

## 論 文

# 静電的手法によるプリフォーム製造工程でのセラミック短纖維の凝集

伊藤友仁\*, 五味福夫\*

(1994年5月31日受理)

## Agglomeration of Ceramic Short Fibers in Fabrication Process for Fiber Preform by Electrostatic Method

Tomohito ITOH\* and Fukuo GOMI\*

(Received May 31, 1994)

An electrostatic method of fabricating a unidirectionally-oriented ceramic short fiber preform has been developed for use in the production of Fiber-Reinforced Metals. In this process, polarised alumina short fibers by application of dc field in insulating liquid (CFC-113) are aligned and agglomerated with one another along the field direction. It is already reported that the agglomerations with aligned fibers improve the orientation of fibers in preform. In this study, theoretical treatment of the interaction between two induced dipoles on each fiber under an electric field has been first presented, then experimental observation of fiber agglomeration in the field has been reported. The equivalent multipole moment method is applied for the analysis of the electrostatic force between two fibers. As the result, the electrostatic force is effective in the vicinity of fiber, commencing agglomerations above a certain fiber density. Microscopic observation shows that the density of alumina short fiber for forming agglomeration is above  $7 \times 10^3 \text{ g/m}^3$ . Also, in the preform fabrication process, the optimal condition of fiber density ( $10^3$ - $10^4 \text{ g/m}^3$ ) for fabrication of the preform with better fiber orientation is estimated.

### 1. まえがき

近年、電界中に置かれた纖維状物質が電界方向に配向する物理現象を利用して、種々の工業製品が製造されるようになっている。その一つとして、著者らは高強度の纖維強化金属複合材料の製造が必要な、アルミナ等のセラミック纖維が一方向に配向したフェルト状の纖維成形体（以後プリフォームと記す）を絶縁液体中で作製する静電配向法を開発したり<sup>1)</sup>。このプリフォームと金属を複合することで金属基複合材料が得られ、その複合材料は一定方向に極めて優れた力学特性を有することを過去に報告している<sup>2)</sup>。また、静電配向法の基礎検討としてアルミナ短纖維をとりあげ、液体中に懸濁した纖維の電界中の挙動を調べ次の結果を得ている。誘電体であるアルミナ短纖維では、纖維分散のために添加した界面活性剤

によって導入されるイオンが纖維に吸着し、その表面伝導性が増すことが纖維の分極に寄与していた。さらに、一本の纖維の配向現象のみに注目し、電界が与えられた際のアルミナ短纖維の配向運動からその纖維に加わる静電気力や分極電荷等を求め個々の纖維が配向するための条件を明らかにしている<sup>3)</sup>。しかし、静電配向法でプリフォームを作製する際の纖維濃度の最適化については未検討のままである。

静電配向法でプリフォームを作製する装置（図8参照）において、まず絶縁性の液体媒質中に懸濁した纖維が、平行平板電極が配置された配向セル内に一定速度で注入される。電極間には直流電圧が与えられており個々の纖維は分極してまず電界方向に配向し、その後配向した纖維同士が徐々に凝集しセル底部のフィルタ上へ沈降し媒質のみが排出される。纖維懸濁液の注入が終了すると媒質はすべて排出され、底部に得られた一方向に配向した纖維集積体を取り出し、乾燥させたものがプリフォームである。プリフォームの作製の際、沈降する纖維凝集体が受ける媒質の流体抵抗や電界中の媒質に生ずる電気流体力学的(EHD)対流<sup>1)</sup>により一旦配向、凝集した纖維が攪乱されその配向が亂れてしまうことがある。し

キーワード：セラミック短纖維、凝集、代用多重極子法、一方向配向、プリフォーム

\* (株)豊田自動織機製作所 技術開発研究所 (448 刈谷市豊町 2-1)

R & D Center, Toyoda Automatic Loom Works, Ltd., 2-1, Toyoda-cho, Kariya-shi, Aichi-ken, 448 Japan

かし、纖維懸濁液の纖維濃度が高くなると凝集体が大きくなり、ある大きさ以上の凝集体では流体抵抗や媒質の対流があっても攪乱されなくなる。つまり、プリフォーム作製の際、攪乱されない大きさの纖維凝集体が得られるような纖維濃度を設定することが必要となる。

従来、分極した粒子が長く凝集する現象はパールチーンフォーメーションとして知られている<sup>4)</sup>。特に、球形粒子の凝集に関しては粒子中心に置かれた双極子がつくる電界およびそれに働く凝集力や凝集体の配向について理論的な解析もなされている<sup>5),6)</sup>。しかし、静電配向法で扱う纖維のような大きな縦横比を有する粒子に関しては、球形粒子の理論をそのまま適用することはできない。そこで本研究では分極した纖維周辺の電位分布を、纖維をいくつかの要素に分割し、その各々がつくる代用双極子の和を纖維の双極子とする代用多重極子法によって求めた。これに基づき、纖維に誘導される双極子間に働く凝集力を理論的に予測した。また、実験によって液相中で静電配向したアルミナ短纖維の凝集挙動を顕微鏡下で調べた。これらの結果に基づき、静電配向法で纖維が一方向に配向したプリフォームを作製する場合の最適な纖維濃度条件を検討した。

