## ICPF アクチュエータの連成有限要素解析モデリング および動的変形挙動の検討

(課題番号 16560213)

平成 16 年度~平成 18 年度 科学研究費補助金 基盤研究 (C) 研究成果報告書

平成19年5月

研究代表者 堀江 知義 (九州工業大学情報工学部 教授)

はしがき

本研究では,複数の物理現象の相互作用を解析する連成有限要素解析手法を用いて,人工筋肉な

どへの応用が期待されている,イオン導電性高分子膜 (ICPF)—金属複合材アクチュエータの動的変

形挙動とメカニズムを明らかにする。特に着目するのは

1. 主たる変形プロセスである,イオンの移動現象,水分子の拡散現象,ひずみ/応力の発生によ

る変形のそれぞれに関して,支配方程式やモデル化の妥当性を,実験と2次元・3次元有限要

素解析により検証する。

2. 各現象間の相互作用のモデル化と連成解析手法の組み合わせの整合性,解の精度,解析時間,

数値的不安定性などの比較・検討により、最適な連成解析手法を提案する。

3. 種々の条件の下で ICPF アクチュエータの動的変形挙動を実験と解析により比較・検討し,変

形のメカニズムを明らかにすると同時に、モデルの妥当性を実証する。

ICPF アクチュエータの動作原理に関しては , 理論的な検討や簡易的なモデリングが行われている

が、定性的な議論や特定の条件下での一致は見られるものの、まだ本格的なシミュレーションを行な

うレベルには達していない。本研究では,連成有限要素解析を導入して,イオンの移動,水分子の拡

散,ひずみ/応力の発生と変形挙動を相互作用を含めて連続体の連成解析モデリングするところが

特色である。

研究組織

研究代表者: 堀江 知義 (九州工業大学情報工学部 教授)

研究分担者: 二保 知也 (九州工業大学情報工学部 助手)

i

## 交付決定額(配分額)

直接経費

平成 16 年度1,500 千円平成 17 年度900 千円平成 18 年度700 千円

計 3,100 千円

## 研究発表 学会誌等

- T. Niho and T. Horie, Coupled Parallel Finite Element Analysis for Electromagnetic and Structural Coupled Problem in Grid Computing Environment, Proceedings of International Conference on Computational Methods for Coupled Problems in Science and Engineering, 13 (2005).
- 2. T. Horie and T. Niho, Numerical Instability Analysis of Time Integration Scheme for Staggered electromagnetic and Structural Coupled Problem and Its Stabilization using Numerical Filter, Proceedings of International Conference on Computational Methods for Coupled Problems in Science and Engineering, 15 (2005).
- 3. T. Niho, J. Uefuji, T. Horie, Solution Strategy Suitable for Coupled Parallel Finite Element Analysis Considering Numerical Instability, Computational Methods for Coupled Problems in Science and Engineering II, pp. 733–736, (2007).

#### 口頭発表

- 1. 渡辺 健一, 坂田 金吾, 二保 知也, 石原 大輔, 堀江 知義, イオン導電性高分子・金属複合材変形挙動の電気応答・シェル構造解析, 日本機械学会第 17 回計算力学講演会講演論文集, pp. 419-420, 2004.
- 2. 二保 知也, 山内秀晃, 堀江知義, 連成並列有限要素解析に適したプロセス割り当て方法の検討, 日本機械学会第 19 回計算力学講演会論文集, pp. 541-542, 2006.
- 3. 上藤淳平, 二保 知也, 堀江知義, 連成並列有限要素解析に適した連成アルゴリズムの検討, 日本機械学会第 19 回計算力学講演会論文集, pp. 539-540, 2006.

## 出版物

1. 堀江 知義, 電磁・構造連成, 計算力学ハンドブック(矢川, 宮崎編), pp. 502-510, 2007, 朝倉書店.

# 目 次

第1章	序論	1
1.1	IPMC の概要	1
1.2	IPMC に関する従来の研究	2
1.3	本研究の目的	3
第2章	IPMC の屈曲における電気化学・力学的理論	4
2.1	IPMC の屈曲原理	5
	2.1.1 前方屈曲運動	5
	2.1.2 後方屈曲運動	5
2.2	電気化学・変形応答の支配方程式	7
	2.2.1 水和陽イオンに関するの支配方程式	7
	2.2.2 水分子拡散方程式	10
	2.2.3 水分子濃度変化により生じるひずみ	11
第3章	IPMC に生じる連成効果の実験的検討	12
3.1	実験の目的	13
3.2	実験装置	13
	3.2.1 実験装置の概要	13
	3.2.2 実験装置の詳細	13
3.3	基礎特性の調査	17
	3.3.1 実験対象	17
	3.3.2 実験方法	18
	3.3.3 実験結果および検討	18
	3.3.4 解析結果との比較	23

3.4	内部現象と変形の連成効果の確認	26
	3.4.1 変形と内部現象の関係	26
	3.4.2 実験方法	26
	3.4.3 実験結果および検討	26
	3.4.4 内部現象と変形の連成解析モデル	29
第4章	水和陽イオン移動・水分子拡散・構造連成解析手法	30
4.1	姜ら・田所らの IPMC 解析の流れ	31
4.2	IPMC に生じる連成現象	33
	4.2.1 水和陽イオン移動と水分子拡散の連成現象	33
	4.2.2 内部粒子の移動と構造変形の連成現象	34
4.3	水和陽イオン移動と水分子拡散の連成解析手法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	35
	4.3.1 解析の流れ	35
	4.3.2 水和陽イオンに関する支配方程式の有限要素式	38
	4.3.3 水分子拡散方程式の有限要素定式	39
	4.3.4 構造解析の有限要素式	40
4.4	内部粒子の移動・拡散と構造変形の連成解析手法	40
	4.4.1 <b>解析の流れ</b>	40
	4.4.2 水和陽イオン電荷の支配方程式	40
	4.4.3 水分子濃度の拡散方程式	43
第5章	連成現象を考慮した解析および検討	46
5.1	問題設定	47
	5.1.1 解析条件	48
5.2	姜ら・田所らの解析手法の比較	49
	5.2.1 はじめに	49
	5.2.2 解析条件	50
	5.2.3 水和陽イオン移動・水分子拡散解析	50
	5.2.4 IPMC <b>の構造解析</b>	54
5.3	水和陽イオン電荷と水分子拡散の連成解析	54
	5.3.1 はじめに	54
	5.3.2 水和陽イオンの解析	55
	5.3.3 水分子拡散の解析	55
	5.3.4 IPMC 構造解析	56

参考文献	ţ.		70
第6章	結論		68
	5.4.4	内部粒子の移動と構造変形の連成効果の考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	59
	5.4.3	水和陽イオンおよび水分子拡散解析	58
	5.4.2	解析条件	57
	5.4.1	はじめに	57
5.4	強制変	位による水和陽イオンの移動および水分子拡散解析	57
	5.3.5	連成効果の検討・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	56

## 第1章

## 序論

#### 1.1 IPMCの概要

近年,機械には高速,高出力,高精度なだけではなく,小型化や柔軟性といった側面が重要視されてきている.特に人間や人間の生活環境に直接触れる機械は安全で柔軟さを備えたものであることが望ましい.そうした中で注目されているのが高分子アクチュエータである.高分子アクチュエータは生物的な柔らかい動作が可能であり,人工筋アクチュエータとして医療や福祉,ロボットやホビー産業から大きな関心を寄せられ,様々な研究が進められている<sup>(1)</sup>.

そうした中で 1992 年に小黒らによって高分子電解質ゲルに電極を接合したものが電場に対して応答することを発見された  $^{(2)}$  . これはイオン導電性高分子・金属複合材 (Ionic Polymer - Metal Composites : IPMC) とよばれ , これまでの高分子アクチュエータにはない様々な特性を持っている ため注目されている .

 ${
m IPMC}$  は図 1.1 に示すようにイオン導電性高分子の両面に金属電極を形成したものであり,電極に電圧を加えると陽極側に屈曲が生じる.また逆に,変位を与えると起電力が発生するので, ${
m IPMC}$  アクチュエータ自身がセンサとしても機能する  ${
m (3)}$   ${
m (4)}$  .

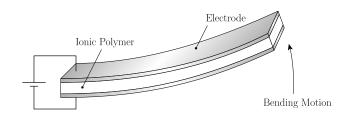


図 1.1 イオン導電性高分子・金属複合材 (IPMC)

#### IPMC の特徴として

- 柔軟である
- 低電圧で作動する (0.5 ~ 3 V)
- 応答が速い (> 100 Hz)
- 大きな変位を示す
- 小型化が可能である (< 1 mm)</li>
- 耐久性が高い (10 万回以上の屈曲が可能)
- 作動音がでない
- センサとしても機能する

などがある.これらの特徴を利用してすでに能動力テーテルや小型ロボットのアクチュエータなどに実用化され,今後も医療分野を中心に人工筋肉アクチュエータとして様々な分野での応用が期待されている.

### 1.2 IPMC に関する従来の研究

IPMC に関して,特性調査や IPMC 実用化のための研究,解析モデルに関する研究など様々な研究が行われている.

#### 特性調査

Yoseph Bar-Cohen ら  $^{(5)}$  や山北ら  $^{(6)}$  などによって,イオン導電性高分子の種類や,内部の陽イオンの違いによる IPMC の特性調査が行われている  $^{(7)}$  . また,瀬良ら  $^{(3)}$  によって IPMC センサとアクチュエータを統合的に用いるセンサシステムの研究が行われている.

#### 実用化

釜道らや高木らは IPMC を用いて直動型  $^{(8)}$  や有限回転型  $^{(9)}$  のアクチュエータを提案した.また, IPMC の屈曲動作を利用してヘビ型ロボットの開発  $^{(10)}$   $^{(11)}$  や,IPMC を用いた触覚デバイスなどの 開発  $^{(12)}$  も進められている.

#### 解析モデル

解析モデルの開発は,IPMCの挙動を単純なモデルで近似する方法と,IPMC内部で生じる現象を詳細なモデルで表現する方法の2通りのアプローチがある.

単純なモデルで近似する方法としては,菅野らによるブラックボックスモデル (13) やいくつかのブラックボックスモデルを組合せたグレイボックスモデル (14) (15) などがある.このようなモデル化を用いると比較的容易に解析を行うことができる.しかし,IPMC はイオン導電性高分子や陽イオン,電極の接合状態によって大きく特性が異なるため,その都度パラメータの同定を行わなければならず,場合によっては特性が異なる IPMC 毎に新たに近似モデルを作成する必要がある.

それに対して,Tadokoro らは IPMC の屈曲は水和陽イオンの移動に起因すると考え,内部の分子の移動を物理的,化学的なモデルで表現し,差分法によって解析を行った $^{(16)}$ . また,都井らは Popovic と Taya によって提案されたモデルと Tadokoro らによって提案されたモデルの 2 つのモデルを用いて有限要素解析を行い物理的,化学的モデルの妥当性を示した $^{(17)}$   $^{(18)}$ . Shahinpoor らは 人工筋肉はりにおける電気化学作用をモデル化を行い曲げモーメントから曲率を決定して変形応答を解析した $^{(19)}$ . Nemat-Nasser らはマイクロメカニクスに基づいた支配方程式を導出し,短時間応答解析結果が実験結果と良く一致することを示した $^{(20)}$ . しかし,IPMC の電気機械変換モデルは未だ十分には明らかにされておらず,正確な解析を行うためには流体力学,弾性力学,電気機械変換を同時に解く必要があるので,解析が複雑化し,解析規模も大きくなってしまうという問題点がある.

### 1.3 本研究の目的

本研究では,複数の物理現象の相互作用を解析する連成有限要素解析手法を用いて,イオン導電性高分子膜 (ICPF)-金属複合材アクチュエータの動的変形挙動とメカニズムを明らかにする。特に着目するのは

- 1. 主たる変形プロセスである,イオンの移動現象,水分子の拡散現象,ひずみ/応力の発生による変形のそれぞれに関して,支配方程式やモデル化の妥当性を,実験と2次元・3次元有限要素解析により検証する。
- 2. 各現象間の相互作用のモデル化と連成解析手法の組み合わせの整合性,解の精度,解析時間, 数値的不安定性などの比較・検討により,最適な連成解析手法を提案する。
- 3. 種々の条件の下で ICPF アクチュエータの動的変形挙動を実験と解析により比較・検討し,変形のメカニズムを明らかにすると同時に,モデルの妥当性を実証する。

## 第 2 章

# IPMCの屈曲における電気化学・力学的 理論

#### 2.1 IPMCの屈曲原理

#### 2.1.1 前方屈曲運動

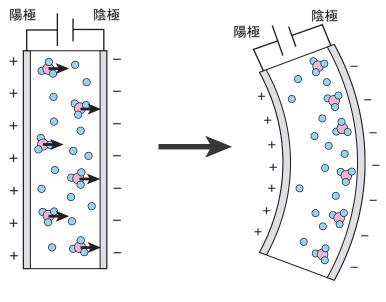
図 2.1 に IPMC の厚さ方向断面のモデルを示す.

IPMC は図 2.1 の左図のように,イオン導電性高分子の両面に薄い金属電極が接合されている.外部から入力を与える前の初期状態において,イオン導電性高分子の内部には,陽イオンおよび水分子が均一に存在している.水分子は分子内に電荷的な偏りを持つ極性分子であり,正電荷を持つ陽イオンに付着し,水和陽イオンとして高分子内に存在している水分子も存在する.また,陽イオンに水和していない自由水分子も存在する.

金属電極にステップ電圧を印加すると,IPMC内部には電場が発生する.水和陽イオンは全体として正に帯電しているため,電場により静電気力を受けて陰極側へ引き寄せられる.水和陽イオンの濃度は,陰極側で上昇し,逆に陽極側では低下する.陽イオンに水和した水分子が陰極側へ移動するため,水和水分子と自由水分子を合わせた全水分子濃度は,水和水分子濃度分布に影響され,陰極側は濃度が増加,陽極側は減少する.全水分子濃度の変化により陰極側では体積が膨張し,陽極側では収縮するため,IPMC全体は陽極側へと屈曲を起こす.

#### 2.1.2 後方屈曲運動

水和陽イオンが陰極へ移動し始めると,水和水分子の移動により,陰極側の全水分子濃度が上昇する.水和陽イオンおよび全水分子には,濃度の高い方から低い方へと移動しようとする拡散現象が起こるが,水和陽イオン(陽イオンおよび水和水分子)は静電気力により陰極側へと引き寄せられる.



電圧を印加すると 水和陽イオンが陰極へ

水分子濃度差が発生し 陽極側へ屈曲

図 2.1 前方屈曲運動

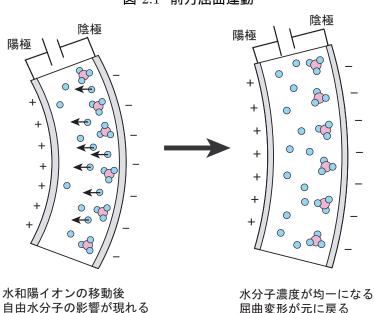


図 2.2 後方屈曲運動

しがって,主に自由水分子が拡散現象により拡散をする.

陰極近傍の自由水分子は拡散現象によって,水分子濃度が高い陰極側から濃度が低い陽極側へ拡散する.この自由水分子の拡散により,全水分子濃度は次第に均一になる.前方屈曲運動により屈曲していた IPMC は,変形が元に戻る.(図 2.2)

ただし,自由水分子の拡散速度は,水和陽イオンが陰極側へ移動する速度よりも小さいため,後 方屈曲運動の時間は前方屈曲運動の時間よりも長い.

