PZT の圧電特性に及ぼすき裂の発生 および進展の影響

蔭山 健介 加藤 寛
畑本 隆[†] 浅沼 孝治^{††}

埼玉大学工学部機械工学科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 63, No. 10 (1999), pp. 1231-1237

Influence on Crack Nucleation and Propagation on the Piezoelectric Properties of PZT

Kensuke Kageyama, Hiroshi Kato,
Takashi Hatamoto[†] and Takaharu Asanuma^{††}

Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering, Saitama University, Urawa 338-8570

Microfracture in piezoceramics influences on its piezoelectric properties and their relationship can lead to development of self-diagnosing material using the piezoelectric properties. In this study, Vickers indentations were carried out to introduce small cracks in PZT specimens the specimens were subjected to a hitting test for evaluation of the piezoelectric properties. Then PZT specimens were bent to extend cracks on the surface of the specimen and the piezoelectric properties were measured. The waveform of a piezoelectric signal had a first positive peak and a second negative peak. An amplitude ratio (r_p) of the first peak to the second peak was used to evaluate the piezoelectric properties of specimens. The ratio r_p increased with the number of the Vickers indentation on the surface of specimens. When an interval of indentation positions is 0.3 mm, cracks coalesced. When the indentation array is perpendicular to hitting and poling directions, r_p increased with the number of Vickers indentation. Following repeated bending of the specimen, the crack propagated successively to increase the ratio r_p . Under the same loading conditions r_p -crack propagation curves showed the same change and the same increasing ratio of r_p occurred just before breaking of specimens. These results show the possibility of prediction of fracture in PZT by measurement of the piezoelectric properties.

(Received June 11, 1999; In Final Form August 6, 1999)

Keywords: piezoelectric properties, ceramics, fracture, self-diagnosing, vickers indentation

I. 緒 言

圧電セラミックスはセンサ、アクチュエータとして広く実用化されており、その中の一つに AE センサへの適用がある⁽¹⁾。材料中の破壊の際に、アコースティック・エミッション(AE)と呼ばれる弾性波が発生するが、AE センサはこれを圧電効果により電圧に変換して検出するものであり、破壊の動的な検出を行うことを可能としている。AE センサによる材料の非破壊評価には既に数多くの実績があり⁽²⁾⁻⁽⁴⁾、特に、セラミックスのような破壊の起点が数ミクロン程度の微小な領域である場合、現在のところ、最も有効な非破壊評価手法であると考えられている。

一方、材料破壊の新しい評価手法の一つとして、材料自体に非破壊評価の機能を持たせる自己診断材料の概念が提案さ

れており、カーボンファイバや光ファイバをコンクリート等と複合化し、ファイバの電氣的あるいは光学的特性を測定することにより内部の破壊を検知する試みがいくつか報告されている⁽⁵⁾⁽⁶⁾。ここで、圧電セラミックスの自己診断材料への適用を考えてみる。圧電セラミックスの圧電係数などの圧電特性は微視的破壊により影響を受けることが予想される。なぜならば、圧電効果とは結晶粒の分極が一方向にそろうことから生じるが、これらの結晶粒が損傷または変形を受ければ分極の強さや方向が変化し、圧電特性が変化すると考えられるからである。すなわち、このような圧電特性の変化を利用することにより、自ら微視破壊の状況を診断する自己診断セラミックスの開発が可能と考えられる。

圧電セラミックスの破壊に関する研究として、電氣的負荷が破壊特性に及ぼす影響についてはすでにいくつかの報告があり⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾、分極によって破壊の異方性が生じ、分極方向に平行なき裂と垂直なき裂とではき裂進展抵抗が異なることなどが明らかにされている。しかし、圧電材料内部の破壊が生

[†] 埼玉大学学生 (Undergraduate Student, Saitama University)

^{††} 埼玉大学大学院生 (Graduate Student, Saitama University)

じたとき、その圧電特性にどのような影響を及ぼすか、また、圧電特性の測定による破壊の検知の可能性についてはほとんど研究されていない。

そこで、本研究では、圧電特性の測定による圧電材料の破壊検知の可能性を探ることを目的とする。このため、圧電材料として代表的なセラミックスである PZT(Pb(Zr-Ti)O₃ 系セラミックス)を用い、ビッカースインデンテーションによりき裂を発生させた。次いで、これらの試料について打撃法により PZT の圧電波形を測定し、き裂発生が圧電特性に及ぼす影響を調べた。さらに、曲げ試験によりき裂を進展させ、き裂進展が圧電特性に及ぼす影響を調べた。

II. 実験方法

試験材料として、AE センサに用いられている市販の PZT(富士セラミックス, C-6)を選んだ。その特性を Table 1 に示す。試験片形状を Fig. 1 に示すが、ポーリング処理により試験片長手方向に分極している。そして、Fig. 2 に示す装置により試験片上端を打撃し、圧電波形の測定を行っ

Table 1 Physical properties of specimens.