## 2. 直流電界中で分極した纖維の凝集の理論

### 2.1 従来法の問題点

従来パールチーンフォーメーションは、球形の粒子に誘導される双極子モーメント間の相互作用として解析されてきた。これに対し、大きな縦横比を有する纖維の静電配向を考える場合には、球形で近似することは困難を伴う。電界中に置かれた球形粒子に誘導される誘導電荷を粒子中心に置かれた双極子モーメントで置き換えることができる理由は、球形粒子の存在によって粒子外側に生ずる電位分布 $\Psi$ が球座標 $(r, \theta, \varphi)$ を使えば、

$$\Psi = \sum_{n,m} \left\{ A_{n,m}^c r^{-n-1} P_n^m(\cos \theta) \cos m\varphi + A_{n,m}^s r^{-n-1} P_n^m(\cos \theta) \sin m\varphi \right\} \quad (1)$$

という形に書けることに由来している。式(1)で $P_n^m$ は $n, m$ 次のLegendre陪関数で、 $n=0$ は単極子、 $n=1$ は双極子、一般に $n=n$ は $n$ 次の多重極子を表している<sup>7)</sup>。粒子が電気的に中性なら $n=0$ の項は現れないので、最低次の $n=1$ の項のみをとると

$$\Psi_d = p_x \frac{x}{r^3} + p_z \frac{y}{r^3} + p_y \frac{z}{r^3} \quad (2)$$

ただし、

$$A_{1,0}^c = p_z, \quad A_{1,1}^c = p_x, \quad A_{1,1}^s = p_y \quad (3)$$

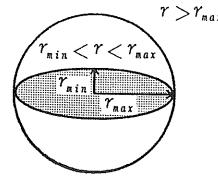


図 1 最大半径 $r_{\max}$ 、最小半径 $r_{\min}$ の非球形粒子

Fig. 1 Non-spherical particle with maximum radius  $r_{\max}$  and minimum radius  $r_{\min}$ .

となり、これは粒子のつくる電位が双極子で置き換えられることを意味している。

これに対し、非球形粒子の場合には、図1に示すように粒子の最大半径を $r_{\max}$ 、最小半径を $r_{\min}$ とすると、粒子の誘起する電位は、 $r > r_{\max}$ の領域と $r_{\min} < r < r_{\max}$ の領域では表現が異なり、

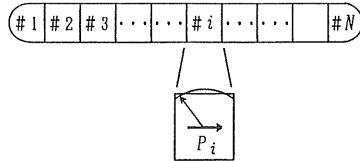
$$\begin{aligned} \Psi = & \sum_{n,m} \left\{ A_{n,m}^c r^{-n-1} P_n^m(\cos \theta) \cos m\varphi \right. \\ & \left. + A_{n,m}^s r^{-n-1} P_n^m(\cos \theta) \sin m\varphi \right\}; \quad r > r_{\max} \end{aligned} \quad (4-a)$$

$$\begin{aligned} \Psi = & \sum_{n,m} \left\{ B_{n,m}^c r^{-n-1} P_n^m(\cos \theta) \cos m\varphi \right. \\ & \left. + B_{n,m}^s r^{-n-1} P_n^m(\cos \theta) \sin m\varphi \right\} \\ & + \sum_{n,m} \left\{ C_{n,m}^c r^n P_n^m(\cos \theta) \cos m\varphi \right. \\ & \left. + C_{n,m}^s r^n P_n^m(\cos \theta) \sin m\varphi \right\}; \quad r_{\min} < r < r_{\max} \end{aligned} \quad (4-b)$$

と書ける（付録A参照）。すなわち、 $r_{\min} < r < r_{\max}$ の領域においては、電位には $r^{-n-1}$ に依存する項と $r^n$ に依存する項が現れる。 $r^{-n-1}$ の項は原点における多重極子の重ね合わせで代表することができるが $r^n$ の項はできない。縦横比の大きな纖維の静電的凝集を解析するときには $r_{\min} < r < r_{\max}$ の領域が問題となる。この時は纖維を原点における多重極子のみで置き換えることはできない。

### 2.2 代用多重極子法

電界中で縦横比の大きな纖維に誘導される双極子を解析する場合、図2に示すように、纖維をいくつかの要素に分割して、その各々がつくる電位を多重極子で近似すればよい。要素分割が十分細かくなれば、粒子表面が各要素中心を中心とする球面で近似できるなら、式(4-a)により、要素*i*が粒子の外側につくる電位は、要素中心を原点とする $r^{-n-1}$ 依存性を持つ項の和、すなわち式

図 2  $N$  個の要素に分割した纖維モデルFig. 2 Fiber model divided into  $N$  segments.

(1)のような多重極子の和の形に書けるはずである。特に、 $n=0$  および  $n=1$  の項のみを考えれば、要素  $\#i$  を、要素中心に置いた点電荷 ( $n=0$ , 代用電荷) および双極子モーメント ( $n=1$ , 代用双極子) により置き換えることができる。各々の多重極子の大きさは、代用電荷法と同様に、すべての多重極子の作る電界の和が粒子表面における境界条件を満たすように決めればよい。