### 2.2 電気化学・変形応答の支配方程式

#### 2.2.1 水和陽イオンに関するの支配方程式

図 2.3 に電圧を印加した IPMC 内部の水和陽イオンのモデルを示す.

水和陽イオンには複数の力がはたらき、それらの力により IPMC 内部を移動する.水和陽イオンにはたらく力には、電場による静電気力、陽イオンと水和水分子のそれぞれにはたらく拡散力、水和陽イオン全体にはたらく粘性抵抗力がある.まず、水和陽イオンは全体として正に帯電しているため、静電気力により陰極側へ引き寄せられる.移動する水和陽イオンにはたらく粘性抵抗力はその移動速度に比例して大きくなり、静電気力により移動する方向と逆方向にはたらく.拡散力は、水和陽イオンを形成する陽イオンおよび水和水分子の各々にはたらく.また、その大きさは陽イオン濃度、水和水分子濃度の濃度勾配に比例し、濃度が高い方から低い方へはたらくため、静電気力によって引き寄せられる方向と逆方向になる.

ここで,電極に挟まれた高分子内部の電場を一様とし,水和陽イオンの移動する方向をx方向とした場合,これらの力のつりあいより,以下の式が導かれる.

$$\eta v(x, y, t) + kT \frac{\partial \ln c(x, y, t)}{\partial x} + nkT \frac{\partial \ln w(x, y, t)}{\partial x} = eE(x, y, t)$$
 (2.1)

 $\begin{pmatrix} \eta & : & 高分子内部の粘性係数 & v(x,y,t) & : 水和陽イオンの速度 \\ k & : & ボルツマン定数 & T & : 絶対温度 \\ c(x,y,t) & : 水和陽イオン濃度 & w(x,y,t) & : 水分子濃度 \\ n & : & 水和数 & e & : 電気素量 \\ E(x,y,t) & : 電場$ 

高分子内部の電場 E(x,y,t) は,電圧による電場と,陽イオンの偏りにより生じる電場を合わせたものであり,以下の式で与えられる.

$$E(x,y,t) = \frac{1}{\varepsilon} \left( \sigma(t) + \int_0^t \rho(\xi,y,t)d\xi \right)$$
 (2.2)

ただし,電極の表面電荷密度 $\sigma(t)$ は,外部入力の電流を用いて

$$\sigma(t) = \frac{1}{S} \int_0^t i(\tau)d\tau \tag{2.3}$$

 $\left(egin{array}{cccc} S & : & & 電極の面積 \ i( au) & : & ext{IPMC} に流れる電流 \end{array}
ight)$ 

で与えられる.

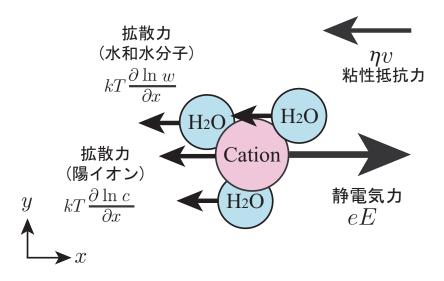


図 2.3 高分子内部の水和陽イオンにはたらく力

IPMC 内部の電荷密度  $\rho(x,y,t)$  は ,

$$ho(x,y,t) = Ne\Big(c(x,y,t) - c_0\Big)$$
 (2.4) 
$$\begin{pmatrix} N & : & \mathbf{7} \ddot{\mathbf{7}} \ddot{\mathbf{7}} \mathbf{F} \mathbf{D} \ddot{\mathbf{D}} \\ e & : & 電気素量 \\ c(x,y,t) & : & \mathbf{B} \mathbf{7} \mathbf{7} \mathbf{7} \mathbf{B} \ddot{\mathbf{D}} \\ e & : & t = 0 \mathbf{B} \mathbf{D} \mathbf{B} \mathbf{7} \mathbf{7} \mathbf{7} \mathbf{7} \mathbf{B} \ddot{\mathbf{D}} \\ \end{pmatrix}$$

で与えられる.

式 (2.3) , 式 (2.4) より , 全体の電場 E(x,y,t) は以下の式であらわされる .

$$E(x,y,t) = \frac{1}{\varepsilon S} \left( \int_0^t i(\tau)d\tau + NeS \int_0^x \left( c(\xi,y,t) - c_0 \right) d\xi \right)$$
 (2.5)

また,高分子内部を移動する水和陽イオンの流束 $J_c$ は,

$$J_c(x, y, t) = c(x, y, t)v(x, y, t)$$

$$(2.6)$$

で与えられ,流束がみたすべき連続の式は,

$$\frac{\partial c(x,y,t)}{\partial t} + \frac{\partial J_c(x,y,t)}{\partial x} = 0$$
 (2.7)

である.

ここで,微小領域  $\Delta v$  に含まれる陽イオン電荷量  $\Delta Q$  は,

$$\Delta Q = NeSc(\xi, y, t)d\xi \tag{2.8}$$

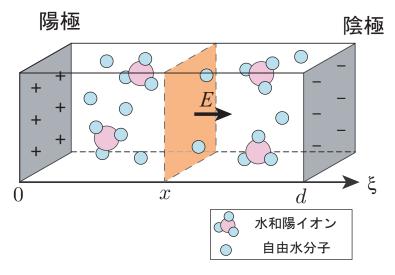


図 2.4 電圧を印加した IPMC 内部

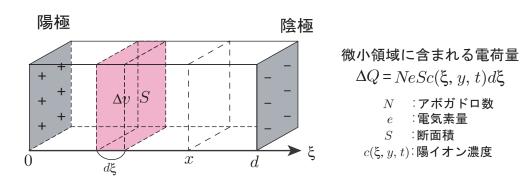


図 2.5 微小領域に含まれる陽イオン電荷量

で与えられ,  $\mathrm{IPMC}$  の厚さ方向 x までの領域に含まれる陽イオン電荷量 Q は,

$$Q(x,y,t) = \int_0^x NeSc(\xi,y,t)d\xi$$
 (2.9)

となる.

式 (2.1) , 式 (2.5) , 式 (2.7) , 式 (2.9) より , 最終的な水和陽イオン電荷量の支配方程式が以下の式で与えられる .

$$\frac{\partial Q(x,y,t)}{\partial t} = \frac{kT}{\eta} \frac{\partial^2 Q(x,y,t)}{\partial x^2} + \frac{nkT}{\eta} \frac{\partial \ln w(x,y,t)}{\partial x} \frac{\partial Q(x,y,t)}{\partial x} - \frac{e}{\varepsilon S} \left( \int_0^t i(\tau)d\tau + Q(x,y,t) - Q(x,y,0) \right) \frac{\partial Q(x,y,t)}{\partial x} \tag{2.10}$$

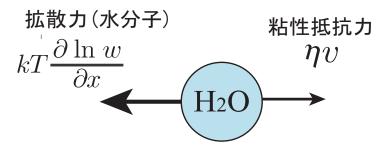


図 2.6 高分子内部の自由水分子にはたらく力

ただし,

$$Q(0, y, t) = 0$$
 
$$Q(d, y, t) = NeScd$$
 
$$Q(x, y, 0) = NeScx$$
 
$$(2.11)$$

(2.12)

#### 2.2.2 水分子拡散方程式

図 2.6 に高分子膜内部の自由水分子のモデル図を示す.水和陽イオンと同様,自由水分子にも複数の力がはたらき,それらの力の和により自由水分子は拡散する.自由水分子にはたらく力は,拡散力および粘性抵抗力である.濃度の勾配に比例した拡散力により自由水分子は拡散するが,拡散力とは逆方向に,自由水分子の移動速度に比例した粘性抵抗力がはたらく.それらの力のつりあいより,

$$\eta' v_w(x, y, t) = kT \frac{\partial \ln w(x, y, t)}{\partial x}$$
 (2.13)

 $\left(egin{array}{cccc} \eta' & : 水分子の粘性係数 \ v_w(x,y,t) & : 水分子の速度 \ k & : ボルツマン定数 \ T & : 絶対温度 \ w(x,y,t) & : 水分子濃度 \end{array}
ight)$ 

が導かれる.

また,拡散する自由水分子の流束  $J_w$  は

$$J_x(x, y, t) = w(x, y, t)v_w(x, y, t)$$
(2.14)

で与えられ,流束 $J_w$ がみたすべき連続の式は,

$$\frac{\partial w(x,y,t)}{\partial t} + \frac{\partial J_w(x,y,t)}{\partial x} = 0 \tag{2.15}$$

である.

式 (2.13), 式 (2.14), 式 (2.15) より最終的に自由水分子の拡散方程式

$$\frac{\partial w(x,y,t)}{\partial t} = \frac{kT}{n'} \frac{\partial^2 w(x,y,t)}{\partial x^2}$$
 (2.16)

が導出される.

#### 2.2.3 水分子濃度変化により生じるひずみ

イオン導電性高分子内部の水分子が移動し、水分子濃度が変化することにより、局所的な体積の膨張、収縮が起こる.高分子内部のある領域において、水分子濃度が増加するとその領域の体積は膨張し、逆に濃度が減少すると領域の体積は収縮する.

高分子内部の水分子含有量と生じるひずみとの関係は,田所らによりほぼ線形的な関係  $^{(21)}$  があることが明らかにされており,水分子濃度と生じるひずみとの関係は

$$\varepsilon = \alpha \frac{w(x, y, t)}{w(x, y, 0)} \times 100 \tag{2.17}$$

で与えられる。

## 第3章

## IPMCに生じる連成効果の実験的検討

#### 3.1 実験の目的

解析モデルを開発するにあたって、IPMCの変形特性を調査する必要がある.まず、IPMCにステップ電圧を印加して基礎的な変形挙動を確認し、解析結果と比較する.また、IPMC内部と変形の連成現象について確認し、その特性を表現できるような解析モデルを検討する.

#### 3.2 実験装置

#### 3.2.1 実験装置の概要

実験装置の概要を図 3.1 に示す.実験装置は IPMC に電圧を印加するための電源装置,IPMC に生じた電流や変位などを測定する測定装置,得られたデータをコンピュータで処理するための A/D 変換器からなる.今回の実験では電源装置にポテンシオスタットを用い,この装置によって電圧と電流を測定する.また,変位を測定するためにレーザー変位計,膜に発生する力を測定するために荷重センサを用いる.得られたデータは A/D 変換器を通して,PC に送られる.IPMC は湿潤している必要があるので,水槽中に IPMC を浸して実験を行う.

#### 3.2.2 実験装置の詳細

各実験器具について説明する.

#### ケルビンクリップ

 ${
m IPMC}$  の保持には  ${
m G01}$  型ケルビンクリップ (アトシステム , 図 3.2) を用いる.このクリップで  ${
m IPMC}$  を挟み , 表面の電極に電圧を印加する.ケルビンクリップの電極は金メッキが施してあり,水溶液中で電圧を印加しても腐食しにくくなっている.

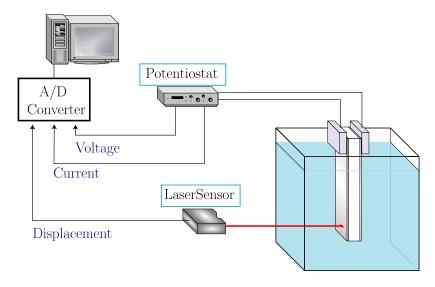


図 3.1 実験装置概要

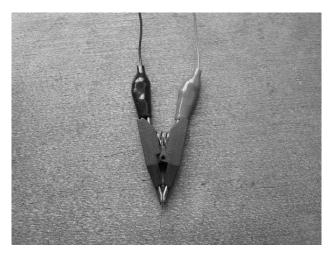






図 3.3 ポテンシオスタット

#### ポテンシオスタット

電源装置には 1110 型ポテンシオスタット (扶桑製作所,図 3.3) を用いる.この装置は指定した電圧を発生させることができる装置であり,逆に電流を指定することもできる.今回の実験では電圧を印加して実験を行う.また,電圧,電流の測定も行うことができる.主な性能を表 3.1 に示す.

#### レーザー変位計

IPMC の変位の測定にはレーザー変位計 LB-040/LB-1000(KEYENCE , 図 3.4) を用いる.主な性能を表 3.2 に示す.

今回の実験では IPMC を水溶液中に浸してレーザー変位計で測定しているが,レーザー変位計が

表 3.1 ポテンシオスタット (1110) の性能

	1110(扶桑製作所)
電位設定範囲	±10 V
電位応答速度	$5 \mu sec$
電位制御偏差	±1 mV
電流測定範囲	$1~\mu A \sim 1~A$
電流測定精度	0.5 %



図 3.4 レーザー変位計

表 3.2 レーザー変位計 (LB-040/LB-1000) の性能

	LB-040/LB-1000(KEYENCE)		
波長	$670 \mu \mathrm{m}$		
測定基準距離	40 mm		mm
測定範囲	$\pm 5~\mathrm{mm}$		mm
応答性	915Hz	36Hz	9Hz
分解能			$2~\mu\mathrm{m}$

読み取った値と実際の変位には誤差がある.レーザー変位計から発射されたレーザー光は空気中と水中の屈折率の差によって図 3.5 のように角度がかわる.空気と水の境目から L の距離に物体があるとレーザー変位計が認識した場合,実際は  $L \times a$  の距離に物体は存在する.

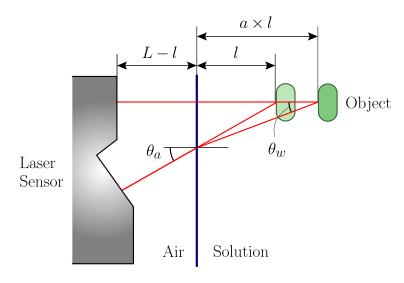


図 3.5 レーザー変位計による変位測定 (水中)

図 3.5 より

$$L\tan\theta_a = La\tan\theta_w \tag{3.1}$$

という関係が成り立つ. つまり

$$a = \frac{\tan \theta_a}{\tan \theta_w} \tag{3.2}$$

という式が導かれる.

ここで,空気中の屈折率を $n_a$ ,水中の屈折率を $n_w$ とすると $\theta_w$ は

$$\theta_w = \sin^{-1}\left(\frac{n_a}{n_w}\sin\theta_a\right) \tag{3.3}$$

という式で表される . (3.3) 式を (3.2) 式に代入すると ,

$$a = \frac{\tan \theta_a}{\tan \left(\sin^{-1}\left(\frac{n_a}{n_w}\sin \theta_a\right)\right)} \tag{3.4}$$

となり, a は  $n_a$  ,  $n_w$  ,  $\theta_a$  で表すことができる.実際に 780nm のレーザー光の空気中,水中における屈折率を  $n_a=1.000$  , $n_w=1.331$  ,レーザー変位計の受光角を  $\theta_a=28$  として計算すると a=1.42 となる.したがって,レーザー変位計の値を 1.42 倍したものが実際の変位である.

#### A/D 変換器

 ${\rm A/D}$  変換器には  ${\rm NR2000(KEYENCE)}$  を使用する. 主な性能を表 3.3 に示す.

これらの実験器具によって構成される実験装置は図3.6のようになる.

/ /		
	NR2000(KEYENCE)	
最大入力定格	±30 V	
測定レンジ	$\pm 10 \sim \pm 2.5 \text{ V}$	
A/D 変換分解能	14 bit	
サンプリング周期	$2.5~\mu\mathrm{sec}\sim60~\mathrm{sec}$	

表 3.3 A/D 変換器 (NR2000) の性能



図 3.6 実験装置

### 3.3 基礎特性の調査

#### 3.3.1 実験対象

陽イオン交換膜である DuPont 社の Nafion の両面に  $0.3~\mathrm{mg/cm^2}$  の白金電極を形成した IPMC で実験を行う.膜の厚さは  $0.051\mathrm{mm}$  ,  $0.127\mathrm{mm}$  ,  $0.183\mathrm{mm}$  の 3 種類を用いる.幅  $2.0~\mathrm{mm}$  , 長さ  $13~\mathrm{mm}$  に切断し,図  $3.7~\mathrm{o}$ ように保持部を  $2~\mathrm{mm}$  とし,保持部から  $10~\mathrm{mm}$  の位置の変位を,純水, $0.9~\mathrm{s}$  塩化ナトリウム水溶液に浸漬して測定する.

