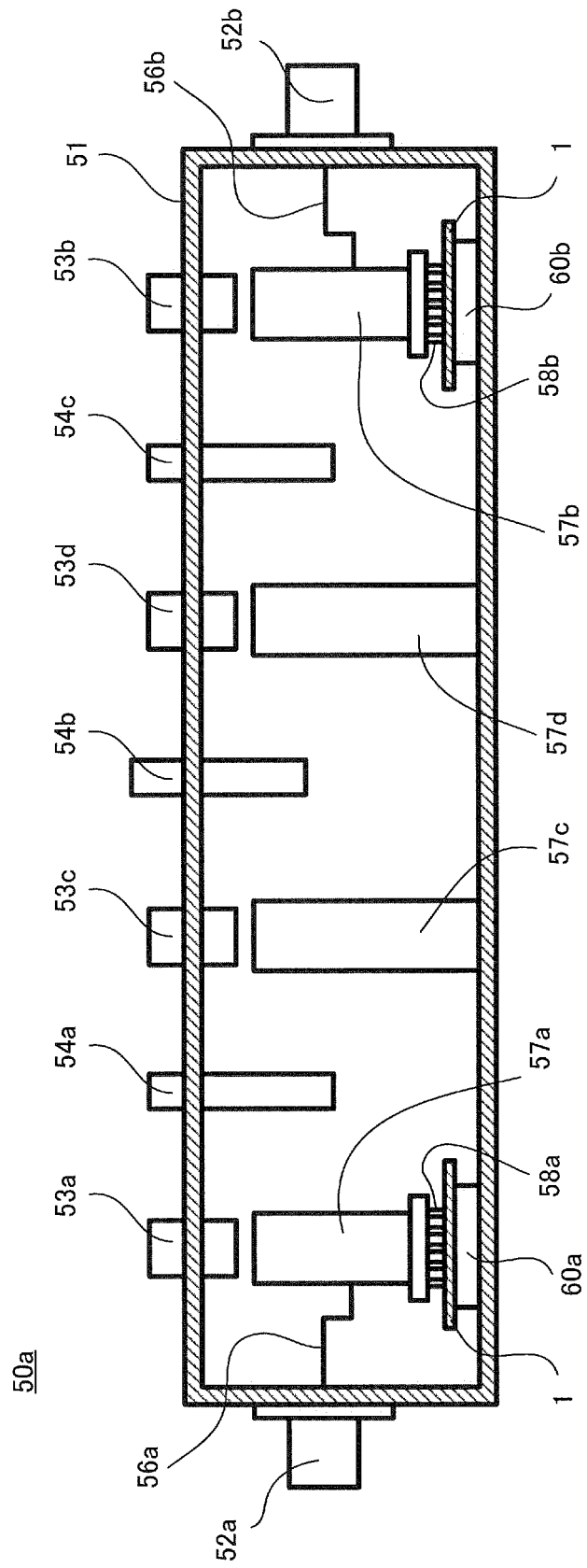
[図7]



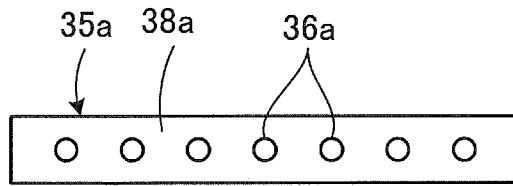
[図8]



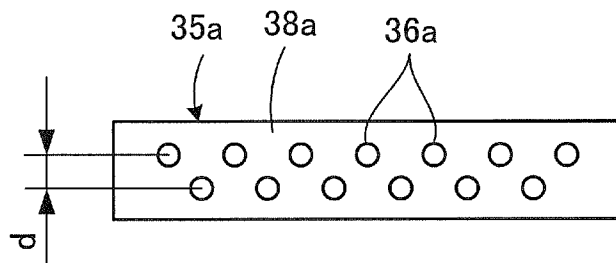
[9]



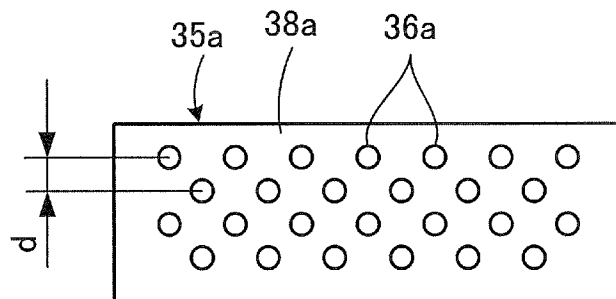
[図10]



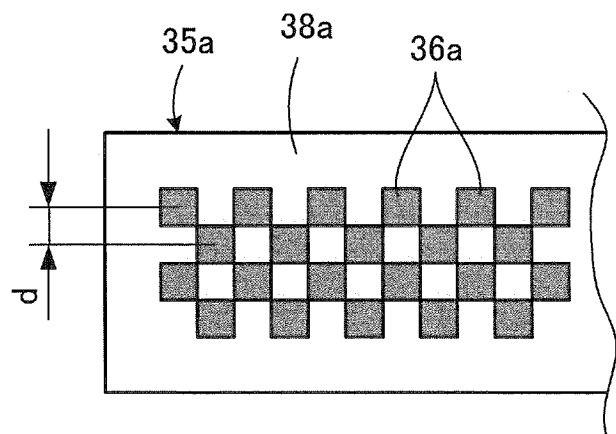
[図11]