### 2.3 代用多重極子法による纖維の静電配向および誘電泳動の解析

以下に、図 3 に示すような縦横比の大きい同じ形状をした 2 本の導体纖維が一様電界中に置かれた時の静電配向および誘電泳動による凝集の解析を行う。ここで、纖維を導体と仮定するが、液相中のアルミニナ短纖維のように表面導電性を有する<sup>3)</sup>場合も表面電位一定の境界条件が適用でき解析結果が適用できる。纖維を  $N$  個の要素に分割して、その各々を代用電荷  $q_i$  および代用双極子  $p_{xi} = (p_{ix}, p_{iy})$  で置き換える。ここで  $z$  軸に関する対称性より、双極子の  $z$  成分は考慮に入れる必要がない。また、二つの纖維は同形状なので片方のみを要素分割すればもう一方も同様となる。纖維は表面導電性を有するので、纖維表面に要素あたり 3 個の輪郭点をとり、そこでの電位が一定となるように  $q_i, p_{ix}, p_{iy}$  ( $i=1, 2, \dots, N$ ) の大きさを決めれば良い。この一定電位は未知数であるが、そのかわり

$$\sum_{n=1}^N q_i = 0 \quad (5)$$

の条件があるので、未知数  $3N+1$  個に対し方程式も同数あり、これにより  $q_i, p_{ix}, p_{iy}$  ( $i=1, 2, \dots, N$ ) を求めることができる。

すなわち、輪郭点での電位を  $\phi_i$  ( $i=1, 2, \dots, 3N$ ) とすると

$$[\phi] = [\phi_1 \ \phi_2 \ \phi_3 \ \dots \ \phi_{3N}]^T \quad (6)$$

$$[q] = [q_1 \ p_{1x} \ p_{1y} \ q_2 \ p_{2x} \ p_{2y} \ \dots \ q_N \ p_{Nx} \ p_{Ny}]^T \quad (7)$$

と書いて

$$[\phi] = [M] [q] \quad (8)$$

ただし、マトリックス  $M$  の各要素は、点  $(x_s, y_s, z_s)$  における点電荷  $q$  および双極子  $p = (p_x, p_y, 0)$  が点  $(x_p,$

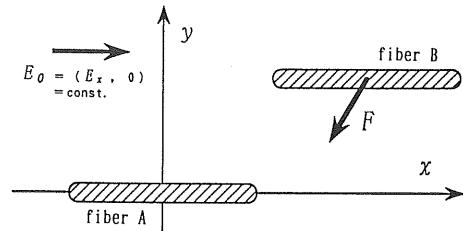


図 3 電界方向に配向した 2 本の纖維

Fig. 3 Two fibers oriented in the field direction.

$y_p, z_p)$  に作用する電位

$$\phi_p = \frac{1}{4\pi\epsilon} \left( \frac{q}{r} + \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}}{r^3} \right) \quad (9)$$

$$\text{ただし, } \mathbf{r} = (x_p - x_s, y_p - y_s, z_p - z_s), \ r = \sqrt{\mathbf{r} \cdot \mathbf{r}} \quad (10)$$

により求められる。式(8)の電位と外部から与えられた電位

$$\phi_{ext} = -E_0 x \quad (11)$$

の和が纖維の電位になるので、式(8)および(5)より、

$$\begin{pmatrix} M \\ 1, 0, 0, 1, 0, 0, \dots, 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -1 \\ -1 \\ -1 \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ \phi_f \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} \phi_{ext} \\ \vdots \\ \vdots \\ 0 \end{pmatrix} \quad (12)$$

ただし、

$$[\phi_{ext}] = [\phi_{ext,1}, \ \phi_{ext,2}, \ \dots, \phi_{ext,j}, \ \dots, \phi_{ext,3N}]^T; \text{ 輪郭点における外部電位} \quad (13)$$

式(12)を解けば、すべての  $q_i, p_{ix}, p_{iy}$  ( $i=1, 2, \dots, N$ ) を求めることができる。

一旦これらが求まれば、粒子に働く誘電泳動力およびトルクは、点電荷同士、点電荷と双極子、双極子同士の相互作用として求められる（相互作用の数学的表現は付録B参照）。

### 2.4 誘電泳動力の計算結果

纖維に誘導される双極子間に働く凝集力を検討するため、ここでは 2 本の縦横比 10 の導体纖維を例にとりあげ、纖維間に働く誘電泳動力を計算した。図 3 に示したように、一本の纖維 A を原点に  $x$  軸方向で固定し、その周りの空間を格子状に点をとりこれにもう一つの纖維 B を固定した。纖維の分割要素数 21 とし、初期状態として  $x$  軸方向の一様な外部電界が与えられ電界方向に配向した 2 本の導体纖維について、纖維 B の向きを少しづつ変化させて、繰り返し計算により纖維に働くトルクが 0 となるような平衡角度を求める。つぎにその角度での誘

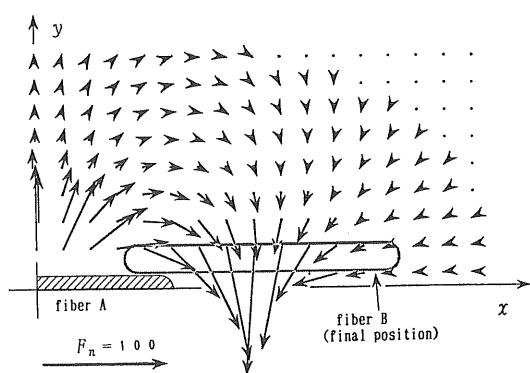


図 4 分極した纖維周辺に置かれた同じ大きさの纖維に働く誘電泳動力

Fig. 4 Dielectrophoretic force exerted on another fiber around the central fiber.