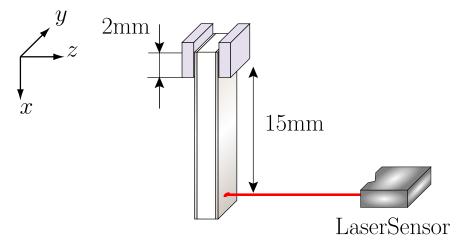


図 3.7 実験対象

#### 3.3.2 実験方法

IPMC に十分に水溶液が浸透するように,60分以上水溶液中に浸漬して実験を行う.また,IPMC の初期状態が反り返った状態にならないように水溶液に浸漬する間,重りをのせておく.

その後, IPMC 膜を縦向きに保持し, 純水中, 0.9 % 塩化ナトリウム水溶液中で実験を行う. ステップ電圧を印加した時の電流波形と電圧波形を測定し, 基礎特性を調査する.

#### 3.3.3 実験結果および検討

(a) IPMC 膜を浸す水溶液が異なる場合の実験結果

#### 実験結果

IPMC にステップ電圧を印加し,電流波形,変位波形をサンプリングタイム  $2.5~\mathrm{msec}$  で, $100~\mathrm{t}$  間測定する.純水中での測定結果を 図  $3.8~\mathrm{c}$  に示す.0.9~% 塩化ナトリウム水溶液中での実験結果を 図  $3.9~\mathrm{c}$  に示す.

#### 検討

#### ● 電流波形

IPMC に電圧を印加すると、内部の陽極付近、陰極付近において、電場によりそれぞれ逆符号のイオンが引き寄せられる。

一般に,帯電した固体表面付近の水相中では,電荷の移動・分離が起こり,あたかも帯電した2枚の面が接近した状態(電気二重層)となることが知られている.

IPMC 内部でも同様に電気二重層が生じ、それによってコンデンサへの充電と同じような現象が

起きていると考えられる.したがって,コンデンサへの充電時には電流は指数関数的に減少し,電圧の印加をやめた時には逆に放電が生じ,逆向きの電流が瞬間的に流れると考えられる.

#### ● 変位波形

純水中での実験結果からは,前方運動,後方運動,振り返し運動が確認できる.しかし,食塩水中では振り返し運動が確認できず,振り返し運動による屈曲よりも前方運動による屈曲のほうが十分に大きく,IPMCを浸漬している溶液によって,変位特性が大きく異なることを確認した.

変位量に関しては,陽イオン自身の大きさ,陽イオンに水和している水分子の量が大きくなると内部に生じるひずみが大きくなり,大きくなっていると考えられる.また,変位応答速度に関しては,陽イオン自身の大きさ,陽イオンに水和している水分子の量が大きくなると水和陽イオンが移動する時の抵抗が大きくなり,応答速度が遅くなっていると考えられる.変位量と応答速度は互いに相反する関係にある.

溶液によって変位波形の形が異なったり、変位量や応答速度がかわるので、IPMC アクチュエータを使用する状況に合わせて適切なイオンを選択する必要がある。

#### (b) 印加電圧と最大電流,最大変位の関係

#### 実験結果

純水中,0.9% 食塩水中において厚さが異なる 3 種の IPMC にステップ電圧を印加して最大電流,最大変位を測定した.それぞれ 10 回ずつの測定を行い,その平均をとった.電圧と最大電流の関係を図 3.10,図 3.11 に示す.電圧と最大変位の関係を図 3.12,図 3.13 に示す.

#### 検討

印加する電圧の値が大きくなると,最大電流,最大変位ともに大きくなる.また,最大電流は膜厚が厚くなるほど大きくなっているのに対し,最大変位は逆に膜厚が厚くなるほど小さくなっている.

膜厚が厚くなるほど電流の流れる量は多くなり内部の粒子の移動も多くなっているが,それ以上 に膜厚が厚くなることによる曲げ剛性の増大が大きく,結果として変位は小さくなっていると考えられる.

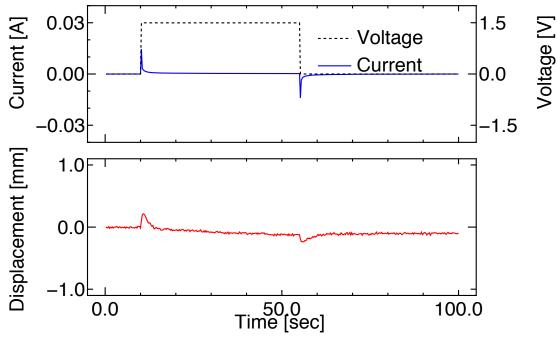


図 3.8 ステップ電圧を印加した時の電流波形,変位波形(純水,100 秒間測定)

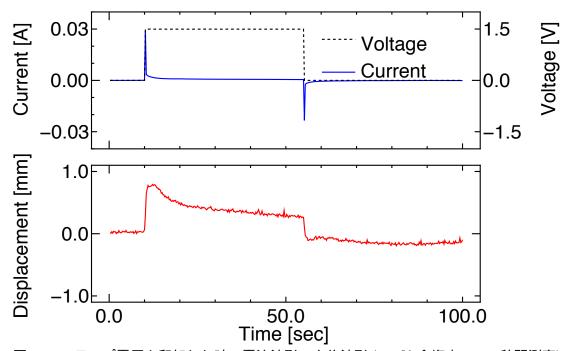
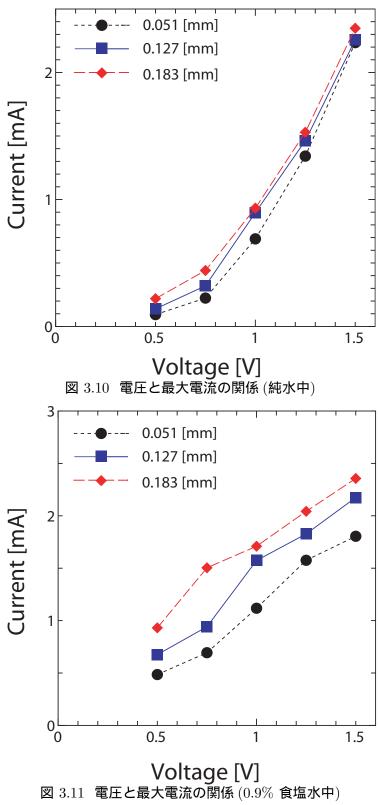
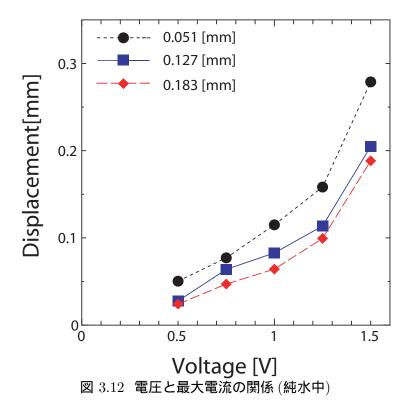
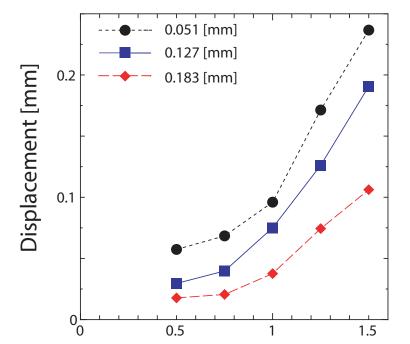


図 3.9 ステップ電圧を印加した時の電流波形,変位波形 (0.9% 食塩水,100 秒間測定)







Voltage [V]図 3.13 電圧と最大電流の関係 (0.9% 食塩水中)

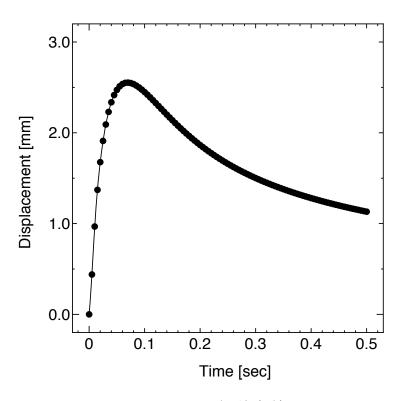


図 3.14 IPMC の変形解析結果

#### 3.3.4 解析結果との比較

電気化学応答解析と変形応答解析を行い,実験結果との比較を行う.ただし,今回は解析に用いる パラメータはまだ実験条件と一致させていないので,定量的な検討は行わず,定性的な検討のみを 行う.

変形応答解析については,??と同様に解析を行う.

#### (a) 変位波形の確認

解析によって求められた IPMC はり先端の変位波形を図 3.14 に示す.

前方運動,後方運動を解析モデルによって表現することができ,実験結果(図 3.8,図 3.9)と同様の変位波形が得られた.

#### (b) 板厚と変位の関係

実験と同様に厚さの異なる  $\mathrm{IPMC}($ 板厚:  $0.05\mathrm{mm}$ ,  $0.12\mathrm{mm}$ ,  $0.18\mathrm{mm}$ ,  $0.36\mathrm{mm}$ ) について解析を行う. それぞれの板厚における内部のひずみ波形, 変位波形を図 3.15, 図 3.16 に示す. ただし,図 3.15 のひずみはそれぞれ変位が最大となる時間のグラフである.

IPMCの膜厚が変化しても陽極,陰極付近のひずみの立ち上がりの様子はほとんど変化せず,平坦な部分の幅が変化するだけである.内部粒子によって生じるひずみが曲げモーメントとして IPMC

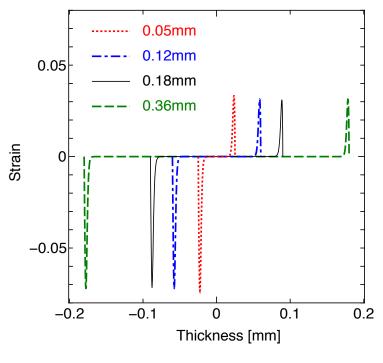


図 3.15 板厚が異なる場合のひずみ波形

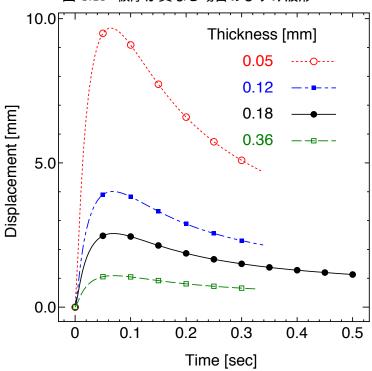


図 3.16 板厚が異なる場合の変位波形

に作用すると考えると,膜厚に比例してモーメントが大きくなるといえる.

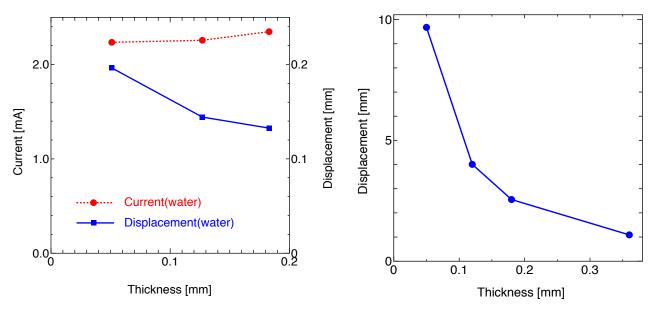


図 3.17 板厚とひずみの関係 (実験,電圧一定)

図 3.18 板厚と変位の関係 (解析,電流一定)

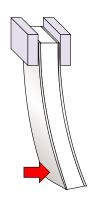
一方, IPMC の曲げ剛性は

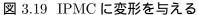
$$EI = E_1 \frac{bh_1^3}{12} + E_2 \frac{b(h^3 - h_2^3)}{12}$$
(3.5)

となり,膜厚の3乗に比例して大きくなる.したがって,膜厚が厚くなるにしたがって変位量は小さくなる.

図 3.10 と図 3.12 を膜厚で整理すると図 3.17 となる.また,図 3.16 も同様に膜厚で整理すると図 3.18 となる.実験結果 (図 3.17) と解析結果 (図 3.18) を比較すると,どちらも同様の結果を示しており,解析モデルによって,実際の IPMC の特性を表現できるといえる.

ただし,今回使用した解析モデルは電流値を入力として与える必要があり,厳密には実験と同様の 条件で解析ができたとは言えない.膜厚が厚くなると本来は電流の値も大きくなるため,解析に与 える電流値も大きくするべきであるが今回は入力電流を一定とした.しかし,電流値の上昇よりも, 曲げ剛性の上昇の方が大きいため,全体の傾向は今回の方法で捉えられるといえる.





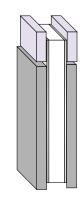


図 3.20 IPMC を拘束する

### 3.4 内部現象と変形の連成効果の確認

#### 3.4.1 変形と内部現象の関係

??節で説明したように, IPMC は変位を与えると逆起電力が発生し, センサとしての機能もあるということが知られている.

しかし,現在の解析モデルでは内部の現象が,IPMC の変形へ与える影響しか考慮されていない (図??). そこで,IPMC の内部現象と変形が互いにどのような影響を及ぼしあっているのかを調査 し,連成現象を考慮した解析モデル開発へのアプローチとする.

#### 3.4.2 実験方法

実験 1 IPMC に変形を与え,電流波形,電圧波形を測定する(図 3.19).変形によって内部の粒子が 移動し,電荷の偏りが生じ,電流,電圧に変化が起こると考えられる。

実験 2 IPMC を変形を拘束して電圧を印加し、拘束なしで電圧を印加した場合との違いを確認する (図 3.20). 変形を拘束することによって、内部の粒子が移動しにくくなり電流、電圧に変化が 起こると考えられる.

#### 3.4.3 実験結果および検討

#### (a) 実験 1

#### 実験結果

純水中で IPMC を弾き,変位を与えて電流波形を測定した結果を図 3.22 に示し,比較のために変位を与えない場合の波形を図 3.21 に示す.変形を与えたことによる電流波形,電圧波形の変化は図 3.21,図 3.21 からは確認できない.

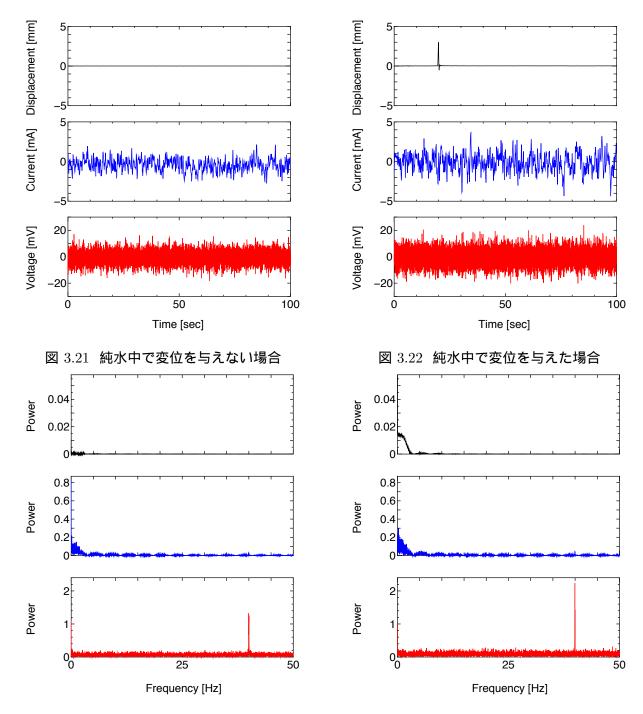


図 3.23 純水中で変位を与えない場合 (スペクトル 図 3.24 純水中で変位を与えた場合 (スペクトル 解析)

また,それぞれの波形のスペクトル解析を行ったものを図 3.23,図 3.24 に示す.図 3.23,図 3.24 からも変形による電流,電圧への影響は確認できない.食塩水中でも同様の結果となった.

