

電気泳動堆積を用いた傾斜機能 PNN-PZT 系圧電セラミックスの強度特性

Strength properties of functionally graded PNN-PZT piezoelectric ceramics with electrophoretic forming

知能機械システム工学コース

材料強度学研究室 1225044 坂東 侑磨

1. 緒言

圧電セラミックスは、荷重を負荷すると電圧が発生する圧電効果と電圧を印加すると変形が生じる逆圧電効果の両方の特性を有しており、電気的エネルギーと機械的エネルギーを相互変換できる素子である。中でもチタン酸ジルコン酸鉛(PZT)はキュリー点が高く大きな圧電定数を有する代表的材料として広く利用されている。

圧電セラミックスを用いた圧電アクチュエータには、一般的にバイモルフ型と積層型に大別することができる。弾性板の両面に圧電セラミックスを貼り合わせた前者のタイプでは、表裏の圧電セラミックスが互いに逆方向に変形することで比較的大きな屈曲変位を出力できる。しかし、繰り返し使用することにより圧電セラミックスと弾性板の接着部に損傷が生じ、材料の破壊に至る場合がある。このような問題に対し、圧電特性を厚さ方向に変えることで傾斜機能を持たせ、圧電セラミックス単体で屈曲変位を出力できる傾斜機能化モノモルフ型アクチュエータが研究されている。このような傾斜機能化圧電セラミックスの成形に電気泳動堆積法(EPD)を利用する方法が提案されており、著者の研究室でも圧電セラミックスPNN-PZTの組成を徐々に変えながら電気泳動堆積させ傾斜機能化させるプロセスを検討してきた。

本研究では、2種類のPNN-PZTの混合割合を連続的に変化させながら電気泳動堆積させるプロセスを確立するとともに、焼結前に一軸加圧成形を施すことで傾斜機能圧電セラミックスの強度特性、圧電特性の向上を試みた。

2. 実験方法

2.1 材料

使用する圧電セラミックスはリラクサー型強誘電体セラミックスの $0.55\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-}0.45\text{Pb}(\text{Zr}_{0.3}\text{Ti}_{0.7})\text{O}_3$ ⁽¹⁾(以下A材)と $0.15\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-}0.85\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ ⁽²⁾(以下B材)である。各原材料を所定の組成となるように調合し、遊星ボールミルを用いて300 rpmで30分間の粉碎と200 rpmで30分間の混合を行った。その後電気炉にて900 °Cで4時間の仮焼きを行い成形前材料とした。

2.2 試験片の作製

試験片の作製にはEPDにより成形を行った。その装置の概略を図1に示す。堆積槽内の懸濁液のA材とB材の混合割合を連続的に変えながら堆積を行う。流路に高低差を与え堆積させることで粒子が途中の管路に沈殿しないように工夫した。堆積プロセスの条件を表1に示した。

Table 1 Conditions of deposition process

Substrate dimension	25×40mm
Deposition container volume	200ml
Pump flow rate	7.5ml/min
Applied voltage	300V
EPD time	30minute

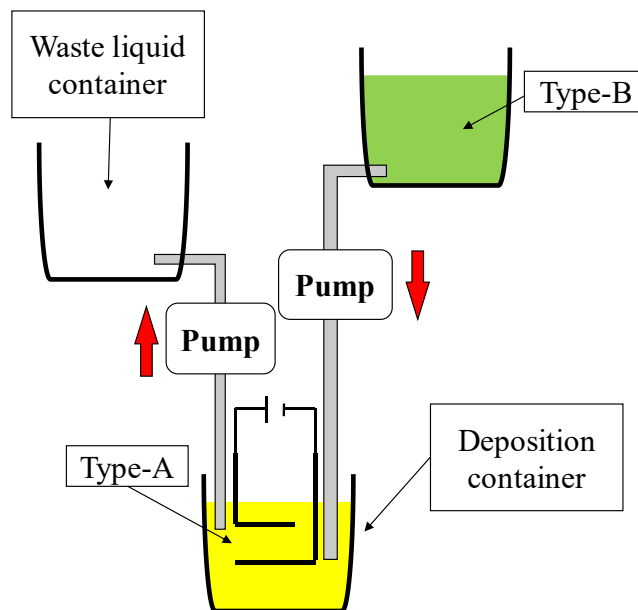


Fig. 1 Overall view of EPD

懸濁液は無水エタノール200 mlに、成形前材料10 gを入れ、遊星ボールミルで粉碎した後、分散材を560 μm入れて作製した。表1の条件でEPDを行い、堆積後成形体のエタノールを蒸発させるために常温で15分間放置した。