電泳動力を計算した。計算によれば各格子点で纖維Bが電界となす角度は0.1度以下で、纖維Bの配向はとなりの纖維Aの存在によってほとんど影響を受けず常にほぼ電界と平行になる。つまり纖維の作る電界のひずみはその両端付近に局在化しており、もう一方の纖維の配向に対する影響が小さいと思われる。図4は、纖維Aを原点に固定して考えた場合にその周囲に存在するもう一方の纖維Bに働く泳動力をベクトル $F_n$ で示したものである。ただし $F_n$ は誘電泳動力Fを規格化したものである。

$$F_n = \frac{F}{\pi \epsilon b^2 E_0^2} \quad (14)$$

ここで、 $\epsilon$ は媒質の誘電率、 $b$ は纖維径の1/2。

纖維は中心に対して対称なので図には空間の1/4の部分のみを示し、纖維Bが泳動力で移動する最終的な位置も示した。これより纖維A周辺での泳動力は纖維の長さと同程度の範囲でのみ働き、纖維が並列で並んでいると反発力、直列に並んでいると吸引力が働く。また纖維Bの最終位置から、纖維同士は端部で少し重なり合って付着することがわかる。

以上の結果から、纖維の凝集は纖維濃度が比較的高く、纖維間距離が纖維長にはば等しくなる場合に起こると予想される。また、図4で示した解析結果から、2本の纖維が凝集する際の運動は図5に示すように、纖維が並列で存在する場合は一旦反発されてから引き合い、それがない場合は単に引き合うと推定され、いずれの場合も最終的に纖維の端部同士で付着すると思われる。

### 3. 電界中におけるアルミナ短纖維の凝集の顕微鏡観察

#### 3.1 実験方法

媒質中において、直流電界下での纖維の凝集を以下の

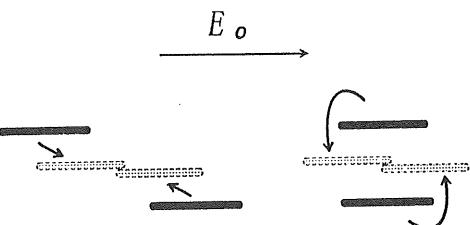


図5 泳動力の計算から予想される2本の纖維の凝集運動  
Fig. 5 Agglomerational motion of two fibers in the field predicted by dielectrophoretic force.

方法で観察した。使用した纖維はアルミナ短纖維(ICI: SAFFIL RF)で、その平均長さは200μm、平均径は3μmである。これを液体媒質であるCFC113(三井デュポンフロロケミカル: フロンTF、以後媒質と記す)に界面活性剤(第一工業製薬: プライサー A212C)を分散剤として加えた纖維懸濁液を試料とした。個々の纖維の挙動は間隔4mmで平行平板電極が配置されたセル<sup>3)</sup>に試料を注入し、直後に直流電界を与えたときの纖維の凝集過程を光学顕微鏡で観察した。

一本のアルミナ短纖維が直流電界中で配向するための条件は、界面活性剤の濃度に依存する媒質の導電率で決まることを報告している。本実験では電界強度と媒質の導電率を纖維が配向するために必要な分極を得られることを条件<sup>3)</sup>として次のように定めた。すなわち、電界強度 $E_0=0.75\sim 1\text{ kV/cm}$ 、媒質の導電率 $\sigma_1=4.4\times 10^{-11}\sim 2.0\times 10^{-11}\text{ S/m}$ (界面活性剤を5~15ppm添加して纖維を分散)とした。懸濁液の纖維濃度は $W_f=2\times 10^2\sim 3\times 10^4\text{ g/m}^3$ の範囲で変化させた。なお、媒質の導電率は纖維懸濁液をろ過したものを直流法<sup>1)</sup>で測定したものである。

#### 3.2 アルミナ短纖維の凝集形態

本実験条件のすべての範囲内において、電界印加直後の個々の纖維はまず電界方向に配向し、次に纖維同士が徐々に凝集し長い凝集体を形成した。凝集過程の初期では電界方向に配向した纖維が端部付近で付着し、纖維同士が接近してもその配向に変化は認められなかった。これは先の解析結果をうらづけるものであった。また、凝集が進むと凝集体は長くなりその側面への纖維の付着が顕著になった。以下に懸濁液の纖維濃度を変化させた場合の凝集の観察結果を述べる。

本実験条件下において、纖維濃度が高いほど凝集体は長く成長し凝集速度も速まる傾向が顕著に認められた。纖維濃度 $W_f$ が異なる場合の纖維の凝集について、図6(a)は $W_f=5\times 10^2\text{ g/m}^3$ 、図6(b)は $W_f=5\times 10^3\text{ g/m}^3$ の時の電界印加5秒後の様子を示した。図6(a)のように比

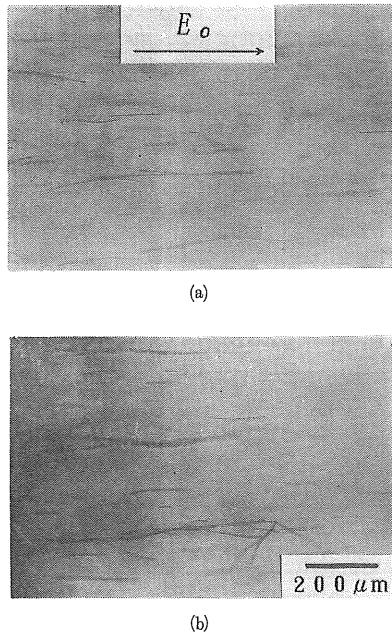


図 6 直流電界中で凝集したアルミナ短纖維  
纖維濃度は(a)  $W_f = 5 \times 10^2 \text{ g/m}^3$ , (b)  $W_f = 5 \times 10^3 \text{ g/m}^3$

Fig. 6 Agglomerated alumina short fibers in dc field.