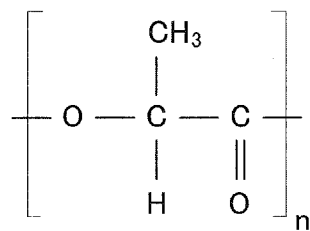
[図12]



[図13]



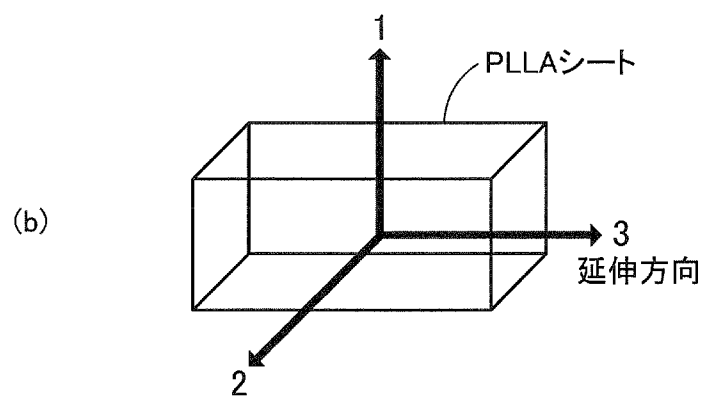
[図14]



[図15]

(a)

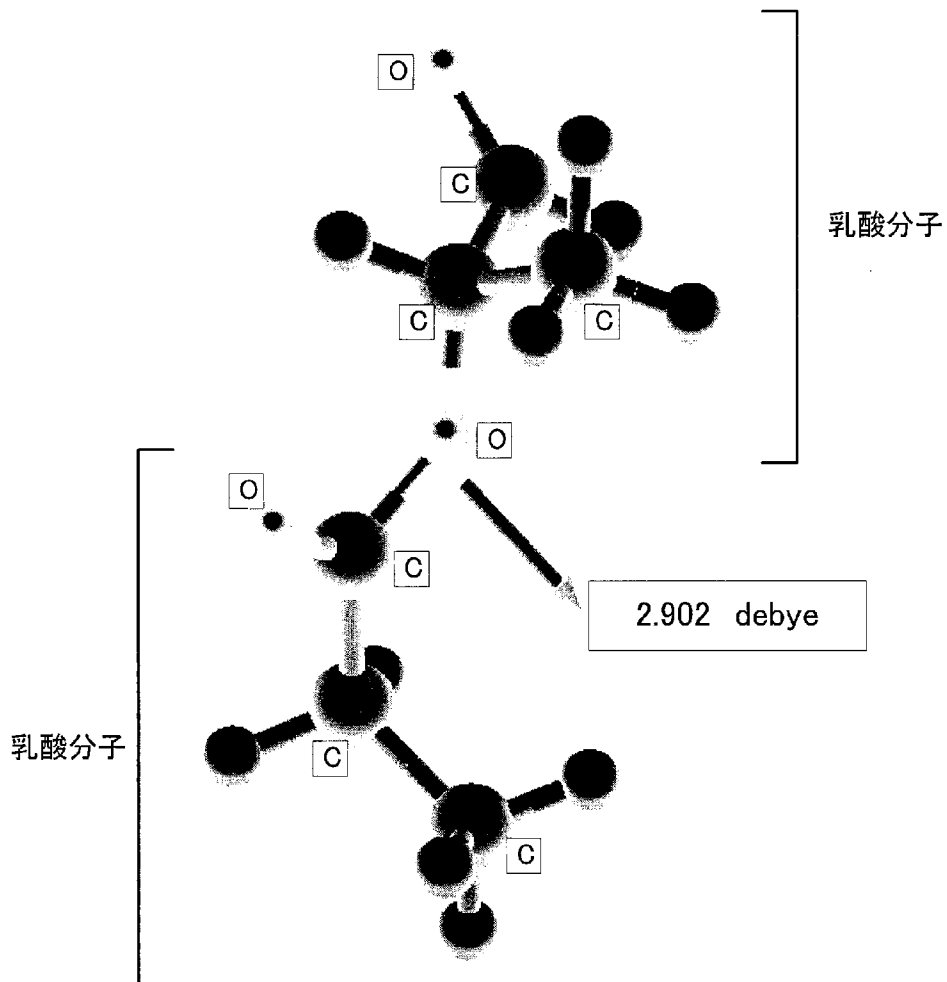
$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix}$$



(c)