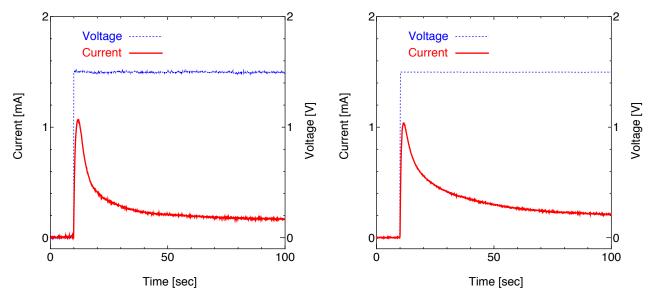


図 3.25 純水中で拘束して電圧印加した場合

図 3.26 純水中で拘束せず電圧印加した場合

### (b) 実験 2

### 実験結果

IPMC を絶縁体の板で挟んで変位を拘束し、電圧を印加した.拘束した場合と拘束しなかった場合の実験結果を図 3.25、図 3.26に示す.図 3.25、図 3.26 からは変位を拘束した場合としない場合の違いは確認できない.食塩水中での実験でも同様の結果となった.

### (c) 検討

今回使用した IPMC では,変形と内部現象の連成現象は確認できなかった.

その理由として,IPMC 表面の電極の抵抗が大きいことが考えられる.今回使用した IPMC の電極の抵抗は  $2.43\times 10^5\Omega/m$  である.これは他の研究で利用されている IPMC(数  $\Omega/m^{(7)}$ ) と比べ,およそ 200000 倍である.さらに,抵抗率を求めると  $7.56\times 10^{-3}$  であり,通常の白金  $(1.04\times 10^{-7})$  と比較しても大きいことがわかる.

また,電極の密度を測定すると通常の白金のおよそ 1/150 である.電極内部に空洞が多いため,抵抗が大きくなっていると考えられる.

IPMCに変形を加えると、陽イオンや水分子などの粒子が移動してIPMC内部に電荷の偏りが生じている.しかし、IPMC表面の白金の抵抗が大きく、電極としての役割を果たせていないため、IPMC保持給電部付近のみの電荷の偏りしか検出できず、今回の実験では明確な反応を確認できなかったものと考えられる.

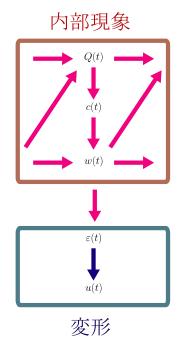


図 3.27 従来の一方向解析モデル

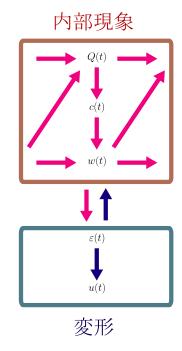


図 3.28 内部現象と変形の連成解析モデル

### 3.4.4 内部現象と変形の連成解析モデル

今回,行った実験では内部現象と変形の関係は確認できなかったが,IPMCをセンサとしても使用できることから,変形が内部現象に何らかの影響を与えることは明らかである.

しかし,現在の解析モデルは内部現象から変形への1 方向の影響しか考慮していない (図 3.27).今後,より詳しい解析モデルを開発するには変形から内部現象への影響を考慮し,連成解析モデルを開発する必要がある (図 3.28).

## 第 4 章

# 水和陽イオン移動・水分子拡散・構造連成 解析手法

## **4.1 姜ら・田所らの IPMC 解析の流れ**

IPMC の変形は,高分子内部の水和陽イオン・水分子の移動および拡散に大きく依存するため,水和陽イオンおよび水分子の濃度が注目すべき重要な物理量となる.それらの粒子について電気化学・力学的モデルの観点からモデルを作成し,解析をしている例として姜らおよび田所らの研究が挙げられる.

姜らの解析では、Popvic らの IPMC に関する研究を基に解析手法を提案し、厚さ方向 1 次元の有限要素解析をおこなっている.また、空気中における IPMC の屈曲を前提としたモデルに基づいて解析をおこなっている.実際の現象では水和陽イオンの移動と水分子の拡散は同時に起こるが、水和陽イオンの移動時間は水分子の拡散時間と比較し、電圧印加後のごく短時間で終了することから、水和陽イオンの解析後に水分子拡散の解析している.

姜らが解析に用いている 1 次元支配方程式を以下に示す.

• 水和陽イオン電荷量の支配方程式

$$\frac{\partial Q(x,t)}{\partial t} = \frac{kT}{\eta} \frac{\partial^2 Q(x,t)}{\partial x^2} - \frac{e}{\eta \varepsilon S_T} \left( \int_0^t i(\tau) d\tau + Q(x,t) - Q(x,0) \right) \frac{\partial Q(x,t)}{\partial x}$$
(4.1)

- ただし,

$$Q(x,t) = 0$$
 
$$Q(d,t) = NeScd \tag{4.2}$$
 
$$Q(x,0) = NeScx$$

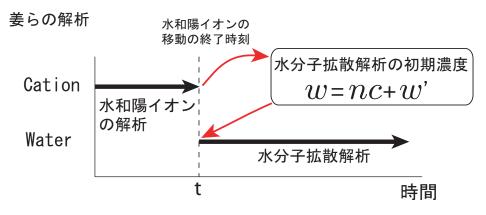


図 4.1 姜らの解析の流れ

### ● 水分子の拡散方程式

$$\frac{\partial w(x,t)}{\partial t} = \frac{kT}{\eta'} \frac{\partial^2 w(x,t)}{\partial x^2} \tag{4.3}$$

- ただし,

$$\frac{\partial w(0,t)}{\partial x} = 0, \quad \frac{\partial w(d,t)}{\partial x} = 0 \tag{4.4}$$

$$w(x,t_0) = nc(x,t_0) + w'(x,t)$$
(4.5)

$$\left(egin{array}{lll} w(x,t_0) &: 水分子拡散解析へ移行した時刻  $t_0$ の水分子濃度  $n &: & & & & & & & \\ n &: & & & & & & & \\ c(x,t) &: & & & & & & & \\ w' &: & & & & & & & \\ & & & & & & & & \\ \end{array}
ight)$  が知しない水分子 $\left(-\right)$$$

一方,田所らは IPMC の実験から解析モデル・解析手法を提案し,厚さ方向 1 次元の解析をしている.また,解析モデルとして水中における IPMC の屈曲を前提としたモデルを作成している.

姜らは,水和陽イオンの解析をおこなった後に水分子拡散の解析へと移る解析手法を提案しているが,田所らは水和陽イオンと水分子拡散を同時刻で解析する手法を提案しており,姜らと比較してより厳密に実際の現象の解析をおこなっている.

田所らの解析に用いられている1次元支配方程式を以下に示す.

### • 水和陽イオン電荷量の支配方程式

$$\frac{\partial Q(x,t)}{\partial t} = \frac{kT}{\eta} \frac{\partial^2 Q(x,t)}{\partial x^2} + \frac{kT}{\eta} \frac{\partial \ln w(x,t)}{\partial x} \frac{\partial Q(x,t)}{\partial x} - \frac{e}{\eta \varepsilon S} \left( \int_0^t i(\tau) d\tau + Q(x,t) - Q(x,0) \right) \frac{\partial Q(x,t)}{\partial x} \tag{4.6}$$

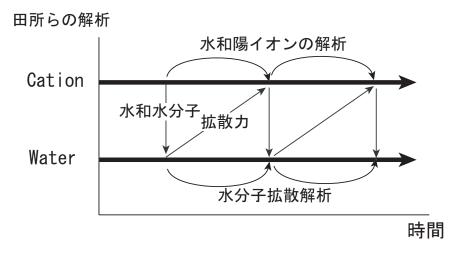


図 4.2 田所らの解析の流れ

- ただし,

$$Q(x,t) = 0$$
 
$$Q(d,t) = NeScd \tag{4.7}$$
 
$$Q(x,0) = NeScx$$

### • 水分子の拡散方程式

$$\frac{\partial w(x,t)}{\partial t} = \frac{kT}{\eta'} \frac{\partial^2 w(x,t)}{\partial x^2} \tag{4.8}$$

ただし、

$$w(0,t) = w_0$$

$$w(d,t) = w_0 \tag{4.9}$$

## 4.2 IPMCに生じる連成現象

### 4.2.1 水和陽イオン移動と水分子拡散の連成現象

イオン導電性高分子内部を移動する粒子には水和陽イオンと自由水分子がある.水和陽イオンは,外部入力により生じる電場により陰極側へ移動する.水和陽イオンの移動により陰極側は濃度が増加,陽極側は減少する.また,水和陽イオンの移動は,それに水和した水分子である水和水分子の移動も意味し,水和水分子濃度も陰極側が増加,陽極側は減少する.

濃度差が生じた粒子には、濃度の高い方から低い方へとはたらく拡散力により、拡散現象が起こる.拡散力は同一種類の粒子すべてに同じ力がはたらく.ここで、高分子内部において拡散力がはたらく粒子は陽イオンおよび水分子である.水和陽イオンは陽イオンと水分子により構成されているため、拡散力は水和陽イオン自体にはたらくのではなく、それを構成する陽イオンおよび水分子(水和水分子)に、それぞれ濃度に比例した拡散力がはたらき、それらを合わせた力が水和陽イオン自体にはたらく見かけ上の拡散力となる.また、同一種類の粒子には同じ拡散力がはたらくため、周囲に存在する同じ水分子である自由水分子にも水和水分子と同様の拡散力がはたらく.

陽イオンおよび水和水分子は電場による静電気力により陰極側へ引き寄せられるが,電場の影響をほとんど受けない自由水分子は拡散力によって陽極側へ移動する.したがって,自由水分子の拡散は水和陽イオンが陰極側へ移動することによって生じる.

拡散力により自由水分子が拡散すると、全体の水分子の濃度差は減少する。全体の水分子濃度差が減少するため、高分子内部の水分子である自由水分子および水和水分子にはたらく拡散力は小さくなる。水和水分子にはたらく拡散力が小さくなると、水和陽イオンにはたらく見かけ上の拡散力も小さくなり、水和陽イオンの陰極側への移動を抑制しようとする力は小さくなる。よって、水和陽イオンの移動も自由水分子の拡散の影響を受ける。

つまり,水和陽イオンと自由水分子は互いに影響を与えるため,水和陽イオンの移動と自由水分子 の拡散は連成現象であると考えられる.

### 4.2.2 内部粒子の移動と構造変形の連成現象

外部入力を与えると, IPMC に生じる電場によって高分子内に存在する水和陽イオンが移動する.また,水和陽イオンが移動することにより自由水分子の拡散が起こる.したがって,電場の発生により内部粒子(水和陽イオンおよび自由水分子)の移動・拡散が起こる.内部粒子の移動・拡散によって,高分子内部の局所的な水分子濃度変化による体積変化が起こることで IPMC は屈曲する.

内部粒子の移動・拡散により IPMC は屈曲を起こすが,その屈曲により高分子内部には応力が分布する.応力の分布により生じる応力勾配は,高分子内部を移動・拡散する内部粒子に力としてはたらく.つまり,IPMC の屈曲によって内部粒子は,その移動・拡散を促進あるいは抑制する力を受けながら高分子内部を移動・拡散する.また,生じる応力勾配は,IPMC が屈曲するにつれ,屈曲の内側と外側の応力差が大きくなるため,応力勾配は大きくなり,それに比例した力が内部粒子にはたらく.

したがって,内部粒子が移動することにより IPMC の構造は変形するが,変形により生じる応力によって内部粒子には力がはたらき,粒子の移動と拡散に影響を与えるため,内部粒子の移動と構造変形は連成現象と考えられる.

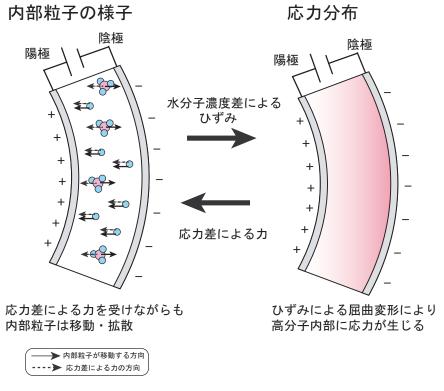


図 4.3 内部粒子の移動と構造変形の連成現象

## 4.3 水和陽イオン移動と水分子拡散の連成解析手法

### 4.3.1 解析の流れ

図 4.4 に水和陽イオンの移動と水分子拡散の連成解析における解析の流れを示す.

- 初期状態での既知量
  - 水和陽イオン電荷量  $Q_0$  , 水和陽イオン濃度  $c_0$  , 水和水分子濃度  $w_0$  , 自由水分子濃度  $w_{f0}$  , 水和水分子濃度と自由水分子濃度を合わせた全体の水分子濃度  $w_0$
- 水和陽イオン電荷量 Q(x, y, ∆t)
  - 式(2.10)の水和陽イオン電荷量の支配方程式を用いる.
  - 必要となる物理量は,前時刻での水和陽イオン電荷量 $Q_0$ および,全体の水分子濃度 $w_0$
- 水和陽イオン濃度  $c(x,y,\Delta t)$  および水和水分子濃度  $w_c(x,y,\Delta t)$ 
  - 式 (2.9) より水和陽イオン濃度  $c(x,y,\Delta t)$  は

$$c(x, y, \Delta t) = \frac{1}{NeS} \frac{\partial Q(x, y, \Delta t)}{\partial x}$$
(4.10)

で与えられる、

- 水和水分子濃度  $w_c(x,y,\Delta t)$  は水和陽イオン濃度に水和する水分子数を乗じたものとする .
- 全水分子濃度  $w(x, y, \Delta t)$ 
  - 式 (2.16) の水分子の拡散方程式を解くことにより求める.
  - 必要となる物理量は,現時刻の水和水分子濃度  $w_c(x,y,\Delta t)$  および,前時刻の自由水分子濃度  $w_{f0}$
  - 全水分子濃度を求めるための前提
    - \* 水和陽イオンに伴う水和水分子の移動により,水分子濃度差が生じ,自由水分子の拡 散現象が起こるとする.
    - \* 実際の現象では,水和陽イオンの移動と自由水分子の拡散は同時に起こる.
  - 求まる全水分子濃度は,水和陽イオン電荷量の支配方程式において水和水分子の拡散力と してはたらく.(図 4.4 の破線)
- 自由水分子濃度  $w_f(x, y, \Delta t)$ 
  - 全体の水分子濃度  $w_{\Delta t}$  から , 水和水分子濃度  $w_{c\Delta t}$  を差し引いた水分子濃度
  - 次ステップで水分子拡散方程式に用いる.
- ullet 水分子濃度変化により生じるひずみ  $arepsilon(x,y,\Delta t)$ 
  - 全水分子濃度  $w_f(x,y,\Delta t)$  を用いる.
  - 式(2.17)によりひずみを計算する.
- 変位量  $d(x, y, \Delta t)$ 
  - 水分子濃度変化によるひずみ $\varepsilon \Delta t$ を初期ひずみとして構造解析をおこない,変位を求める.