Fiber density : (a)  $W_f = 5 \times 10^2 \text{ g/m}^3$ , (b)  $W_f = 5 \times 10^3 \text{ g/m}^3$

較的纖維濃度が低い場合、纖維の凝集は顕著に認められず、一部の纖維のみがその端部付近で付着し配向方向に凝集した。一方、図 6 (b) のように濃度が比較的高い場合は纖維同士の端部での付着がより顕著になり凝集体は長くなる傾向を示すとともに纖維側面へも別の纖維が付着し、凝集体は長く成長すると同時に太くなる傾向が認められた。したがって、纖維がある濃度を越えたところからその凝集体が形成されやすくなると推定される。以下に纖維濃度を変化させた場合の凝集状態を観察し、纖維の凝集が顕著になる濃度と凝集体中の纖維配向を調べる。

図 7 は懸濁液の纖維濃度  $W_f [\text{g}/\text{m}^3]$  における纖維の平均中心間距離  $d [\text{m}]$  を求め、纖維の凝集形態の概略を図示したものである。ただし、実際のアルミナ短纖維は湾曲しているがここでは平均径  $3 \mu\text{m}$ 、平均長さ  $200 \mu\text{m}$  の直線状と仮定し、密度  $3.3 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  として纖維一本の重量  $w$  をとめ、 $d = (W_f/w)^{-1/3}$  で計算した。図中 A ~ C の纖維濃度の領域で示したように、纖維の凝集形態は以下の三つに大別できた。纖維濃度  $W_f$  が  $7 \times 10^2 \text{ g}/\text{m}^3$  以下（領域 A）では配向した纖維はほとんど凝集しないが  $7 \times 10^2 \sim 10^4 \text{ g}/\text{m}^3$ （領域 B）では配向した纖維が凝集体を形成した。しかし、纖維濃度が  $10^4 \text{ g}/\text{m}^3$  を越え

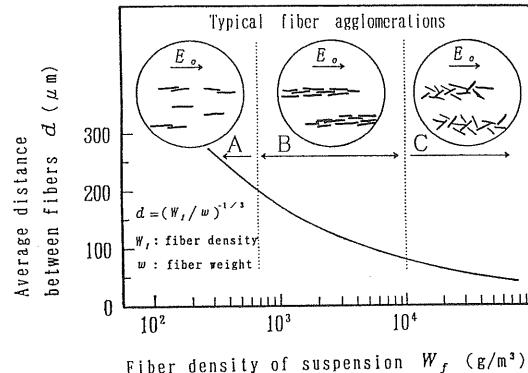


図 7 繊維濃度の違いによる 3 種類の纖維凝集形態

Fig. 7 Three types of fiber agglomeration.

ると（領域 C）纖維が電界印加直後の回転する際に接触し、凝集体を形成する纖維の配向はほぼランダムであった。図 4 の解析結果から、纖維の平均長さを  $l$  ( $200 \mu\text{m}$ ) とすれば、ほぼ  $d < l$  の範囲で誘電泳動力が働き纖維は凝集するはずである。図 7 で示した結果から纖維間距離  $d$  と纖維平均長さ  $l$  の大小関係により纖維の配向と凝集状態が次の三つに分類できることがわかる。 $d > l$  では纖維は配向するが誘電泳動力が小さく凝集しない。 $l/2 < d < l$  では配向した纖維が誘電泳動力で凝集する。また、 $d < l/2$  では電界印加後に纖維が回転運動する際に纖維同士が接触して絡み合い配向できないまま凝集してしまう。以上の実験結果と考察により、各纖維が電界方向に配向した凝集体を形成する条件は  $W_f = 7 \times 10^2 \sim 10^4 \text{ g}/\text{m}^3$  である。

纖維濃度が一定の場合、電界強度が大きいあるいは媒質の導電率が小さいほど纖維の凝集傾向が顕著になった。本実験での電界強度および媒質の導電率の範囲において、電界が大きいまたは媒質の導電率が小さくなるほど纖維の分極は大きくなることを既に報告している<sup>3)</sup>。ゆえに、この場合纖維の凝集傾向が顕著になった理由は、個々の纖維の分極が大きくなった結果と考えられる。また、媒質の導電率が比較的大きい場合、纖維は凝集する傾向を示しながら一部のものは纖維同士が接触した瞬間に吸引力が消失する場合が顕著になった。しかし、一旦吸引力が消失して纖維が凝集体から離れても直後に再び凝集したので纖維が単独で存在し続けることはなかった。誘電体であるアルミナ短纖維では、分散剤としての界面活性剤の添加により媒質に導入されるイオンが纖維表面に吸着する。これにより纖維に表面導電性が与えられ、纖維の分極が起こることがわかっている<sup>1,3)</sup>。界面活性剤濃度が増し媒質の導電率が大きくなるとイオンの表面吸着量が増大し、纖維の表面導電性も高まる。

