

繰返し電界による圧電セラミックスのき裂進展挙動

卒業論文要旨

システム工学群

機能性材料工学研究室 1180144 藤澤 克行

1. 緒言

圧電セラミックスは荷重を負荷すると電位差が生じる圧電効果と電界を負荷すると微小変形が生じる逆圧電効果を有する。このため工業分野では振動センサーや高精度位置制御用アクチュエータなどで幅広く使用されている。このようなデバイスの使用状況において、繰返し電界負荷を受ける場合が多く存在する。特に圧電セラミックスは脆性材料なので微小なき裂であっても、繰返し電界負荷によってそのき裂が進展し、システムが致命的な破壊に至ることも考えられるので、このような状況下でのき裂進展挙動を明らかにしておくことも重要である。

研究室ではこれまでに二次元貫通切欠きを有する PZT 試験片を用いて正弦波、矩形波および台形波状の電界を負荷した場合のき裂の進展挙動影響の調査が行われてきた。き裂長さ、進展速度は負荷する電界に依存し、矩形波状の電界を負荷した場合は正弦波状の電界に比べて、き裂進展が助長されることや、き裂進展速度が速くなることに加えて、進展速度のばらつきも大きくなることが明らかにされた。本研究では PZT と異なる圧電特性を持つリラクサー型圧電セラミックス PNN-PZT($0.55\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-}0.45\text{Pb}(\text{Zr}_{0.3}\text{Ti}_{0.7})\text{O}_3$)を用いて、正弦波状および矩形波状の繰返し電界下、き裂の進展挙動に及ぼす影響を調査し、材料間での挙動の違いを調査した。

2. 実験材料

対象となる PNN-PZT 分極材は研究室にて自製した。原材料として PbO 、 Nb_2O_5 、 NiO 、 TiO_2 、 ZrO_2 を用いてこれらを化学量論的に調合し、エタノールを加えてポットミルによって混合および粉碎を 48 時間行った。エタノールを除去し、マッフル炉にて仮焼きを行った。この仮焼き粉とバインダーを練合し、寸法が $25\text{mm}\times 40\text{mm}$ の成形型に入れ、 90MPa で加圧し、厚さが 1mm となるように、成形体を焼結した。焼結後、 $25\text{mm}\times 20\text{mm}$ の寸法に切り出し、研磨し、銀ペーストを塗布して焼成を行った。表 1 に仮焼き温度および成形体の焼結温度、銀の焼成温度を示す。分極処理として PNN-PZT 片をセットし、ホットプレートの上で 90°C に加熱したシリコンオイル中で 30 分間 2kV/mm の電界を負荷した。その後ホットプレートからピーカーを自然冷却しながら、さらに 30 分間電界を保持した。分極処理後、変性エタノールに 12 時間浸し、エイジングを行った。圧電定数、比誘電率、誘電損失の平均値はそれぞれ 548pC/N 、 4966 、 0.0312 であった。PNN-PZT 分極材を $5\text{mm}\times 5\text{mm}$ に切り出し、深さが $2\sim 2.5\text{mm}$ の切欠きを厚さ方向中心に入れ、試験片とした。

Table1 Conditions of specimen preparation

Calcining	$900^\circ\text{C}/4\text{hours}$
Sintering	$1200^\circ\text{C}/7\text{hours}$
Silver baking	$800^\circ\text{C}/20\text{minutes}$

3. 実験方法

試験台に試験片を接着し、シリコンオイルが入った油槽に浸漬した。そして導線を接続した試験片に信号発生器と増幅器を用いて電界を負荷した。電界波形は正弦波、 400 、 600 、 800 、 900 および 1000V/mm 、また矩形波、 500 および 600V/mm の条件とした。平均電界は 0 とした。周波数はすべての条件で 5Hz とした。また実験温度は実験室温度とした。実験システムを模式的に図 1 に示す。

き裂長さの測定間隔は電界負荷の開始から最初の測定を 1 分後とし、その後は適宜、測定間隔を広げ最大 24 時間間隔でき裂長さの測定を行った。切欠き底からのき裂長さを c とし、また電界負荷の繰返し数を N とする。き裂進展速度 dc/dN は単位繰返し数あたりのき裂進展長さの増加量とした。