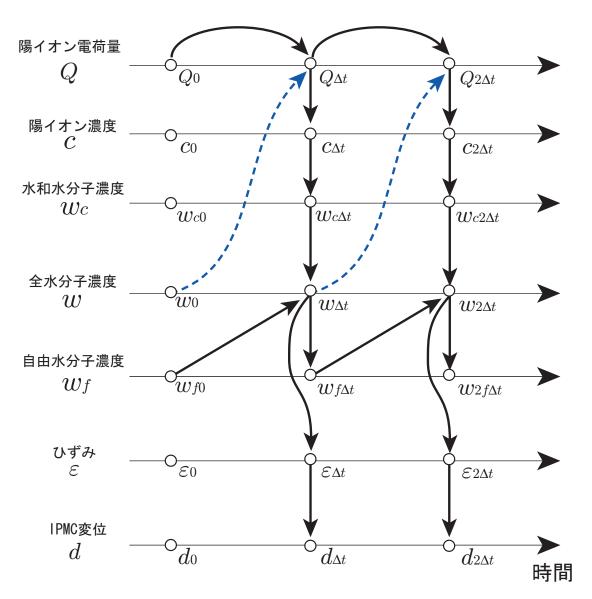


図 4.4 水和陽イオン移動・水分子拡散連成解析の流れ

### 4.3.2 水和陽イオンに関する支配方程式の有限要素式

式 (2.10) の水和陽イオン電荷量の支配方程式

$$\eta \frac{\partial Q(x,y,t)}{\partial t} = kT \frac{\partial^2 Q(x,y,t)}{\partial y^2} + nkT \frac{\partial \ln w(x,y,z)}{\partial x} \frac{\partial Q(x,y,t)}{\partial y}$$
$$-\frac{e}{\varepsilon S} \left( \int_0^t i(\tau)d\tau + Q(x,y,t) - Q(x,y,0) \right) \frac{\partial Q(x,y,t)}{\partial x}$$

に対して有限要素定式化をおこなう.

水和陽イオン電荷量 Q(x,y,t) および水分子濃度 w(x,y,t) は,内挿関数 ${f N}$ と節点における電荷量  ${f Q}({f t})$ ,水分子濃度 ${f w}({f t})$  を用いて

$$Q = \mathbf{N}^T \mathbf{Q}(t) \tag{4.11}$$
$$w = \mathbf{N}^T \mathbf{w}(t)$$

とあらわされる.

ここで,内挿関数  $\mathbf{N}^T$  を重み関数とし,水和陽イオン電荷量の支配方程式に対してガラーキン法を適用すると,

$$\int_{v} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} dv \dot{\mathbf{Q}}(t) = -\frac{kT}{\eta} \int_{v} \frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \mathbf{Q}(t) 
+ \frac{nkT}{\eta} \int_{v} \frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial \mathbf{N} w(t)} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \mathbf{Q}(t) 
- \frac{e}{\eta \varepsilon S} \int_{0}^{t} i(\tau) d\tau \int_{v} \mathbf{N}^{T} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \mathbf{Q}(t) 
- \frac{e}{\eta \varepsilon S} \int_{v} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} \left( \mathbf{Q}(t) - \mathbf{Q}(0) \right) \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \mathbf{Q}(t)$$
(4.12)

が導かれる、したがって、最終的な水和陽イオン電荷量の有限要素式は

$$\mathbf{A}\dot{\mathbf{Q}}(t) = \mathbf{B}\mathbf{Q}(t) \tag{4.13}$$

$$\begin{pmatrix}
\mathbf{A} &= \int_{v} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} dv \\
\mathbf{B} &= \frac{kT}{\eta} \int_{v} \left( -\frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} + n \frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial \mathbf{N} \boldsymbol{w}(t)} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \right) dv \\
&- \frac{e}{\eta \in S} \int_{v} \left( \int_{0}^{t} i(\tau) d\tau \mathbf{N}^{T} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} dv \left( \mathbf{Q}(t) - \mathbf{Q}(0) \right) \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \right) dv
\end{pmatrix}$$

となる.

また,水和陽イオン濃度 c(x,y,t) は,式 (2.9) より水和陽イオン電荷量 Q(x,y,t) を用いて

$$c(x,y,t) = \frac{1}{NeS} \frac{\partial Q(x,y,t)}{\partial x}$$
(4.14)

として与えられる.

水和陽イオン濃度 c(x,y,t) は,内装関数Nと領域内の節点における陽イオンc(t) を用いて

$$c(x, y, t) = \mathbf{N}^T \mathbf{c}(t) \tag{4.15}$$

としてあらわされ,式(2.10)に対して内挿関数Nを用いてガラーキン法を適用すると

$$\int_{v} \mathbf{N}^{t} \mathbf{N} dv \mathbf{c}(t) = \frac{1}{NeS} \int_{v} \mathbf{N}^{T} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \mathbf{Q}(t)$$
(4.16)

が導かれる.

よって,水和陽イオン濃度の有限要素式は

$$\mathbf{A}\mathbf{c}(t) = \mathbf{C}\mathbf{Q}(t) \tag{4.17}$$

$$\begin{pmatrix} \mathbf{A} &=& \int_{v} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} dv \\ \mathbf{C} &=& \frac{1}{NeS} \int_{v} \mathbf{N}^{T} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \end{pmatrix}$$

として与えられる.

### 4.3.3 水分子拡散方程式の有限要素定式

式(2.16)の水分子の拡散方程式

$$\frac{\partial w(x,y,t)}{\partial t} = \frac{kT}{\eta'} \frac{\partial^2 w(x,y,t)}{\partial x^2}$$

に対して有限要素定式化をおこなう.

水分子濃度 w(x,y,t) は,内挿関数Nと節点における水分子濃度 w(t) を用いて

$$w(x, y, t) = \mathbf{N}^T \boldsymbol{w}(t) \tag{4.18}$$

とあらわされる.式(2.13)に対して内挿関数を用いてガラーキン法を適用すると,

$$\int_{v} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} dv \dot{\boldsymbol{w}}(t) = \frac{kT}{\eta'} \int_{v} \frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \boldsymbol{w}(t)$$
(4.19)

が導かれる.

したがって,水分子拡散方程式の有限要素式

$$\mathbf{A}\dot{\boldsymbol{w}}(t) = \mathbf{E}\boldsymbol{w}(t) \tag{4.20}$$

$$\begin{pmatrix} \mathbf{A} &=& \int_{v} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} dv \\ \mathbf{E} &=& \frac{kT}{n'} \int_{v} \frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \end{pmatrix}$$

が得られる.

### 4.3.4 構造解析の有限要素式

構造解析の有限要素式

$$\mathbf{K}\boldsymbol{u} = \boldsymbol{f} \tag{4.21}$$

において,初期ひずみ $\varepsilon_0$ を与えて解析する場合,fベクトルは,

$$f = \int \mathbf{B}^T \mathbf{D} \boldsymbol{\varepsilon_0} \tag{4.22}$$

とあらわされる.

IPMC の構造解析の場合,fベクトル内の $\varepsilon_0$ ベクトルには,水和陽イオン移動と自由水分子拡散の連成解析によって得られる水分子濃度変化によるひずみを用いる.ただし,ひずみが生じる部分は IPMC を構成する高分子部分であるため,式 (4.22) のDマトリクスには,高分子のヤング率とポアソン比を用いて作成する.また,式 (4.21) のKマトリクスを作成する場合には,金属電極と高分子のそれぞれのヤング率とポアソン比を用いて複合材としてのマトリクスを作成する.

### 4.4 内部粒子の移動・拡散と構造変形の連成解析手法

### 4.4.1 解析の流れ

図 4.5 に内部粒子の移動・拡散と構造変形の連成解析の流れを示す.図 4.5 では, IPMC の構造変形による内部粒子への影響を考慮するため,水和陽イオンと水分子の連成解析の流れ(図 4.4)とは多少異なった解析の流れとなる.水和陽イオン移動と水分子拡散の連成解析の流れと比較すると,内部粒子の移動・拡散と構造変形の連成解析の流れでは,内部粒子の連成解析後,構造解析により IPMC の変位を求めた後,内部に分布する応力を計算し,その応力勾配を用いて次ステップの水和陽イオン電荷量解析および水分子拡散解析をおこなう点が異なっている.

### 4.4.2 水和陽イオン電荷の支配方程式

構造変形による連成効果を考慮した場合,式 (2.10)の水和陽イオン電荷量の支配方程式は構造変形による連成効果は考慮されていないため,解析には用いることはできない.したがって,水和陽イオンのモデルから新たに力学的な力のつりあい式を作成し,支配方程式を導出する必要がある.

構造変形で生じる応力による力を追加した水和陽イオンのモデルを図 4.6 に示す.この場合,水和陽イオンにはたらく力は,静電気力,陽イオンと水和水分子それぞれにはたらく拡散力,粘性抵抗力,応力による力となる.これらの力のつりあいより

$$\eta v(x,y,t) + kT \frac{\partial \ln c(x,y,t)}{\partial x} + nkT \frac{\partial \ln w(x,y,t)}{\partial x} + \frac{V_m}{N} \frac{\partial \sigma_x(x,y,t)}{\partial x} = eE(x,y,t)$$
(4.23)

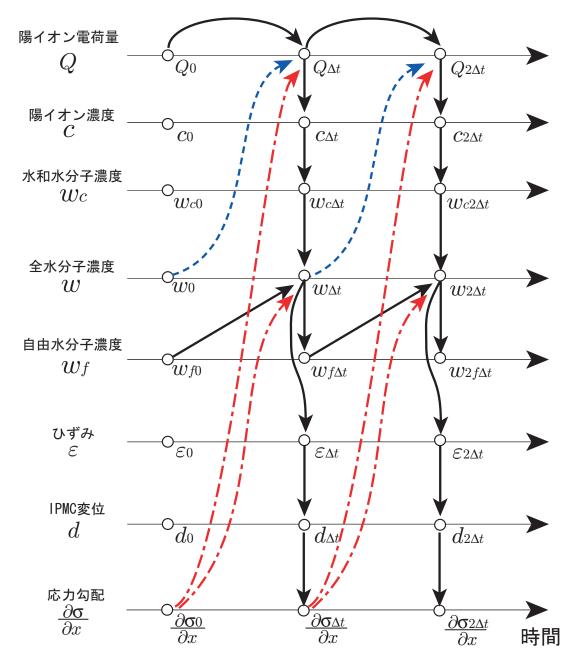


図 4.5 内部粒子の移動・拡散と構造変形の連成解析の流れ

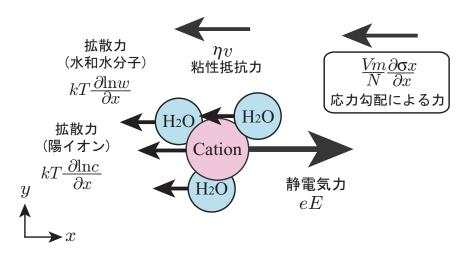


図 4.6 水和陽イオンにはたらく力

### が得られる.

また,水和陽イオンの流束は式 (2.7),連続の式は式 (2.6),水和陽イオン濃度と水和陽イオン電荷量の関係式は式 (2.9) である.したがって式 (4.23) より,構造変形による連成現象を考慮した水和陽イオン電荷量の支配方程式

$$\frac{\partial Q(x,y,t)}{\partial t} = \frac{kT}{\eta} \frac{\partial^2 Q(x,y,t)}{\partial x^2} + \left(\frac{nkT}{\eta} \frac{\partial \ln w(x,y,t)}{\partial x} + \frac{V_m}{N} \frac{\partial \sigma_x(x,y,t)}{\partial x}\right) \frac{\partial Q(x,y,t)}{\partial x} - \frac{e}{\varepsilon S} \left(\int_0^t i(\tau)d\tau + Q(x,y,t) - Q(x,y,0)\right) \frac{\partial Q(x,y,t)}{\partial x} \tag{4.24}$$

#### が導かれる.

また,式 (4.24) に対して有限要素定式化をおこなう.電荷量 Q(x,y,t),水分子濃度 w(x,y,t),応力  $\sigma_x(x,y,t)$  は,内挿関数Nと節点における電荷量Q(t),水分子濃度w(t),応力 $\sigma_x(t)$  を用いて

$$Q(x, y, t) = \mathbf{N}^{T} \mathbf{Q}(t)$$

$$w(x, y, t) = \mathbf{N}^{T} \mathbf{w}(t)$$

$$\sigma_{x}(x, y, t) = \mathbf{N}^{T} \boldsymbol{\sigma}_{x}(t)$$

$$(4.25)$$

とあらわされる.内挿関数  $\mathbf{N}^T$  を重み関数とし,式 (4.24) にガラーキン法を適用すると

$$\int_{v} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} dv \dot{\mathbf{Q}}(t) = -\frac{kT}{\eta} \int_{v} \frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \mathbf{Q}(t) 
+ \frac{nkT}{\eta} \int_{v} \frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial \mathbf{N} w(t)} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \mathbf{Q}(t) 
+ \frac{V_{m}}{\eta N} \int_{v} \mathbf{N}^{T} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \boldsymbol{\sigma}_{x}(t) \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \mathbf{Q}(t) 
- \frac{e}{\eta \varepsilon S} \int_{0}^{t} i(\tau) d\tau \int_{v} \mathbf{N}^{T} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \mathbf{Q}(t) 
- \frac{e}{\eta \varepsilon S} \int_{v} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} (\mathbf{Q}(t) - \mathbf{Q}(0)) \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \mathbf{Q}(t)$$
(4.26)

が得られる.したがって,構造変形による連成効果を考慮した水和陽イオン電荷量支配方程式の有限要素式は

$$\mathbf{A}\dot{\mathbf{Q}}(t) = \mathbf{B}'\mathbf{Q}(t) \tag{4.27}$$

$$\begin{pmatrix}
\mathbf{A} &= \int_{v} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} dv \\
\mathbf{B'} &= \frac{kT}{\eta} \int_{v} \left( -\frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} + n \frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial \mathbf{N} w(t)} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \right) dv \\
&+ \frac{V_{m}}{\eta N} \int_{v} \mathbf{N}^{T} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \boldsymbol{\sigma}_{x}(t) \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \\
&- \frac{e}{\eta \varepsilon S} \int_{v} \left( \int_{0}^{t} i(\tau) d\tau \mathbf{N}^{T} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} + \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} \left( \mathbf{Q}(t) - \mathbf{Q}(0) \right) \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} \right) dv
\end{pmatrix}$$

となる.

また,水和陽イオン濃度 c(x,y,t) は式 (4.17) より求められる.