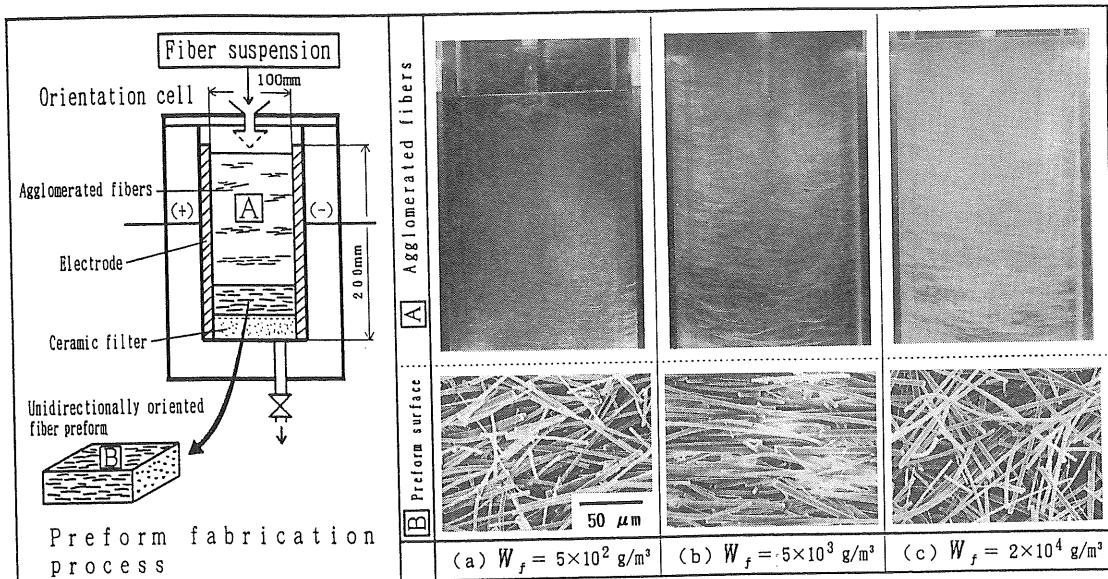


図 8 静電配向法における各繊維濃度での繊維の凝集およびプリフォームの繊維配向

Fig. 8 Agglomerated fibers in electrostatic orientation process and fiber orientation in preform.

このような場合、纖維同士が付着した際の接触抵抗が小さくなり纖維間で電荷の授受が起りやすくなり纖維の分極電荷が中和されて纖維間の吸引力が消失したと考えられる。

#### 4. 静電配向法による一方向にアルミナ短纖維が配向したプリフォームの作製条件

アルミナ短纖維の静電配向現象を利用して、複合材料の中間素材である纖維が一方向に配向したプリフォームを得るプロセスが図8に示した静電配向法である。このプリフォームに要求されることは纖維の配向をできる限り一方向化することである<sup>2)</sup>。プリフォームの作製の際、纖維凝集体の沈降時に媒質の流体抵抗や電界中でのEHD対流により一旦配向、凝集した纖維が搅乱されその配向が乱れてしまう。そこで、このような媒質の流体抵抗や対流で搅乱されない程度の大きさの凝集体を形成させることができることが目的のプリフォームを得るために有効な手段となる。前章では懸濁液の纖維濃度が異なる場合の纖維の凝集を調べ、3種類の形態に分類できることを示した。ここでは、種々の纖維濃度でプリフォームを作製し、一方にアルミナ短纖維が配向したプリフォームを得るための最適濃度を検討する。

図8の装置を用いて、纖維濃度  $W_f = 5 \times 10^2 \sim 2 \times 10^4 \text{ g/m}^3$  の懸濁液を用いてプリフォームを作製した。この際、配向セル内の纖維の凝集を観察し、得られたプリフォームの表面を走査型電子顕微鏡(SEM)で写真撮影した。電界強度は媒質のEHD対流が特に顕著にならな

い範囲の最大値  $1 \text{ kV/cm}$  とし、媒質導電率  $\sigma_1$  は前述の個々の纖維が配向する範囲 ( $\sigma_1 = 4.4 \times 10^{-11} \sim 2.0 \times 10^{-11} \text{ S/m}$ ) で、纖維懸濁液の注入速度は  $1.7 \times 10^{-5} \text{ m}^3/\text{s}$  とした。図8の(a)～(c)は3種類の纖維濃度における配向セル内の纖維凝集と得られたプリフォームのSEM写真である。これらの纖維濃度は、それぞれ図7の纖維凝集の形態を示す濃度(領域A～C)に対応している。写真から纖維濃度が高くなるほど凝集体は大きくなり、(b)の  $W_f = 5 \times 10^3 \text{ g/m}^3$  の条件で得られたプリフォームの纖維配向が最も一方向化されている。纖維が高濃度になるほど纖維凝集体が大きくなる傾向は前章の光学顕微鏡での観察結果と定性的に一致している。図8(a)の濃度では凝集体がほとんど得られず、媒質のEHD対流と纖維沈降時の流体力学的対流によって纖維が搅乱された。顕微鏡観察の結果から、配向セルに入った直後の纖維配向はほぼ一方向であると類推されるが、沈降時の搅乱により配向セル底部に沈降した纖維の配向は乱れ結果的にプリフォームの纖維の配向が乱れたと考えられる。一方、図8(b), (c)では纖維凝集体の搅乱はほとんど認められなかった。しかし、(c)の濃度条件では凝集体中の纖維はほぼランダムであり、このような纖維の凝集体がそのまま沈降したためプリフォームでは纖維の一方向化が得られなかつたと考えられる。(b)の濃度ではほぼ一方向に配向した纖維の凝集体が媒質の対流で搅乱されることがほとんどなく、纖維がほぼ一方向に配向したプリフォームが得られたと考えられる。そこで特に一方向に配向した纖維の凝集体が得られた図7のBの領域で纖維の濃度を変化さ

せて調べた結果、 $W_f=10^3 \sim 10^4 \text{ g/m}^3$  の範囲で濃度に比例して凝集体は大きくなる傾向を示したが、プリフォームの纖維配向は(b)と同様に一方向のものが得られた。

