

BNT-BT-ST 系非鉛圧電セラミックスの遅れ破壊に及ぼす環境の影響

Effect of environments on the delayed fracture of BNT-BT-ST lead free piezoelectric ceramics

航空宇宙工学コース

材料強度学研究室 1255036 筒井 爽太

1. 緒言

圧電セラミックスは機械的エネルギーと電気的エネルギーを可逆的に変換できる特徴を持っており、応答性の高さなどからセンサーやアクチュエーターなどに使用されている。一般的に使用されている圧電セラミックスの多くは、圧電性に優れたチタン酸ジルコン酸鉛(PZT)である。しかし、PZTに含まれる鉛は環境への負荷が大きく、RoHS 指令によって使用が制限されるようになってきた。そのため、現在では例外となっている PZT に対しても今後規制の対象となる可能性が高い。そのため、鉛を含まない非鉛圧電セラミックスの研究は重要である。

一般的にセラミックスは環境中の水分の影響を受けて遅れ破壊を生じることが知られている。加えて、圧電セラミックスが実用に供される場合、機械的負荷だけでなく、電気的な負荷も受けるのが一般的である。以上のことから、長期使用に対する圧電材料の信頼性確保のためには遅れ破壊に及ぼす環境の影響のみならず外部電界の影響なども把握しておくことが必要である。

PZT から非鉛圧電材料へ移行するにあたって、非鉛圧電材料の静的強度に加えて、遅れ破壊に及ぼす各種影響の把握も重要となる。そのため、本研究では分極処理が静的強度に及ぼす影響に加え、環境及び外部電界が遅れ破壊強度挙動に及ぼす影響を調査した。

2. 実験方法

2.1. 材料

本実験では BNT 系圧電セラミックスの圧電特性向上を目的として改良をされた BNT-BT-ST 系セラミックスを用いた。その組成は $85(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{TiO}_3 - 12\text{BaTiO}_3 - 3\text{SrTiO}_3$ である。

組成式に基づいて化学量論的に計量した原材料を遊星ボールミルによって、無水エタノール中で湿式粉碎混合した。その後エタノールを蒸発させ、粉末状にした後 $250\text{ }\mu\text{m}$ のふるいに通し電気炉で $900\text{ }^\circ\text{C} \cdot 3\text{ hr}$ の仮焼きを行った。

仮焼粉に対して $10\text{ wt\%}$ のバインダー(PVA)を添加し、 $25 \times 40\text{ mm}$ の長方形の成形型を用い、 90 MPa 、負荷時間 60 秒 で加圧成形を行った。加圧後高温電気炉で $1180\text{ }^\circ\text{C} \cdot 6\text{ hr}$ の焼結を行った。焼結後の材料を $5 \times 20 \times 1\text{ mm}$ に加工後、片面を鏡面研磨、面取りを行い曲げ試験片を作製した。分極処理を行う試験片については $5 \times 20\text{ mm}$ の両面を鏡面研磨とし、銀ペーストを塗布した後、マッフル炉にて焼き付けを行った。

分極処理は $90\text{ }^\circ\text{C}$ に加熱したシリコンオイル中で 2 kV/mm の電界を 30 分 印加した後、室温まで自然冷却した。さらに 12 時間 エタノール中でエージングを行った。電界を印加する試験片には導線をはんだづけした。

2.2. 静的強度試験

曲げ試験は電磁式微小試験機(容量 100 N)を用いて支点間距離 16 mm の三点曲げ負荷で行った。クロスヘッド速度は 0.5 mm/min とした。電界を印加した状態での試験では高圧電源を用いた。

2.3. 遅れ破壊試験

三点曲げ試験と同様の試験片を用いて支点間距離 16 mm にて試験を行い、てこを用いた自作の試験機にて試験を行った。環境制御下で試験を行う際は恒温恒湿器に試験機を入れて実験を行った。試験環境及び試験片条件は表 1 のとおりである。試験の打ち切り時間を 48 時間 とし、破断が生じない場合は未破断とした。環境制御にて試験を行う際は試験片を試験開始前に 4 時間以上 、所定の環境で保持した。

Table 1 Experimental conditions

Poling condition	Electric field [v/mm]	Temperature [$^\circ\text{C}$]	Relative humidity [%]
Without poling	0	Lab. condition 22.2~27.4	Lab. condition 33.4~59.3
		40	40
		40	80
With Poling	400 -400	20	80

3. 実験結果及び考察

3.1. 静的強度試験

非分極材、分極材および電界を印加した分極材の三点曲げ静的強度試験における荷重変位曲線の例を図1に示す。また、曲げ強さ及び荷重変位曲線の傾きの平均を表2に示す。図1、表2から分極処理によって荷重変位曲線の傾きが小さくなる結果が得られた。これは試験片厚さ方向に分極された各結晶及びドメイン内で曲げの引張応力による分極反転が生じ、長手方向に分極反転ひずみが発生したためと考えられる。また、表2より非分極材に比べて分極材の曲げ強さが向上する傾向が見られた。