その後、成形体を加圧成形機にて90 MPaで1分間加圧し、1270 °Cで焼結した。傾斜機能材(以下FGM)を作製するときの焼結時間を決定するためにA材とB材の単層材を焼結時間を変えて作製し、強度特性と圧電特性への影響を調べた。

2.3 試験方法

作製した成形材を幅4 mmに切断して試験片を作製し、3点曲げ試験を行った。試験機のクロスヘッド速度を0.5 mm/min、支点間距離 L を12 mmで試験した。得られた破壊荷重 P_f から式(1)より曲げ強さ σ_f を求めた。

$$\sigma_f = 3P_f L / 2wt^2 \quad (1)$$

この時 t と w はそれぞれの試験片の厚さおよび幅である。破壊した試験片をスパッタリング処理をし、走査型電子顕微鏡(SEM)で破面観察を行った。

一部の材料は試験片の両面を鏡面処理し、分極処理を行った。分極の条件は温度150 °Cのシリコンオイル中で、電界3 kV/mmを30分印加後エイジングするものである。

3. 実験結果

3.1. 圧電特性

表2に測定したA材とB材の圧電定数 d_{33} を示す。焼結時間の違いで圧電定数に大きな違いはなかった。A材とB材を比べると大きな差異が認められたがモノモルフ型アクチュエータとして使用する場合、材料間の圧電定数に差がある方が大きな屈曲変位を得ることができるため適当である。

Table 2 Piezoelectric constant d_{33} [pC/N]

Sintering time	6hour	8hour	10hour
Type-A	820	890	810
Type-B	274	240	250

3.2. 強度特性

表3に単層材とFGMの曲げ強さを示す。なおFGMの焼結時間は曲げ強さと後述するワイブルプロットの結果から10時間を採用した。また比較のために多段的に堆積させるEPDのみで成形した試験片と加圧成形のみを行った試験片(以下UPM)の曲げ強さも併せて示す。また表4に測定した曲げ強さをワイブル分布にあてはめた時の形状母数を示す。A材では焼結時間8時間のものが最も曲げ強さが大きくばらつきも少ない、B材では焼結時間10時間が良好であった。いずれの材料も焼結前に加圧成形を施すことで、曲げ強さが著しく向上した。曲げ強さとワイブルプロットの結果から、FGMに使用する材料の焼結時間は2つ材料の強度が高く安定している10時間に決定した。またFGMも焼結前に加圧成形を施すことで曲げ強さが大きく向上し安定した。

Table 3 Bending strength [MPa]

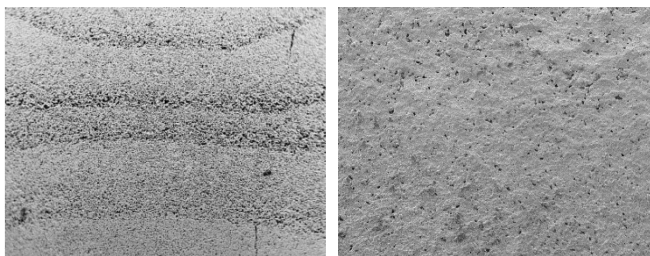
	UPM	EPD	6hour	8hour	10hour
Type-A	70.4	43.0	56.2	59.4	53.3
Type-B	73.4	23.0	57.4	53.6	67.9
FGM	—	20.0	—	—	60.5

Table 4 Shape parameter

	UPM	EPD	6hour	8hour	10hour
Type-A	9.2	5.3	8.0	11.1	9.3
Type-B	12.3	5.3	3.0	4.8	9.1
FGM	—	4.0	—	—	8.0

3.4. 破面観察

曲げ試験を行ったFGMの破面をSEMによって観察した結果を図2に示す。図2(a)は、多段EPDのみで成形した試験片の破面である。層間に多くの空隙が存在しており、強度を低下させる原因となっていたが、図2(b)に示した加圧成形を併用したものには層間の空隙といった大きな欠陥は見られなかった。