纖維の凝集体の大きさは前述の顕微鏡下での観察結果と同様、媒質の導電率にも依存した。同一の纖維濃度であっても媒質の導電率が小さいほど纖維の凝集体は大きくなる傾向を示した。前章で述べた顕微鏡観察結果と同様、媒質の導電率が大きくなると纖維同士が接触した際にそれらの吸引力の消失が顕著になり凝集体が切れ、再び凝集を繰り返す場合が顕著に認められた。しかし、このような場合でも得られたプリフォームの纖維配向に差異は認められなかった。したがって、纖維濃度が  $10^3 \sim 10^4 \text{ g/m}^3$  の範囲であれば静電配向法で一方向に纖維が配向したプリフォームが得られることがわかった。

## 5. 結 言

液相中に懸濁したセラミック短纖維に電界を与えることで纖維が電界方向に配向し、凝集する現象を利用して一方向に纖維が配向したプリフォームを作製する静電配向法の基礎的な検討を行った。本研究ではプリフォームを得るための条件として必要な電界方向に配向した纖維の凝集に注目して、纖維の凝集を理論および実験的に検討し以下の結論を得た。

(1) 電界中に置かれ、分極した纖維周辺の電界分布を代用多重極子法によって理論的に求めた。纖維をいくつかの要素に分割して、各要素がつくる代用双極子の和を纖維の双極子として、纖維間に働く力を求めた。その結果、凝集力としての誘電泳動力が作用するのは纖維の長さと同程度の範囲に限られることがわかった。したがって、纖維の凝集が必要な場合には纖維懸濁液の濃度をある程度高め、纖維間距離を小さくする必要があると予想された。

(2) 静電配向したアルミナ短纖維の凝集を顕微鏡下で観察した結果、纖維間距離  $d$  と纖維平均長さ  $l$  の大小関係により纖維の配向と凝集形態が次の3種類に分類できた。 $d > l$  では纖維は配向するが誘電泳動力が小さく凝集しない。 $l/2 < d < l$  では配向した纖維が誘電泳動力で凝集する。また、 $d < l/2$  では電界印加後に纖維が回転運動する際に纖維同士が接触して絡み合い配向できないまま凝集してしまう。纖維の凝集が起こるのは纖維間距離が纖維長にはば等しくなる濃度  $W_f=7 \times 10^2 \text{ g/m}^3$  以上であった。しかし、 $10^4 \text{ g/m}^3$  を越えると纖維間距離が小さくなりすぎて纖維が配向する際に接触し、電界方向に配向できずに凝集した。この結果より、纖維が一方向に配向した凝集体を得るためにの纖維濃度の範囲は  $7 \times 10^2 \sim 10^4 \text{ g/m}^3$  であった。

(3) 静電配向法において、アルミナ短纖維が一方向に配向したプリフォームを作製するための纖維濃度条件を調べた。各纖維濃度において、電界中の纖維凝集体および作製したプリフォームの纖維配向を観察した。纖維が一方向に配向したプリフォームを得るためには一定の大きさの纖維凝集体を得ることが必要で、そのための纖維濃度条件は  $10^3 \sim 10^4 \text{ g/m}^3$  であった。

## 謝 辞

本研究に関して多大なるご支援をいただいた成蹊大学助教授鷲津正夫博士、ならびに本論文作成にあたって貴重なご意見をいただいた東京大学教授小田哲治博士に深甚なる謝意を表します。

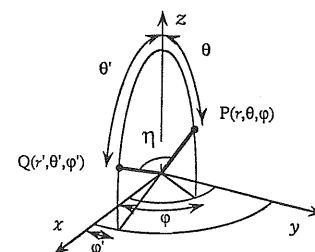
## 参 考 文 献

- 1) S. Masuda and T. Itoh : IEEE Trans. IA, 25 (1989) 552
- 2) 伊藤友仁、磯村廉一、平井秀敏：軽金属, 38 (1988) 620
- 3) 伊藤友仁、増田閃一、五味福夫：静電気学会誌, 16 (1992) 314
- 4) 例ええば、静電気学会編：静電気ハンドブック、第9章、オーム社 (1981)
- 5) G. Zebel : Staub, 23 (1963) 263
- 6) T.B. Jones : J. Electrostat., 25 (1990) 231
- 7) M. Washizu : J. Electrostat., 29 (1992) 177
- 8) J.A. Stratton : Electromagnetic Theory, McGraw-Hill, New York (1941)

## 付録A 誘電体周りの電位のルジャンドル関数による表現

図A-1において、点  $Q(r') = Q(r', \theta', \varphi')$  に置かれた単位電荷が点  $P(r) = P(r, \theta, \varphi)$  に作る電位  $\phi_P$  は、級数の収束範囲に応じて、

$$\phi_P = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r'} \sum_{n=0}^{\infty} \left( \frac{r}{r'} \right)^n P_n(\cos \eta) ; r < r' \quad (\text{A-1-a})$$



図A-1 単位点電荷  $Q(r', \theta', \varphi')$  が点  $P(r, \theta, \varphi)$  につくる電位の説明図

Fig. A-1 The potential at  $P(r, \theta, \varphi)$  produced by a point charge  $Q(r', \theta', \varphi')$ .

$$= \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r} \sum_{n=0}^{\infty} \left( \frac{r'}{r} \right)^n P_n(\cos \eta) ; r > r' \quad (\text{A-1-b})$$

と表される<sup>8)</sup>.