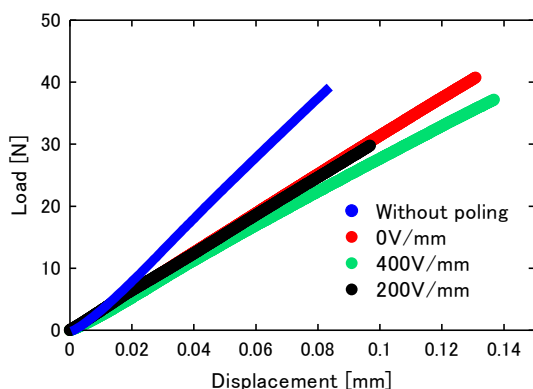


Fig. 1 load-displacement curves in 3-point bending.

Table 2 experimental conditions in 3-point bending tests

Poling condition	Electric field [V/mm]	Bending strength [MPa]	Slope [N/mm]
Without poling	0	138	415
With poling	0	155	303
	200	139	313
	400	154	276

3.2. 遅れ破壊試験

実験室環境下での遅れ破壊試験の結果を図2に示す。縦軸は負荷した曲げ応力、横軸は破断までの時間であり、図中矢印で示したプロットは未破断となったデータを表している。曲げ応力が90-110 MPaの範囲で遅れ破壊が生じたことを表しているが、応力が低いほど長寿命となる傾向が見られた。遅れ破壊が生じた曲げ応力は静的強度の65%から80%の間にあった。打ち切りの48時間に対する強度として85 MPaが得られた。

温度と湿度を制御した状態での非分極材の遅れ破壊の試験結果を図3に示す。負荷した曲げ応力レベルは80 MPaに固定した。 $T=20^{\circ}\text{C}$, $RH=80\%$ と $T=40^{\circ}\text{C}$, $RH=40\%$ の環境下に比べて、 $T=40^{\circ}\text{C}$, $RH=80\%$ の環境下では破断までの時間が大きくばらつく結果となった。

$T=20^{\circ}\text{C}$, $RH=80\%$ の環境下での分極材および電界を印加した状態での遅れ破壊試験の結果を図4に示す。図3と比較し、非分極材と分極材では80 MPa付近では遅れ破壊強度に有意な差はみられなかったが、正電界の印加によって遅れ破壊時間はばらつき、0 V/mmに比べて400 V/mmは破断が多数

生じたが、負電界の-400 V/mmではこの応力レベルで3本すべて未破断となった。

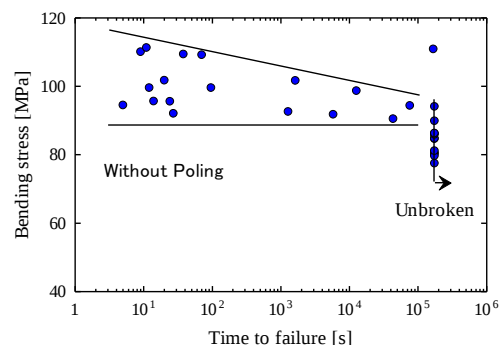


Fig. 2 Relationship between applied bending stress and time to failure in Lab. environment.

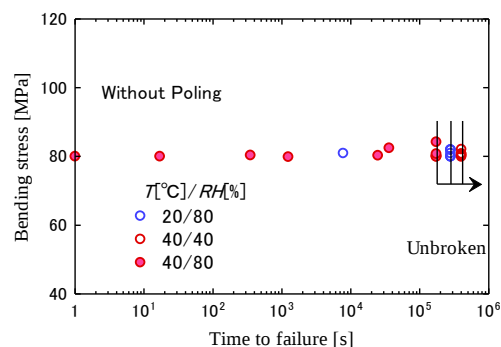


Fig. 3 Relationship between applied bending stress and time to failure in the controlled conditions

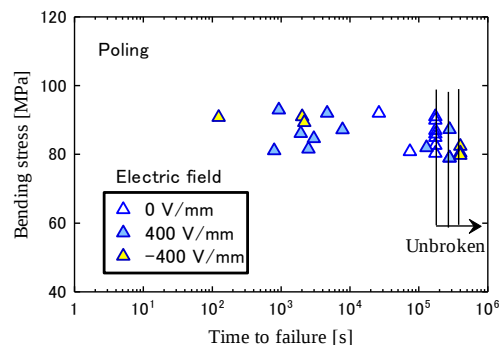


Fig. 4 Effect of electric field on the delayed fracture

4. 結言

BNT-BT-ST系非鉛圧電セラミックスの環境制御下における遅れ破壊特性を調査した結果、以上の結論を得た。

(1)分極材及び400 V/mmの電界下では非分極材に比べ曲げ強さは16 MPa程度高い結果が得られた。

(2)高温高湿度環境における遅れ破壊寿命はばらつく結果となった。

(3)低温高湿度環境において0 V/mmと非分極材の差は見られなかったが、400 V/mmの正電界を印加した場合破断時間がばらつく結果が得られた。

5. 参考文献

省略