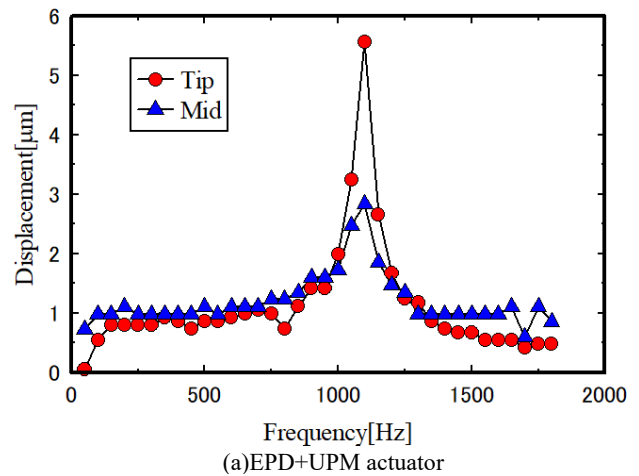


(a)Multi step EPD (b)Continuous EPD
Fig. 2 FGM breakdown 1mm

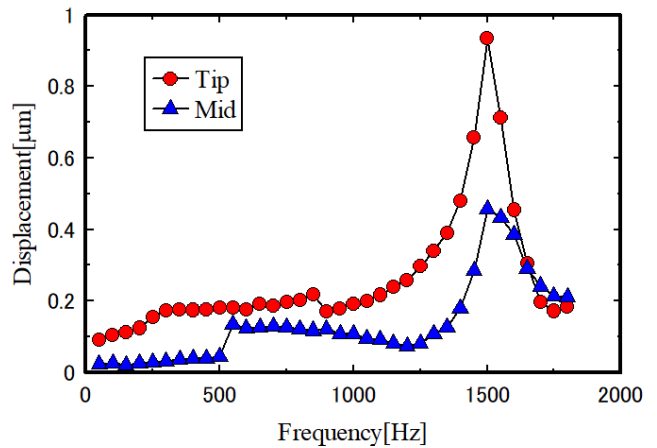
3.5. アクチュエータ特性

分極処理を行ったFGM(10.0×7.0mm)を片持ち梁型の状態で治具に取り付け、200Vの交流電圧を印加した。レーザードップラー振動計を用いて梁の周波数との関係として先端部と中央部の変位を測定した結果を図3に示す。EPD+UPM材から作製したアクチュエータの共振周波数1100 Hzでの先端部の

変位は5.56 μm 、中央部の変位は2.84 μm であり、屈曲変位をしているといえる。また多段EPDのみの材料を用いたアクチュエータの共振周波数1500 Hzでの先端部の変位は0.96 μm であり、焼結前に加圧成形を行うことで、アクチュエータの屈曲変位は著しく向上した。



(a)EPD+UPM actuator



(b) Multi step EPD actuator

Fig. 3 Relationship between displacement and frequency

4. 結言

EPDの連続成形プロセスを確立し、EPD成形材に一軸加圧成形を行うことでその強度の向上を試みた。得られた結果を以下に示す。

- (1) A材の圧電定数は810 pC/N、B材は250 pC/Nと大きな差があり傾斜機能材に使う2つの材料としては比較的良い材料であった。
- (2) 焼結前に一軸加圧成形を施すことによりEPDのみの材料より大きな曲げ強さを得ることができた。また曲げ強さのばらつきもEPDのみの材料に比べて向上した。
- (3) EPD後加圧成形した材料で作製した傾斜機能化モノモルフ型アクチュエータはEPDのみの材料で作製したアクチュエータに比べて大きな屈曲変位を出力した。

文献

- (1) Du, Jianzhou, et al. "Effects of Fe_2O_3 doping on the microstructure and piezoelectric properties of 0.55 Pb ($\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}$) O_3 -0.45 Pb ($\text{Zr}_{0.3}\text{Ti}_{0.7}$) O_3 ceramics." *Materials Letters* 66.1 (2012): 153-155.
- (2) Dae Su Lee, et al. "The Sintering Behavior and Piezoelectric Properties of $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbTiO_3 - PbZrO_3 Ceramics Using Two-Step Calcination" *Journal of the Korean Physical Society*, Vol. 42, (2003), S1215~S1219