Density	7400 kg/m ³
Elastic modulus	52 GPa
Curie temperature	593 K
Relative dielectric constant	2100±300
Piezoelectric charge constant	360×10 ⁻¹² m/V

Fig. 1 Shape and size of specimen.

Fig. 2 Schematic system for measuring waveforms of electric polarization potential.

た。試験片端部から1~2 mmの高さまで3.7 gのハンマーを電磁コイルにより持ち上げ、電磁コイルの電流を切ることにより落下させて試験片に打撃を与えた。試験片両端部は導電テープを接着し、両端の電位差変化をデジタルストレージにより測定した。測定時のサンプリングレートは200 kHz、波形長は5.12 msであった。測定された波形を、パーソナルコンピュータに転送し、圧電波形の解析を行った。なお、打撃による試験片の破損、き裂の発生、進展等は、光学顕微鏡による観察では認められなかった。

まず平滑材のままで圧電波形を測定し、次に、荷重49 N(5 kgf)、保持時間30 sでビッカース圧子押し込んでき裂を発生させた試料について測定した。圧痕の導入方向を Fig. 3 に示す。き裂の発生方向は、Fig. 3 に示す x , y 方向であり、圧痕間隔 d は0.3, 0.6, 1.2 mmとして、 x 方向、 y 方向に、それぞれ1, 3, 5ヶ所圧痕を導入し、その後打撃試験を行い圧電波形を測定した(x 方向の1.2 mm間隔については試験片の幅が足りないため圧痕は3ヶ所までしか導入していない)。次に、荷重49 N(5 kgf)、保持時間30 sで Fig. 3 に示す試験片表面の中央部にビッカース圧痕を1回導入して、圧痕を導入した面を引張面として4点曲げによる繰り返し負荷試験を行い、 x 方向のき裂を進展させた。4点曲げ試験は上スパン30 mm、下スパン10 mm、C.H.S.= 1.38×10^{-4} mm/sで行った。負荷条件は、最大荷重を4.9 N(0.5 kgf)ずつ増やして繰り返し負荷をかけた場合と、最大荷重を19.6 N(2 kgf)の一定にして繰り返し負荷をかけた場合の2条件について行った。そして、繰り返し負荷試験中、徐荷時に試験片を取り出して光学顕微鏡により x 方向のき裂長さを測定するとともに、上記の打撃装置により打撃試験を行って、圧電波形を測定した。以後、試験片が破断するまで上記の手順を繰り返した。

Fig. 3 Schematic of Vickers indentation array on specimen surface.

Ⅲ. 実験結果

1. 打撃法による圧電波形の測定

Fig. 4 に打撃試験により測定された圧電波形の一例を示す。このように、二つのピークからなる明瞭な圧電波形を得ることができた。ただし、今回の実験では、同一試験片に同一条件で打撃を与えたのにも関わらずピークの絶対値は大きくばらついた。これは、ハンマーの振り上げ高さの誤差が大きいこと、試験両端部の導電テープの接着状態、下端部の固定などの再現性に問題があったためと考えられる。そこで、以降はこの波形から評価を行うために、同一条件で第一ピークが 19~21 V のデータを 10 個得られるまで測定を何回か繰り返して、各データの第一ピークと第二ピークの大きさの比 r_p を求めた。このとき、ハンマーの速度は測定していないが、ハンマーの重量は 3.71 g であり、ハンマーの振り上げ高さは 1~2 mm の間で圧電波形の第一ピークが 19~21 V となるように調整した。

2. ビッカース圧痕導入によるき裂発生と圧電特性の関係

Fig. 5 および Fig. 6 に、 x 方向、 y 方向に圧痕を導入した

ときの r_p の変化を示す。各条件につき 3 本の試験片を使用しており、図中の凡例は試験片の番号を示している。Ⅲ.1 で述べたようにピークの絶対値が大きくばらついたが、Fig. 4 に示す第一ピークが 19~21 V の各データの r_p についても

Fig. 4 Typical piezoelectric waveform measured by hitting plain specimen.

Fig. 5 Relationship between r_p and number of indentation when indentations were introduced in direction of x -axis at intervals of 0.3 mm (a), 0.6 mm (b) and 1.2 mm (c).

Fig. 6 Relationship between r_p and number of indentation when indentations were introduced in direction of y -axis at the intervals of 0.3 mm (a), 0.6 mm (b) and 1.2 mm (c).

ばらつきが大きかった。しかし、いずれの場合も圧痕数の増加に伴い、 r_p が増加する傾向が認められた。特に、圧痕の間隔 0.3 mm で x 方向に圧痕を導入した場合については、他の場合よりも顕著な r_p の増加を示した。他の条件については明確な差異は認められなかった。

Fig. 7 は、 y 方向に 0.3 mm 間隔で導入した圧痕を SEM により観察したものである。0.3 mm 間隔で導入すると各圧痕から発生した y 方向のき裂が合体し、より大きなき裂に成長していた。一方、0.6 mm 間隔で圧痕を導入したときは一部のみに y 方向のき裂の合体が認められ、1.2 mm 間隔で圧痕を導入したときは、き裂の合体は全く生じなかった。 x 方向に圧痕を導入したときの x 方向のき裂の合体挙動についても同様な観察結果が得られた。