### 4.4.3 水分子濃度の拡散方程式

構造変形による連成効果を考慮した場合,水分子の拡散方程式に関しても水分子にはたらく力のつりあい式から新たに拡散方程式を導出する必要がある.構造変形で生じる応力勾配により水分子にはたらく力を追加した水分子のモデルを図 4.7 に示す.この場合,水分子が受ける力は,粘性抵抗力,拡散力および,応力勾配による力である.これらの力のつりあいより

$$\eta' v(x, y, t) = kT \frac{\partial \ln w(x, y, t)}{\partial x} + \frac{V_m}{N} \frac{\partial \sigma_x(x, y, t)}{\partial x}$$
(4.28)

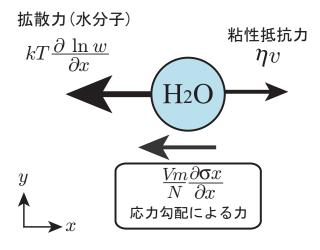


図 4.7 水分子にはたらく力

 $\left(egin{array}{cccccccc} \eta' & : & 水分子の粘性係数 \ <math>v_w(x,y,t) & : & \kappa分子の速度 \ k & : & ボルツマン定数 \ T & : & 絶対温度 \ w(x,y,t) & : & \kappa分子濃度 \ V_m & : & 部分モル体積 \ N & : & アボガドロ数 \ \sigma_x(x,y,t) & : & 厚さ方向に垂直なの応力 <math>
ho$ 

### が得られる.

ここで , 水分子の拡散において満たすべき流束は式 (2.14) , 連続の式は式 (2.15) である . 式 (2.14) , 式 (2.14) および式 (4.28) を用いて構造変形による連成効果を考慮した水分子拡散方程式

$$\frac{\partial w(x,y,t)}{\partial t} = \frac{kT}{\eta'} \frac{\partial^2 w(x,y,t)}{\partial x^2} + \frac{V_m}{\eta' N} \frac{\partial \sigma_x(x,y,t)}{\partial x} \frac{\partial w(x,y,t)}{\partial x}$$
(4.29)

が導かれる.

また,式 (4.29) に対して有限要素定式化をおこなう.水分子濃度 w(x,y,t),応力  $\sigma_x(x,y,t)$  は内挿関数Nと節点における水分子濃度w(t),応力 $\sigma_x(t)$  により

$$w(x, y, t) = \mathbf{N}^T \mathbf{w}(t) \tag{4.30}$$

$$\sigma_x(x, y, t) = \mathbf{N}^T \boldsymbol{\sigma_x}(t)$$

とあらわされる.内挿関数  $\mathbf{N}^T$  を重み関数として式 (4.29) にガラーキン法を適用し ,

$$\int_{v} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} dv \dot{\boldsymbol{w}}(t) = \frac{kT}{\eta'} \int_{v} \frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv \boldsymbol{w}(t)$$
(4.31)

$$+ \frac{V_m}{\eta' N} \int_v \mathbf{N}^T \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial y} \boldsymbol{\sigma_x}(t) \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial y} dv \boldsymbol{w}(t)$$

が得られる.

したがって、構造変形による連成効果を考慮した水分子拡散方程式の有限要素式は

$$\mathbf{A}\dot{\boldsymbol{w}}(t) = \mathbf{E}'\boldsymbol{w}(t)$$

$$\begin{pmatrix} \mathbf{A} &= \int_{v} \mathbf{N}^{T} \mathbf{N} dv \\ \mathbf{E}' &= \frac{kT}{\eta'} \int_{v} \frac{\partial \mathbf{N}^{T}}{\partial x} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x} dv + \frac{V_{m}}{\eta' N} \int_{v} \mathbf{N}^{T} \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial y} \boldsymbol{\sigma}_{\boldsymbol{x}}(t) \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial y} dv \end{pmatrix}$$

$$(4.32)$$

となる.

## 第5章

# 連成現象を考慮した解析および検討

## 5.1 問題設定

本解析全体を通して対象とする IPMC を図 5.1 に示す . IPMC のサイズは長さ  $20 \, \mathrm{mm}$  ,幅  $1.8 \, \mathrm{mm}$  ,厚さ  $0.1805 \, \mathrm{mm}$  とする . また , IPMC を構成するイオン導電性高分子の厚さを  $0.18 \, \mathrm{mm}$  ,電極の厚さを片面が  $0.25 \, \mu \mathrm{m}$  とする . IPMC を構成する材料としてイオン導電性高分子には Nafion ,金属電極には Pt を用いる . その他の解析に必要となる材料定数は ,田所らの論文および姜らの論文で用いられているものを使用する . それらの材料定数および物理定数を表 5.1 に示す .

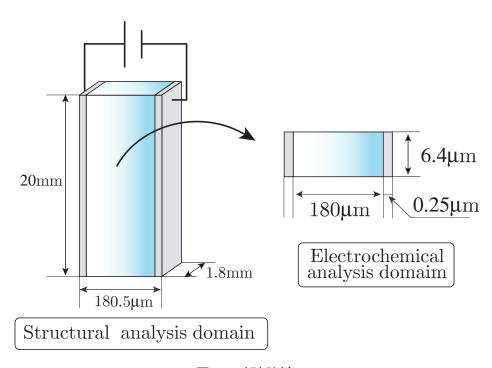


図 5.1 解析対象

Nafion <b>のヤング率</b> [GPa]	0.23
Pt のヤング率 [GPa]	146.8
Nafion のポアソン比	0.49
Pt のポアソン比	0.39
Nafion の誘電率 [C/m·V]	$2.8 \times 10^{-3}$
絶対温度 [K]	$2.93 \times 10^{2}$
初期陽イオン濃度 [mol/m <sup>3</sup> ]	$1.0 \times 10^{3}$
初期水分子濃度 [mol/m³]	$1.55 \times 10^{4}$
陽イオンに水和する水分子数	3.8
水和陽イオンの粘性係数 [N·sec/m]	$1.18 \times 10^{-11}$
自由水分子の粘性係数 [N·sec/m]	$1.16 \times 10^{-10}$
アボガドロ数 [/mol]	$6.02 \times 10^{23}$
電気素量 [C]	$1.6 \times 10^{-19}$
ボルツマン定数 [J/K]	$1.38 \times 10^{-23}$

表 5.1 解析に用いる定数類

また,IPMC は外部からの電気刺激によって内部粒子の移動・拡散が起こり,IPMC が変形する. そのため,外部からの電気刺激を意味する関数を設け,その関数を入力関数として用いて解析をおこなう.なお,解析で用いる外部入力には,IPMC に電圧を与えた際に流れる電流関数を用いる.また,外部入力関数に用いる電流は,ステップ電圧を与えた場合に流れる電流とし,管野らの実験で得られた値から近似関数を作成して解析に用いる.

図 5.2 に菅野らの電流測定結果を基に作成した近似関数を示す、図 5.2 より作成した関数は菅野らの電流測定結果を近似できている。

$$i(t) = 0.195 \exp(-30t) + 6.0 \times 10^{-3} \exp(-0.1t)$$
 (5.1)

### 5.1.1 解析条件

本解析には有限要素法を用いる.ここで,電極がイオン導電性高分子に一様に接合されている場合,水和陽イオンの移動および水分子の拡散現象は,IPMC の厚さ方向に沿って起こる.したがって,解析の効率を考慮して,水和陽イオン・自由水分子の移動・拡散の解析については,図 5.1 に示すように IPMC の一部の領域に対して 2 次元解析をおこなう.要素は 8 節点アイソパラメトリック要素とし,両電極付近における水和陽イオン濃度と水分子濃度の変化を詳細に把握するため,要素分割は両電極から 0.01mm を 100 分割,中央部分の 0.016mm を 50 分割とする.また,時間積分は前進差分法を用い,時間刻幅は  $1.0 \times 10^{-7}$  秒,解析ステップは  $5 \times 10^{6}$  とする.

また,構造解析では,内部粒子(水和陽イオン・自由水分子)の解析により得られる厚さ方向のひ

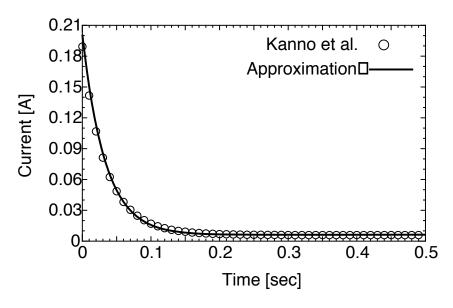


図 5.2 作成した近似関数

ずみを,長さ方向および幅方向に与え,初期ひずみに用いて解析をおこなう.IPMC は厚さが非常に薄い材料であるため,本解析に用いる要素には8 節点アイソパラメトリックシェル要素を用いる.拘束条件として,図 5.1 の IPMC の上端を完全拘束し,要素分割は長さ方向に5 分割,幅方向に2 分割とする.

## 5.2 姜ら・田所らの解析手法の比較

### 5.2.1 はじめに

第2章で述べた姜ら・田所らの研究では,解析に用いている支配方程式を含めて共通した点が多いが,水分子の拡散解析の扱い方が大きく異なる.姜らは,ある時刻において水和陽イオンの解析から水分子の拡散解析へ切り替えて解析をおこなっている.この解析手法は,水和陽イオンの解析あるいは水分子の拡散解析のどちらか一方だけを解析する手法であるため,同時刻で両方の解析を必要とする田所らの解析手法よりも解析の効率が良い.

そこで、その他の条件を合わせて解析をおこない、水和陽イオン濃度、水分子濃度、およびIPMCの最大変位を比較することで、水分子の拡散解析を水和陽イオンの解析と同時に解析する必要性について検討する。

### 5.2.2 解析条件

姜らの解析手法では水和陽イオンの解析後,ある時刻において水分子拡散解析へと切り替える.そのため,水和陽イオンの解析から水分子拡散解析へ移行する時刻を決定する必要があり,また,その条件として水和陽イオンの移動が充分に定常状態へ至った後に水分子拡散解析へしなければならない.したがって,今回の解析では解析を移行する時刻を以下のように定める.

- 500 ステップ毎に,500 ステップ前の水和陽イオン濃度との濃度変化率を求め,その変化率が 0.1% 以下になれば,その時刻から水分子拡散解析を開始する
- ◆ 水和陽イオン濃度が大きく変化する陰極に最も近い節点における水和陽イオン濃度を判定に用いる

また,図 5.3 に 50000 ステップ (0.025 秒),100000 ステップ (0.05 秒),150000 ステップ (0.075 秒)において,500 ステップ前の水和陽イオン濃度との差の絶対値を示す.図 5.3 において 0.0mm は陽極,0.18mm は陰極を意味し,陽極側と陰極側で濃度差の絶対値に変化がみられる.特に陰極側の濃度差の絶対値が大きい.また,図 5.3 には代表して 3 つのステップ時における濃度差の絶対値を示したが,全体を通じて 500 ステップ毎に濃度差の絶対値を評価した場合も,陰極に最も近 い節点における濃度差の絶対値が最大であった.このことから,陰極に最も近 い節点における濃度差によって定常状態へ至った判定をする妥当性を確認できた.

また,図 5.4 に陰極に最も近い節点での 500 ステップ毎の水和陽イオン濃度の変化割合を示す.横軸が時刻,縦軸が 500 ステップ前の水和陽イオン濃度との濃度変化率である.図 5.4 で,時刻 0.004 秒までは 500 ステップ毎の濃度差が大きくなるため濃度変化率も大きくなるが,次第に濃度が変化しなくなるため,変化率が小さくなっている.よって図 5.4 から,判定間隔は 500 ステップで充分であることがわかる.

また,この条件において,水和陽イオン濃度が定常状態へ至ったと判定された時刻は 0.07835 秒であった.したがって,この時刻をもって水和陽イオンの解析から水分子拡散解析へ移行する.

### 5.2.3 水和陽イオン移動・水分子拡散解析

図 5.5 に水和陽イオン濃度の解析結果を示す.図 5.5(a) が姜らの手法による結果,図 5.5(b) が田所らの手法による結果であり,図 5.5 の (a),(b) 共に 0mm が陽極,0.18mm が陰極を示す.陽極側では減少し,陰極側では急激に上昇している.両手法での結果を比較すると,定量的にも定性的にもほぼ一致しており,大きな違いはみられない.

図 5.6 に水分子拡散解析結果を示す.濃度が陽極側では減少し,陰極側では増加する傾向および濃度差が一度は大きくなるが次第に減少する傾向は,両解析結果にみられる傾向である.しかし両結

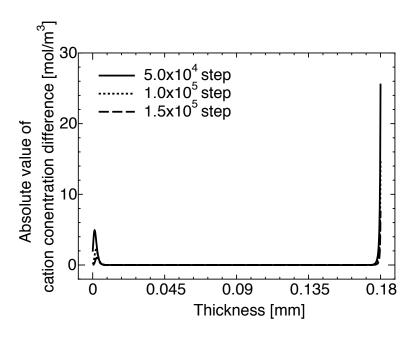


図 5.3 水和陽イオン濃度差の絶対値

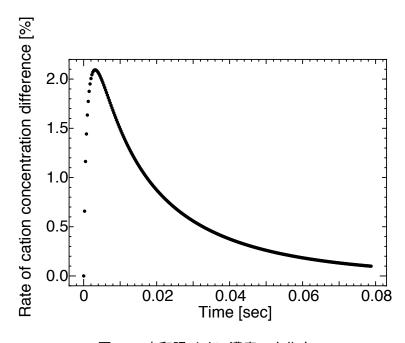
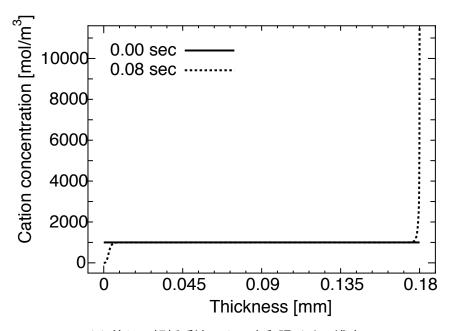
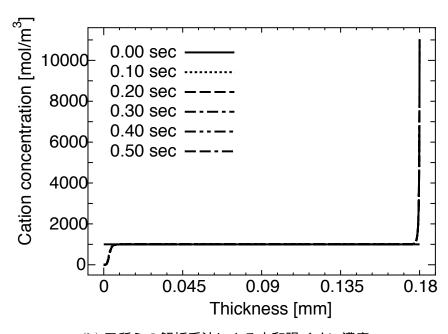


図 5.4 水和陽イオン濃度の変化率

果を比較すると,時刻 0.10 秒において姜らの手法による結果は,田所らの手法による結果よりも両極付近での濃度変化量が大きい.これは,田所らの手法による結果では時刻 0.00 秒から水分子拡散解析をおこなうが,姜らの手法を用いた結果では,時刻 0.07835 秒まで水分子拡散解析をおこなって



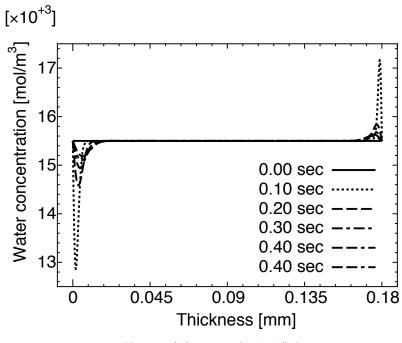
(a) 姜らの解析手法による水和陽イオン濃度



(b) 田所らの解析手法による水和陽イオン濃度

図 5.5 姜らおよび田所らの手法による水和陽イオン濃度

いないためである。姜らの手法を用いた結果は,時刻 0.07835 秒までは水和陽イオン濃度が増加するにつれ,水和水分子濃度も陰極側が増加するが,水分子の拡散は起こらないことになるため,水分子濃度全体の変化は,水和水分子濃度の変化のみに依存することになる。しかし,田所らの手法による結果では,時刻 0 秒から水分子拡散を解析するため,陰極側では水和水分子濃度は増加するが,



(a) 姜らの手法による水分子濃度

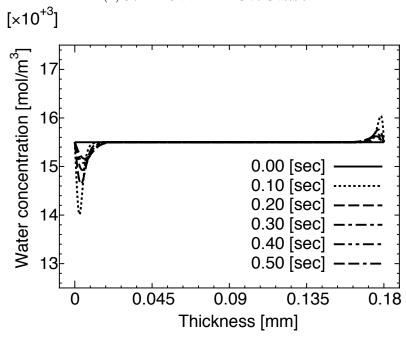


図 5.6 姜らおよび田所らの手法による水分子濃度

(b) 田所らの手法による水分子濃度

自由水分子が陽極側へ拡散し,陰極側の自由水分子濃度は減少する.水和水分子濃度と自由水分子 濃度を合わせた水分子濃度全体は,田所らの手法においては水和水分子濃度および自由水分子濃度 に依存する.したがって,自由水分子の拡散の有無が全体の水分子濃度の違いとしてあられている.