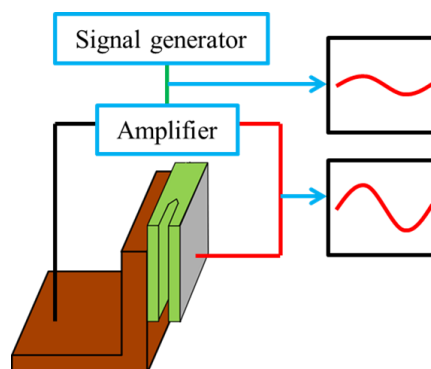


Fig.1 Schematic illustration experimental system

4. 実験結果

4.1. き裂進展挙動

実験条件のうち、き裂進展が生じた条件について、図 2 および図 3 に電界負荷の繰返し数とき裂長さの関係として結果を示す。矢印が付いているプロットは、48 時間以上き裂進展が無く、き裂が停留したことを表している。

図 2 に正弦波電界、 900V/mm および 1000V/mm の電界を負荷した場合の結果を示す。 900V/mm での実験では最終的に測定していたき裂と、測定面上の他のき裂と合体したためこの時点で実験を終了した。また 900V/mm 、 1000V/mm 共に実験終了後の圧電定数を測定した結果、分極方向が全面的に反転していることが分かった。先行研究で用いられた PZT における実験では正弦波電界、 400 および 600V/mm でき裂進展が生じたが、PNN-PZT では同じ条件ではき裂進展が生じなかった。またき裂長さは PNN-PZT、 1000V/mm および 900V/mm 共に 0.4mm 程度で大きな差異は見られなかった。

図 3 に矩形波電界、 500V/mm および 600V/mm の電界を負荷した時の結果と、比較のため PZT に同様の電界を負荷した結果をまとめて示す。 600V/mm では PNN-PZT においてき裂進展が停留したが、全ての試験片において実験終了後の全面的な分極反転が見られた。PZT に 500 および 600V/mm の矩形波電界を負荷した場合において、共にき裂

は約 1.4mm まで進展した。PNN-PZT と比較すると 500V/mm では約 0.5mm 短く、600V/mm では 1.2mm、PNN-PZT の方が短かった。

次に分極反転について考察する。先行研究では PZT において、き裂先端付近での部分的な分極反転によって繰返しひずみが生じ、これが電界負荷時に駆動力となり、き裂進展を助長すると考えられた。本研究では矩形波電界において、500V/mm で 0.9mm まで進展したが、高い電界の 600V/mm では 0.2mm 程度で停留した。これは先に述べたように高い電界下では PNN-PZT が全面的に分極反転をしたためと考えられる。また正弦波電界でき裂進展が生じたのは、900V/mm 以上の高い電界を負荷した場合であったが、停留したき裂長さが 0.4mm と短かったのも、同様に全面的な分極反転が生じていたためと考えられる。