ここで

$$\cos \eta = \sin \theta \sin \theta' \cos(\varphi - \varphi') + \cos \theta \cos \theta' \quad (\text{A-2})$$

$$\begin{aligned} P_n(\cos \alpha \cos \beta + \sin \alpha \sin \beta \cos \gamma) \\ = P_n(\cos \alpha) P_n(\cos \beta) + 2 \sum_{m=1}^n (-1)^m P_n^m(\cos \alpha) \\ \times P_n^{-m}(\cos \beta) \cos m\gamma \end{aligned} \quad (\text{A-3})$$

$$P_n^{-m}(u) = (-1)^m \frac{(n-m)!}{(n+m)!} P_n^m(u) \quad (\text{A-4})$$

の関係を用いると、

$$\begin{aligned} \phi_p = & \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{r'^{n+1}} r^n \left\{ P_n(\cos \theta') P_n(\cos \theta) \right. \\ & + 2 \sum_{m=1}^n \frac{(n-m)!}{(n+m)!} P_n^m(\cos \theta') P_n^m(\cos \theta) \\ & \times \cos m(\varphi - \varphi') \Big\} ; r < r' \quad (\text{A-5-a}) \\ = & \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_{n=0}^{\infty} r'^n r^{-n-1} \left\{ P_n(\cos \theta') P_n(\cos \theta) \right. \\ & + 2 \sum_{m=1}^n \frac{(n-m)!}{(n+m)!} P_n^m(\cos \theta') P_n^m(\cos \theta) \\ & \times \cos m(\varphi - \varphi') \Big\} ; r > r' \quad (\text{A-5-b}) \end{aligned}$$

式(A-5-a, b)は、点電荷は  $r < r'$  の領域では  $r^n (n \geq 0)$  の依存性を持つ電位を、 $r > r'$  の領域では  $r^{-n-1}$  の依存性をもつ電位を作ることを示している。

誘電率が一様な粒子が電界中にある場合には、その表面にのみ分極電荷が現れるので、これにより点  $(r, \theta, \varphi)$  に作られる電位  $\phi$  は、式(A-5)の積分で表される。すなわち、

$$\phi(r, \theta, \varphi) = \int_{\text{surface}} \frac{\sigma}{4\pi\epsilon_0 |r - r'|} dS \quad (\text{A-6})$$

ただし  $\sigma$  は表面電荷密度、 $\epsilon$  は媒質の誘電率

粒子が球形であれば、粒子中心を座標の原点  $r=0$  にとれば、表面電荷のある位置  $r'$  は一定であり、粒子の外側では常に  $r > r'$  であるから、ここにおける電位分布は、式(A-5-b)の積分により、 $r^{-n-1}$  の依存性を持つことがわかる。

これに対し、粒子が図1のように非球形の場合には、

1)  $r > r_{\max}$  ではすべての分極電荷が  $r > r'$  の位置にあるので、球形粒子の場合と同様に、式(A-5-b)の積分により、誘導される電位は  $r^{-n-1}$  の依存性を持つ。

2)  $r_{\min} < r < r_{\max}$  では、分極電荷の一部は  $r' < r$  の位置にあり、残りは  $r' > r$  の位置にあるので、式(A-5-a)と(A-5-b)の両方の積分が現れ、誘導される電位には  $r^{-n-1}$  のみならず  $r^n$  の依存性を持つ項も現れる。

## 付録B 双極子に働く力

双極子  $\mathbf{p}_s = (p_{sx}, p_{sy}, p_{sz})$  の作る電位  $\phi$  は、

$$\phi = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{\mathbf{p}_s \cdot \mathbf{r}}{r^3} \quad (\text{B-1})$$

であるので、これの作る電界  $\mathbf{E} = -\nabla\phi$  の中に置かれた双極子  $\mathbf{p}_p$  に働く力  $\mathbf{F}$

$$\mathbf{F} = (\mathbf{p}_p \cdot \nabla) \mathbf{E} \quad (\text{B-2})$$

の  $x$  成分を書き下せば、

$$\begin{aligned} F_x = & p_{px} \left\{ p_{sx} \left( \frac{9x}{r^5} - \frac{15x^3}{r^7} \right) + p_{sy} \left( \frac{3y}{r^5} - \frac{15x^2y}{r^7} \right) \right. \\ & + p_{sz} \left( \frac{3z}{r^5} - \frac{15x^2z}{r^7} \right) \Big\} + p_{py} \left\{ p_{sx} \left( \frac{3y}{r^5} - \frac{15x^2y}{r^7} \right) \right. \\ & \left. - \frac{15x^2y}{r^7} \right\} + p_{sy} \left( \frac{3x}{r^5} - \frac{15xy^2}{r^7} \right) \\ & - p_{sz} \frac{15xyz}{r^7} \Big\} + p_{pz} \left\{ p_{sx} \left( \frac{3z}{r^5} - \frac{15x^2z}{r^7} \right) \right. \\ & \left. - p_{sy} \frac{15xyz}{r^7} + p_{sz} \left( \frac{3x}{r^5} - \frac{15xz^2}{r^7} \right) \right\} \end{aligned} \quad (\text{B-3})$$

$y$  成分に関しては、式(B-3)で  $(x \rightarrow y, y \rightarrow z, z \rightarrow x)$ 、 $z$  成分に関しては  $(x \rightarrow z, y \rightarrow x, z \rightarrow y)$  と置き換えたものになる。電荷の作る電界により双極子が受けける力についても同様に求められる。