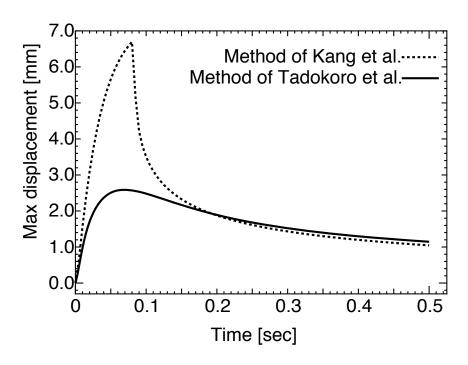


図 5.7 姜らおよび田所らの手法による IPMC 先端の変位

### 5.2.4 IPMC の構造解析

図 5.7 に最大変位となる IPMC 先端中央部の変位の時刻暦を示す . 0.0 秒から変位が増加し続けて 最大変位となり,その後減少する傾向は,両解析手法による結果で傾向が一致している.

ただし,0.0 秒から 0.2 秒までの変位は,両解手法の結果で大きく異なる.田所らの手法による解析結果では,緩やかに変位が増加・減少するのに対し,姜らの手法による解析結果では,約 0.08 秒までは急激に変位が増加し,その後は急激に減少している.また,この時刻は水分子拡散解析へ移行した時刻と一致している.このことから,両結果による変位の違いは 0.2 秒までの水分子濃度変化の違いによるものと考えられる.

実際の IPMC 屈曲変形では,変位の減少は滑らかに起こり,都井らの解析手法で得られた結果のように急激に変位が減少することはなく,田所らの手法による解析結果に定性的には非常に近い.このことより,水分子拡散は水和陽イオンの解析と同時に解析する必要があることがわかる.

## 5.3 水和陽イオン電荷と水分子拡散の連成解析

### 5.3.1 はじめに

前節では姜らと田所らの解析手法を比較し,水分子の拡散解析は水和陽イオンの解析と同時に解析 する必要があることを述べた.したがって本解析では,田所らの解析手法を用いて解析をおこなう. 田所らの解析手法は,水和陽イオン移動と水分子拡散の連成解析となっており,図 5.5,図 5.6,および図 5.7における田所らの手法による解析結果は連成解析による結果である.そこで本節は,田所らの手法を用いた解析結果についてさらに詳しく検討し,また連成効果による水和陽イオン移動および水分子拡散への影響を検討する.

### 5.3.2 水和陽イオンの解析

水和陽イオン濃度の解析結果を図 5.8 に示す.図 5.8 は全て横軸に高分子の厚さ,縦軸に水和陽イオン濃度を示しており,0mm が陽極,180mm が陰極である.また,図 5.8(a) が厚さ方向全体,図 5.8(b) が陽極部分を拡大,図 5.8(c) が陰極部分を拡大したものである.

図 5.8(a) より,初期濃度は一定であるが,時間が経過すると中央部分の濃度はほとんど変化せず, 陽極では濃度が減少し,逆に陰極では濃度が増加している.さらに,陽極側の濃度減少に比べて陰極 側の濃度は急激に増加している.

また,陽極部分を拡大した図 5.8(b) より,初期濃度の  $1000 \mathrm{mol/m^3}$  から次第に濃度が減少する様子がみられ,陽極側から濃度の減少が起こり,濃度が  $0 \mathrm{mol/m^3}$  となると陰極側へ濃度の減少が進む. さらに,0.00 秒から 0.10 秒までの濃度減少量に比べ,0.10 秒から 0.50 秒までの濃度減少量は小さい.

また,陰極部分を拡大した図 5.8(c) では,時間が経過すると陽極側で起こる濃度減少とは対称的に陰極に近い方から濃度が増加する.また,ある一定の濃度に漸近する傾向は陽極側の濃度変化と同じであるが,陰極側の最大変化幅は,陽極側の最大変化幅に比べて極端に大きい.また,濃度の変化がみられる領域は陽極側にくらべて小さい.

以上のことから,水和陽イオン濃度は時間が経過するにつれて陽極では濃度が減少,陰極では増加することがわかる.またこれは,陽イオンが陰極側へと引き寄せられて移動する理論と一致している.

### 5.3.3 水分子拡散の解析

図 5.9 に水分子濃度の解析結果を示す. 図 5.9(a) より,陽極側では濃度が減少,陰極側では濃度が増加し,陽極側の変化幅は陰極側の変化幅よりも大きいことがわかる.また,図 5.9(b) より,0.1 秒間で約  $14000 \mathrm{mol/m}^3$  まで急激に濃度が減少するが,時刻 0.50 秒では  $15200 \mathrm{mol/m}^3$  まで回復していることがわかる.また, 時間が経過すると初期濃度からの減少幅は小さくなるが,濃度が変化する領域は大きくなる.図 5.9(c) では,陽極側の濃度変化とは逆に,0.1 秒前後まで濃度は増加するがその後濃度は減少することがわかる.

### 5.3.4 IPMC 構造解析

図 5.10 に IPMC の自由端における変位の時刻歴を示す.図 5.10 より,時刻 0.08 秒前後までは変位が増加するが,その後はゆっくりと減少している.これは,図 5.10 の水分子拡散解析結果において,初期濃度からの変化幅が最も大きい時刻 0.10 秒前後と時間的にほぼ一致している.

田所らは IPMC 屈曲実験および解析をおこない,解析結果は実験結果と定量的にも定性的にも一致しており,本解析では田所らの解析手法を用いて解析をおこなったが,田所ら解析結果と比較すると,定量的には一致していない.これは,田所らの用いた外部入力関数が不明であるため,本解析では菅野らの実験測定結果から近似関数を作成して解析をおこなったためと考えられる.外部入力に大きく依存する IPMC の屈曲運動では,田所らが用いた外部入力関数と今回菅野らの論文を基に作成した近似外部入力関数が異なる可能性があり,定量的な比較はできないが,定性的には一致した.

### 5.3.5 連成効果の検討

前節で示した水和陽イオン濃度および水分子濃度は,水和陽イオンの移動および水分子拡散の連成現象を考慮した解析結果である.したがって,本節では連成項を含まない場合の解析をおこない,連成解析結果と比較することにより,連成効果が水和陽イオンの移動および水分子拡散に与える影響について検討をおこなう.

検討方法として,式(2.10)の水和陽イオン電荷量支配方程式中の連成項である右辺第2項を省略して解析をおこない,得られる水和陽イオン濃度および水分子濃度を連成項を含んだ支配方程式による解析結果と比較する.

図 5.11 は時刻 0.50 秒の水和陽イオン濃度である.図 5.11 では,連成項を含む場合と含まない場合における結果の違いはほとんどみられず,0.00 秒から 0.50 秒まで全体を通して両結果に大きな違いはみられなかった.

図 5.12 は連成項の有無により生じる水分子濃度差が最大となる時刻 0.02 秒における水分子濃度である.図 5.12 より,水分子濃度においても両結果の違いはほとんどみられないが,濃度の最大値および最小値においてわずかな違いが見られる.また,水分子濃度の最大濃度と最小濃度の時刻歴を示したものが,図 5.13 である.図 5.13 より,連成項を含む場合の濃度変化量は,含まない場合よりも小さいことがわかる.

連成項である水分子の拡散力項は,水和陽イオンに抵抗力としてはたらき,拡散力項がない場合に比べ,理論的には水和陽イオンは移動しづらくなる.そのため,水和陽イオン濃度の偏りが起こりにくくなり,水和する水分子濃度の偏りも小さくなる.水和水分子濃度の偏りが小さい場合,水和水分子と自由水分子を合わせた全水分子濃度の偏りも小さくなる.そのため,連成項を含まない場合よりも最大濃度および最小濃度の変化量が小さくなる.しかし,連成項の有無により生じる濃度差

は,全体の水分子濃度に対し約 0.07%程度であり,図 5.14 に示す  $\mathrm{IPMC}$  先端の変位には,連成項の有無による違いはほとんどあらわれていない.

また,図 5.15 に厚さ方向中央点における水和陽イオン支配方程式の有限要素式(式 (4.12))の右辺各項の絶対値の時刻歴を示す.式(4.12)の有限要素式において,第1項は陽イオンにはたらく拡散力,第2項は水和水分子にはたらく拡散力,第3項は外部電流により生じる電場による静電気力,第4項は水和陽イオンの移動で生じる電場による静電気力を意味する.図 5.15 より,時間が経過すると第3項および第4項は次第にその絶対値が大きくなるが,第1項および第2項はその値はほとんど変化しない.また,水和陽イオンおよび水分子の濃度変化が起こる両電極付近においても,絶対値の時間的変化の傾向およびそのオーダは中央点におけるものとほぼ変わらない.以上のことから,水和陽イオンにはたらく力において,電場によって受ける静電気力項が,拡散力項(連成項)よりも支配的となるため,水和陽イオンの移動・水分子拡散では連成効果による影響は小さいことがわかる.

### 5.4 強制変位による水和陽イオンの移動および水分子拡散解析

#### 5.4.1 はじめに

IPMCの屈曲変形は,内部粒子の移動・拡散によりひずみが生じることで起こる.ここで,内部粒子の移動・拡散と屈曲変形の間に可逆的な関係が成り立つと仮定した場合,IPMCの屈曲変形が,内部粒子の移動・拡散に何らかの影響を与えると考えられる.また,実際に IPMC の外部から強制変位を与えることにより,電気的な反応が得られた報告 (3) があり,外部からの強制変位が内部粒子の移動・拡散に何らかの影響を及ぼし,その結果として電気的な出力が得られると考えられ,屈曲変形が内部粒子の移動・拡散へ影響を及ぼす可能性は充分に考えられる.

しかし,現在提案されている解析モデルにおいては屈曲変形による内部粒子の移動・拡散への影響を考慮したモデルは見当たらない.そこで本論では,屈曲変形により IPMC 内部に生じる応力に着目し,その勾配によって内部粒子が受ける力を考慮した連成解析モデルを第3章の第1.4節に示した.本節では,提案した解析モデルにおいて,応力が内部粒子の移動・拡散に及ぼす影響について検討し,提案モデルの妥当性について考察をおこなう.

#### 5.4.2 解析条件

本節では,外部から電流を与えずに強制変位を与えた場合に生じる応力の勾配が,内部粒子の移動・拡散に影響を及ぼすとする仮定に基づいた解析をおこなう.第3章の第1.4節で提案したモデルでは,構造解析によってIPMCの変位を求め,応力を計算したのち,内部粒子が移動する方向であるせん断方向の応力勾配を用いて内部粒子の移動・拡散方程式を解く.しかし本節では,応力勾配が内部粒子の移動・拡散に与える影響を把握するため,内部粒子の移動・拡散方程式に直接応力勾配を

与えて解析をおこなう.

式 (4.24) の水和陽イオン電荷量の支配方程式および式 (4.29) の水分子の拡散方程式に与える応力 勾配値を  $10^5, 10^6, 10^7, 10^8, 10^9, 10^{10}$  とする.また,本解析で用いる部分モル体積  $V_m$  と  $V_m'$  は,それぞれ水和陽イオン,水分子の 1 モルが占める体積を意味する.よって,陽イオン濃度・水分子濃度 の初期濃度および水和数を用いて以下の計算により求められた値を用いる.また,その他の材料定数および要素分割数等は本章の第 1.1 節と同じ条件で解析をおこなう.

ullet 水和陽イオンの部分モル体積  $V_m$ 

$$V_m = \frac{1}{(初期陽イオン濃度 [mol/m^3])} + \frac{(水和数)}{(初期水分子濃度 [mol/m^3])}$$

$$= \frac{1}{1000} + \frac{3.8}{15500}$$

$$\simeq 1.25 \times 10^{-3}$$
 (5.2)

 $\bullet$  水分子の部分モル体積  $V_m'$ 

$$V'_{m} = \frac{1}{(初期水分子濃度 [mol/m^{3}])}$$

$$= \frac{1}{15500}$$

$$\simeq 6.45 \times 10^{-5}$$
 (5.3)

### 5.4.3 水和陽イオンおよび水分子拡散解析

図 5.16 に応力勾配値が  $10^{10}$  の場合の水和陽イオン濃度を示す.陽極 (0mm) と陰極 (0.18mm) 付近のみ,初期濃度からの変化がみられ,中央部分は初期濃度からほとんど変化していない.また,陽極側は濃度が増加し,陰極側は濃度が減少している.これは,水和陽イオンが応力の大きい方向から低い方向へはたらく力によって移動するためである.また,応力勾配値が一定であるため陽極側と陰極側の濃度変化量はほぼ等しい.ただし,与えた応力勾配値は時間的に変化せず,水和陽イオンにはたらく拡散力は非常に小さいため,準静的な解析となっており,0.1 秒以降は濃度変化がほとんど起こっていない.

また,図 5.17 に応力勾配値が  $10^{10}$  の場合の水和陽イオン濃度分布から得られる電位を示す.図 5.17 では,陽極 (0mm) を接地した場合の結果であるため陽極が 0V となっている.図 5.17 は,式 (2.2) において電流項を除いた電場の式を積分して求められる.図 5.17 より電位は線形的に変化し,陽極と陰極 (0.18mm) での電位差が最大となる.また,図 5.18 に応力勾配値に対する最大電位差を示す.瀬良らの研究では IPMC に強制変位を与えた場合,出力として得られる電圧のオーダは数 mV であり,図 5.18 に示す電位差のオーダは最大で数十 mV であり,オーダ的に近い電位差が得られている.

図 5.19 に応力勾配値が 10<sup>10</sup> の場合の水分子濃度を示す.水和陽イオン濃度と同じく,陽極付近の濃度が増加し,陰極付近の濃度が減少している.また,陽極側と陰極側の濃度変化量もほぼ等しく,厚さの中心に対して点対称な分布となっている.また,陽イオンに水和した水分子の影響により 0.1 秒まで濃度差は大きくなっているが,その後は濃度が減少しているのは,自由水分子の拡散の影響によるものである.