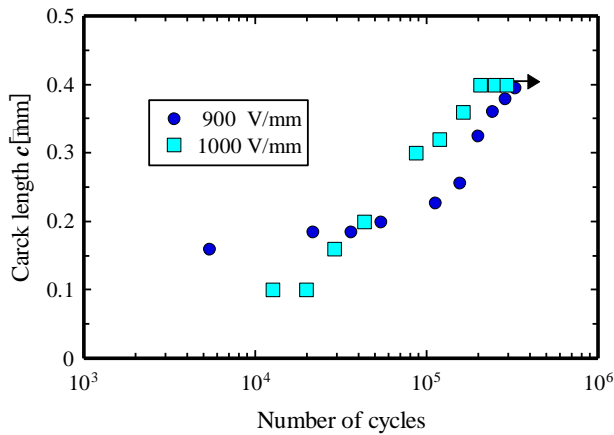


Fig.2. Relationships crack length and number of cycles by sine wave

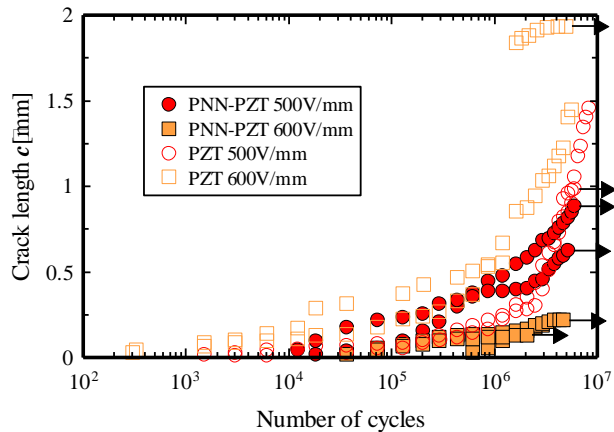


Fig.3. Relationships crack length and number of cycles by rectangular wave

4.2. き裂進展速度

4.1 節に示したき裂長さの結果より、き裂進展速度 dc/dN を算出した。 dc/dN とき裂長さ c の関係を結果を図 4 に示す。矩形波電界、500V/mm のき裂進展速度はややばらつきがみられたが、き裂長さの増加と共に dc/dN は緩やかに低下したが、それ以外の条件では dc/dN は急激に低下した。これは、先に述べた材料の分極反転の挙動と関係しており、500V/mm ではき裂先端付近などで一部に分極反転が生じたことによる局所的な繰返しひずみがき裂進展を加速させていると考えられる。

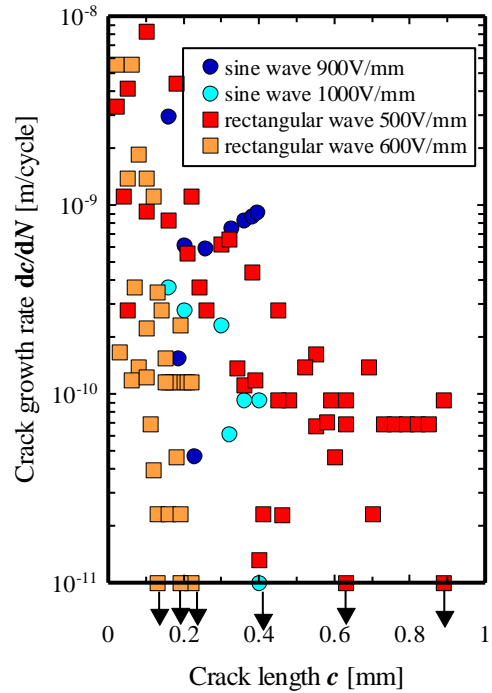


Fig.4. Relationships crack growth rate and crack length

5. 破面様相観察

実験終了後、矩形波電界、600V/mm で実験を行った試験片を SEM で観察した。図 5 に切欠き底付近の SEM 画像を示す。繰返し電界負荷によるき裂の破面は粒界割れが支配的であった。しかしながら、き裂前縁の形状は様々ではなく、き裂が内部ではあまり進展していない様相が見られ、この点は PZT と異なる結果であった。また本材料には空隙が多く存在したが、この周囲は粒界割れが多く見られた。

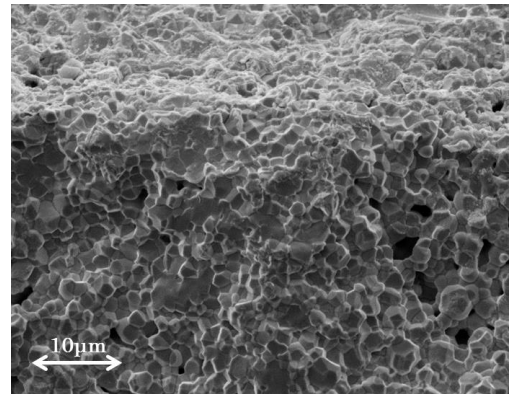


Fig.5. SEM observations of fracture surface

6. 結言

- (1) 矩形波電界を負荷した場合、正弦波状の電界を負荷した場合と比べて、低い電界でき裂が発生しやすく、早期よりき裂が発生しやすいが、進展速度がばらつく傾向がある。
- (2) PNN-PZT に正弦波および矩形波電界を負荷した場合、き裂進展は生じるが、電場の繰返し数の増加に伴い、全面的な分極反転が起こりやすく、PZT よりもき裂進展が生じにくい。
- (3) き裂は内部までき裂進展せず、また空隙周囲は粒界割れが支配的となる。