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

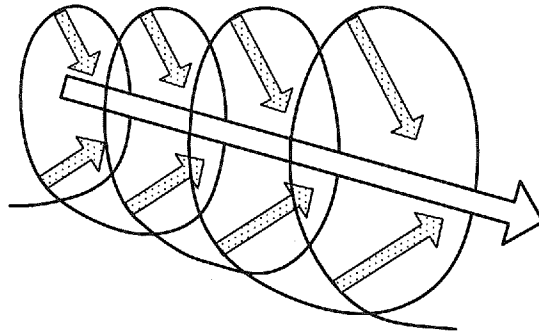
[図16]



[図17]



[18]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/060020

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08J7/00(2006.01)i, H01L41/193(2006.01)i, H01L41/26(2006.01)i, C08L101/16(2006.01)n

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)

C08J7/00, H01L41/193, H01L41/26, C08L101/16

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	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamII), Science Direct, IEEE Xplore, CiNii, ACS PUBLICATIONS, Scitation

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2005-203590 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 28 July 2005 (28.07.2005), entire text; all drawings (Family: none)	1-13
A	JP 2005-213376 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 11 August 2005 (11.08.2005), entire text; all drawings (Family: none)	1-13
A	JP 5-152638 A (Takiron Co., Ltd.), 18 June 1993 (18.06.1993), entire text; all drawings (Family: none)	1-13

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
03 September, 2010 (03.09.10)

Date of mailing of the international search report
14 September, 2010 (14.09.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/060020

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 9-110968 A (Shimadzu Corp.), 28 April 1997 (28.04.1997), entire text; all drawings (Family: none)	1-13
A	JP 2000-144545 A (Gunze Ltd.), 26 May 2000 (26.05.2000), entire text; all drawings (Family: none)	1-13
A	JP 2002-293943 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 09 October 2002 (09.10.2002), entire text; all drawings (Family: none)	1-13
A	Keiko KOGA, Yoichi SANO, Masaru MATSUMOTO, Ikuo NAITO, "Piezoelectricity of Poly-L-Lactic Acid", Kyushu Sangyo University Kogakubu Kenkyu Hokoku, no.37, Heisei 12 Nendo Kogakubu Kikanshi Henshu Iinkai, 22 December 2000 (22. 12.2000), pages 175 to 178	1-13
A	Yoshiro TAJITSU, "polylactic acid no Kinoka o Misuete -Tokui na Bussei 'Atsudensei'-", Gekkan Eco Industry, vol.11, no.2, CMC Publishing Co., Ltd., 25 January 2006 (25.01.2006), pages 7 to 14	1-13
A	Yoshiro TAJITSU, "Rasen Kobunshi to shite no polylactic acid Maku no Senkosei·Atsudensei =Hikari·Denki Kino=", Optical alliance, vol.17, no.4, Japan Laser Corp., 01 April 2006 (01.04. 2006), pages 18 to 21	1-13
E,A	JP 2010-132899 A (Koichiro YONETAKE), 17 June 2010 (17.06.2010), entire text; all drawings (Family: none)	1-13

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C08J7/00(2006.01)i, H01L41/193(2006.01)i, H01L41/26(2006.01)i, C08L101/16(2006.01)n

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 (IPC))

Int.Cl. C08J7/00, H01L41/193, H01L41/26, C08L101/16

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	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2010年
日本国実用新案登録公報	1996-2010年
日本国登録実用新案公報	1994-2010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)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamII), Science Direct, IEEE Xplore, CiNii, ACS PUBLICATIONS, Scitation

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
A	JP 2005-203590 A (富士写真フイルム株式会社) 2005. 07. 28, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2005-213376 A (三井化学株式会社) 2005. 08. 11, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 5-152638 A (タキロン株式会社) 1993. 06. 18, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13

 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、一般の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

03.09.2010

国際調査報告の発送日

14.09.2010

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
郵便番号100-8915
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)

井原 純

4M

9354

電話番号 03-3581-1101 内線 3462

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 9-110968 A (株式会社島津製作所) 1997. 04. 28, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2000-144545 A (グンゼ株式会社) 2000. 05. 26, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2002-293943 A (三井化学株式会社) 2002. 10. 09, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13
A	古賀啓子, 佐野洋一, 松本勝, 内藤郁夫, ポリ-L-乳酸の圧電性, 九州産業大学工学部研究報告, No. 37, 平成 12 年度工学部機関誌編 集委員会, 2000. 12. 22, p. 175-178	1-13
A	田實佳郎, ポリ乳酸の機能化を見据えて—特異な物性「圧電性」—, 月刊エコインダストリー, Vol. 11, No. 2, 株式会社シーエムシー出 版, 2006. 01. 25, p. 7-14	1-13
A	田實佳郎, 螺旋高分子としてのポリ乳酸膜の旋光性・圧電性=光・ 電気機能=, 光アライアンス, Vol. 17, No. 4, 株式会社日本レーザ ー, 2006. 04. 01, p. 18-21	1-13
E, A	JP 2010-132899 A (米竹孝一郎) 2010. 06. 17, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-13