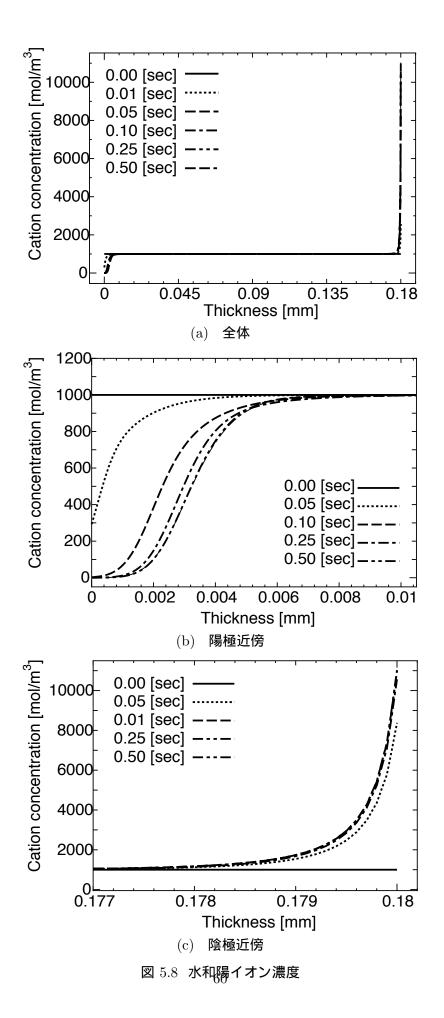
### 5.4.4 内部粒子の移動と構造変形の連成効果の考察

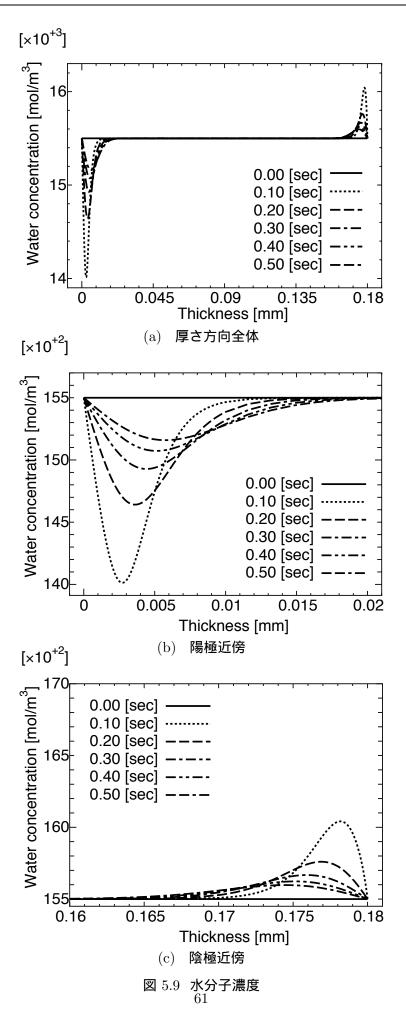
前節での解析では,提案したモデルにおいて応力勾配が内部粒子の移動・拡散に与える影響を検討 するため,

- 外部からの強制変位によって IPMC せん断方向の応力が分布する
- 応力のせん断方向成分の勾配が一定である
- 時間的に応力勾配が変形しない

とした仮定をもとに解析をおこなった.しかし,内部粒子と構造変形の連成現象を考慮した解析をおこなう場合,前節での仮定において当てはまらないと思われる点がある.まず,応力のせん断方向成分の勾配は必ずしも一定となる保証はない.構造変形は IPMC の内部粒子の濃度に比例したひずみによって起こるため,構造変形によって生じる応力と内部粒子の濃度分布には何らかの関係があると考えられる.したがって,内部粒子の濃度が線形的な分布ではない場合には,生じる応力も線形的ではない可能性が考えられ,勾配が一定であるとは限らない.また,内部粒子の移動・拡散によって IPMC は屈曲変形を起こし,その屈曲変形によって応力が生じることで,内部粒子の移動・拡散に影響を与えるという連成現象を考慮した場合,内部粒子の移動・拡散の過渡的な状態においても,IPMC の屈曲変形は起こる.したがって,その応力および応力勾配は時間にも依存するため,前節での水和陽イオン濃度のような準静的な解析結果とはならないと考えられる.

以上の点において,本論で提案したモデルの妥当性はまだ検討すべき余地はあるが,現在提案されている解析モデルにはない内部粒子の移動・拡散と構造変形の連成現象を考慮したモデルとして,より厳密に実際のIPMC 屈曲変形の一連の現象を解析できる可能性があると考えられる.





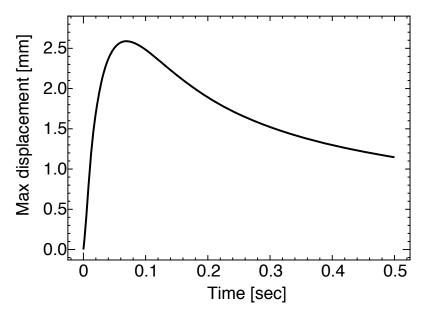


図 5.10 IPMC 先端の変位

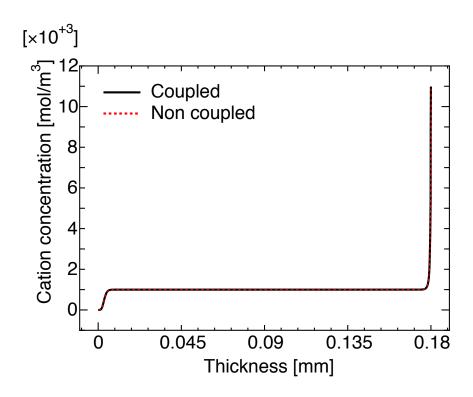


図 5.11 連成項の有無による水和陽イオン濃度

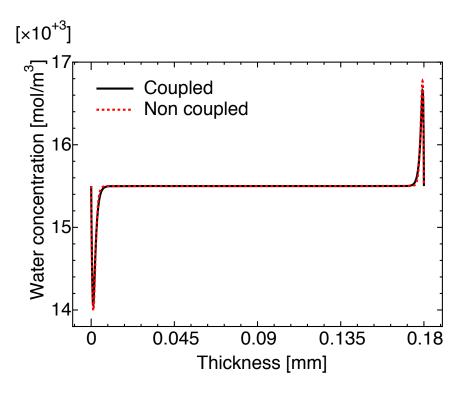


図 5.12 連成項の有無による水分子濃度

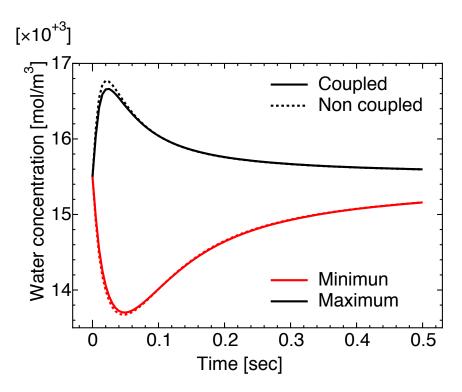


図 5.13 水分子濃度の時刻歴

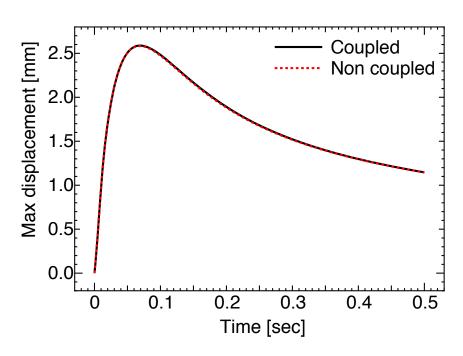


図 5.14 IPMC 先端における変位の時刻歴

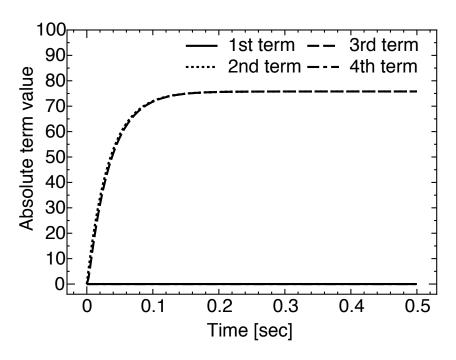


図 5.15 水和陽イオン電荷量有限要素式の各項の絶対値

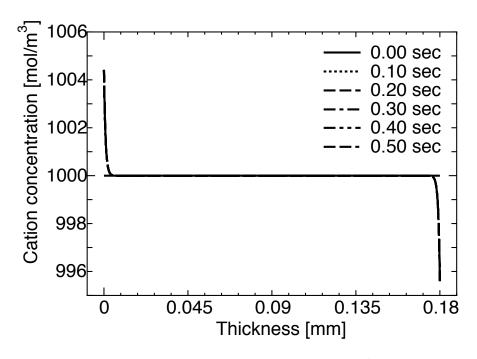


図 5.16 水和陽イオン濃度 (応力勾配値  $10^{10}$ )

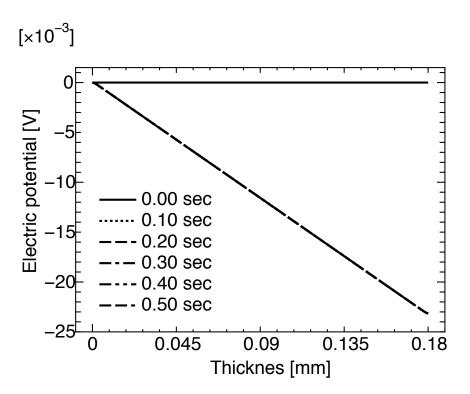


図 5.17 水和陽イオン濃度分布による電位 (応力勾配値  $10^{10}$ )

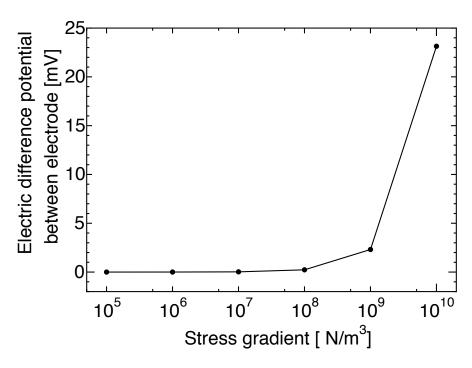


図 5.18 応力勾配値に対する最大電位差

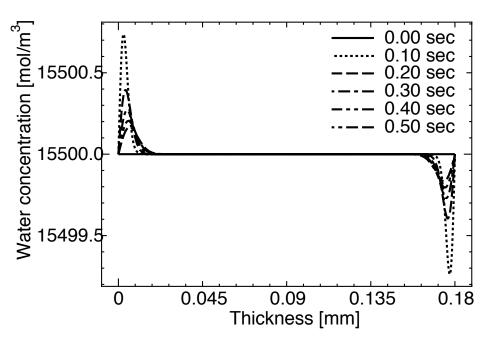


図 5.19 水分子濃度 (応力勾配値  $10^{10}$ )

## 第6章

# 結論

本研究では、複数の物理現象の相互作用を解析する連成有限要素解析手法を用いて、イオン導電性高分子膜 (ICPF)-金属複合材アクチュエータの動的変形挙動とメカニズムを明らかにした。

- 1. 主たる変形プロセスである,イオンの移動現象,水分子の拡散現象,ひずみ/応力の発生による変形のそれぞれに関して,支配方程式やモデル化の妥当性を,実験と2次元・3次元有限要素解析により検証した。
- 2. 各現象間の相互作用のモデル化と連成解析手法の組み合わせの整合性,解の精度,解析時間, 数値的不安定性などの比較・検討により,最適な連成解析手法を提案した。
- 3. 種々の条件の下で ICPF アクチュエータの動的変形挙動を実験と解析により比較・検討し,変形のメカニズムを明らかにすると同時に,モデルの妥当性を実証した。

## 参考文献

- (1) 長田義仁,金藤敬一,グン剣萍,"ソフトアクチュエータ開発の最前線-人工筋肉の実現をめざして-",エヌ・ティー・エス,2004.
- (2) 小黒啓介,川見洋二,竹中啓恭,"イオン導電性高分子膜-電極接合体の低電圧刺激による屈曲", Journal of Micromachine Society, Vol.5, pp.27-30, 1992.
- (3) 瀬良暁雄,釜道紀浩,山北昌毅,安積欣志,羅志偉,"IPMC センサ/アクチュエータの統合的システム設計に関する研究",日本ロボット学会学術講演会,1A36,2005.
- (4) 瀬良暁雄,釜道紀浩,山北昌毅,安積欣志,羅志偉,"IPMC アクチュエータ/センサの統合システム設計に関する研究~異種ドーピングされた IPMC アクチュエータの複合による高機能化",システムインテグレーション部門学術講演会,pp.233-236,2005.
- (5) Yoseph Bar-Cohen , Xiaoqi Bao , Stewart Sherrit , Shyh-Shiuh Lih , "Characterization of the Electromechanical Properties of Ionomeric Polymer-Metal Composite(IPMC)" , Proceedings of the SPIE Smart Structures and Materials Symposium , EAPAD Conference , vol.4695 , paper no.35 , SanDiego , CA , (March , 2002) .
- (6) 山北昌毅,釜道紀浩,羅志偉,安積欣志,"IPMCアクチュエータの運動による特性の適応可能性について",第49回システム制御情報学会研究発表講演会,pp.523-524,2005.
- (7) 高木賢太郎,中坊嘉宏,羅志偉,安積欣志,早川義一,山村雅紀,"IPMC アクチュエータの電気インピーダンス",第6回システムインテグレーション部門学術講演会,pp.237-238,2005.
- (8) 釜道紀浩, 金田泰昌, 山北昌毅, 安積欣志, 羅志偉, "イオン導電性高分子を用いた直動人工筋 アクチュエータの開発", ロボット学会創立 20 周年記念学術講演会, 2002.
- (9) 高木賢太郎,羅志偉,安積欣志,田原健二,"イオン導電性高分子を用いた有限回転型人工筋アクチュエータ",第5回システムインテグレーション部門学術講演会,pp.669-670,2004.
- (10) 釜道紀浩, 山北昌毅, 安積欣志, 羅志偉, "IPMC アクチュエータ/センサを用いたヘビ型ロボットの自励駆動", 第23回日本ロボット学会学術講演会, 1A36, 2005.
- (11) 中坊嘉宏,高木賢太郎,向井利春,羅志偉,安積欣志,"一定進行波入力による IPMC の屈曲振幅増大現象とその力学 I",第 23 回日本ロボット学会学術講演会,1A33,2005.
- (12) Satoshi Tadokoro , Toshi Takamori , Keisuke Oguro , " Application of the Nafion-Platinum Composite Actuator" , Proc. SPIE , vol.28-42 , 2001 .

- (13) 菅野隆,田所諭,服部元史,高森年,小黒啓介,"ICPF(イオン導電性高分子ゲル膜)アクチュエータのモデル化(第1報,基礎的特性とブラックボックスモデリング)",日本機械学会論文集(C編),62巻598号,pp.213-219,1996.
- (14) 菅野隆 , 田所諭 , 服部元史 , 高森年 , 小黒啓介 , "ICPF(イオン導電性高分子ゲル膜) アクチュエータのモデル化 (第 2 報 , 電気的特性とその線形近似モデリング)" , 日本機械学会論文集 (C編) , 62 巻 601 号 , pp.151-157 , 1996 .
- (15) 菅野隆,田所諭,高森年,小黒啓介,"ICPF(イオン導電性高分子ゲル膜)アクチュエータのモデル化(第3報,応力発生特性と線形近似アクチュエータモデル)",日本機械学会論文集(C編),63 巻 611 号,pp.157-162,1997.
- (16) Satoshi Tadokoro , Masahiko Fukuhara , Yosuke Maeba , Masashi Konyo , Toshi Takamori , "A Dynamic Model of ICPF Actuator Considering Ion-Induced Lateral Strain for Molluskan Robotics" Proc. IEEE RSJ , pp.2010-2017 , 2002 .
- (17) 都井裕,姜成洙,"イオン導電性高分子・金属複合材の電気・化学・力学的挙動の有限要素モデリング",日本機械学会論文集(A編),**70**-689,pp. 9-16,2004.
- (18) 姜成洙,都井裕,"IPMC アクチュエータの電気化学・力学挙動の有限要素解析",日本機械学会第16回計算力学講演会講演論文集,pp.839-840,2003.
- (19) K. J. Kim, M. Shahinpoor, A novel method of manufacturing three-dimensional ionic polymer-metal composites (IPMCs) biomimetic sensors, actuators and artificial muscles, polymer, 87, (2002), 797–802.
- (20) S. Nemat-Nasser, J. Y. Li, Electromechanical response of ionic polymer-metal composites, *J. of Applied Physics*, **87**–7, (2000), 3321–3331.
- (21) S. Tadokoro, S. Yamagami and T. Takamori, An Actuator Model of ICPF for Robotic Applications on the Basis of Physicochemical Hypotheses, *Proc. IEEE ICRA*, (2000), 1340–1346.