3. 繰り返し負荷試験によるき裂進展と圧電波形の関係

Fig. 8 および Fig. 9 に、繰り返し負荷試験時のき裂進展量と測定された圧電波形から得られた r_p との関係を示す。Fig. 8(a)および(b)と Fig. 9(a)～(c)は、同一条件で試験を行った異なる試料の結果を示す。き裂進展に伴い r_p の増加が認められた。これらの繰り返し負荷試験による r_p の増加は、3.2における圧痕数の増大に伴う r_p の増加よりも顕著であった。また、同一荷重条件ではき裂進展量に対する r_p の増加挙動は類似しているが、荷重条件が異なると r_p の増加のしかたも異なり、最大荷重を増やしていった場合と比較して、最大荷重一定の場合は、破断直前に r_p が急激に増加する傾向が見られた。さらに、ここで Fig. 8(a)に示すように、き裂発生以前の r_p を r_p^0 とし、破断直前の r_p を r_p^f としたと

Fig. 7 SEM micrograph of indentation array on surface of specimen (indentation array is parallel to polling direction and interval of indentation is 0.3 mm).

Fig. 8 Relationship between crack extension and r_p under repeated loading (maximum load was increased by 4.9 N).

Fig. 9 Relationship between crack extension and r_p under repeated loading (maximum load was fixed to 19.6 N).

Table 2 r_p^f/r_p^0 of specimens suffered repeated loading.

Specimen	Loading conditions	r_p^0	r_p^f	r_p^f/r_p^0
A1	Repetition of incremental loading	1.48	1.73	1.17
A2		1.57	1.84	1.17
B1	Repetition of constant loading	1.51	1.73	1.14
B2		1.48	1.70	1.15
B3		1.50	1.70	1.13

き、各荷重条件における各試料の r_p^f/r_p^0 の値を Table 2 に示す。 r_p^f/r_p^0 は、同一荷重条件においてはほぼ等しい値となり、荷重条件が同じであれば破断直前までの増加する r_p の割合は一定となることを示している。

Ⅳ. 考 察

圧痕押し込みにより r_p が変化する理由として考えられるのは、き裂の開口時の反電場の発生、き裂の発生による打撃時の動的応力分布の変化、圧痕周辺部の PZT 結晶粒の変形や破壊である。

き裂の影響の概念図を Fig. 10 に示す。 PZT が一方向に分極した状態で、例えば一様な引張応力が発生した場合を考えてみる。 この場合、各結晶粒は引張方向に分極が生じた電気双極子と見なせ、この電気双極子によって一様な電場が試験片内に発生する (Fig. 10(a))。 しかし、き裂が存在すると引張応力によりき裂は開口し、き裂が開口した空間には、周

Fig. 10 Schematic representation of influence of crack on piezoelectric field in the PZT specimen.

囲の電場に応じて反電場が発生する (Fig. 10(b)). また、き裂の開口や、衝撃による応力波のき裂面で反射により、き裂周辺の動的応力場がき裂のない場合とは異なる。そのため、き裂周辺部の結晶粒の分極も応力に応じて変化する (Fig. 10(c)). これらの影響により、き裂が発生すると試験片内の電場に変化が生じて、試験片両端の電位差に影響を与えると考えられる。

圧痕数の増大に伴う r_p の増加挙動と比較して、き裂長さの増大に伴う r_p の増加挙動はより顕著に認められた。この違いは、圧痕の数もしくは、き裂形状が影響していると考えられる。すなわち、複数の圧痕の導入による試験は、圧痕もき裂も複数存在するが、繰返し負荷試験においては、圧痕は一つであり、一つのき裂が安定成長している。そして、繰返し負荷試験では圧痕数は変化しないことから、き裂の成長が、 r_p の増加に影響を与えていると考えられる。この原因について、き裂開口による反電場の発生についてのみ考えてみる。Fig. 4 に示す本実験で得られた圧電波形の二つのピークはおおまかにいって、試験片全体の変位に対応している。なぜならば、測定された電位差は PZT 試験片全体のみかけの分極に相当するからである。すなわち、第一ピークでは試験片全体はみかけ上圧縮変形しており、第二ピークではみかけ上引張変形が生じている (ピークが 2 つのみで圧電波

形が減衰しているが、試験片の振動は両端に接続した導電テープにより大きく減衰したと思われる。) このときの試験片内部での実際の応力分布は衝撃荷重を受けるために非常に複雑であるが、仮に、第一ピーク時に均一に圧縮応力を受け、第二ピーク時に均一に引張応力を受けたとする。この時、第一ピーク時 (圧縮応力時) はき裂の開口は生じないので、き裂の開口による試験片内部の電場の変化はない。一方、第二ピーク時 (引張応力時) はき裂の開口により反電場が生じるため、試験片両端の電位差が減少する。この結果、第一ピークに変化はなく、第二ピークの大きさが減少するため、 r_p が増加することになる。

このモデルにより考察を進めると、き裂開口部分の体積の増加に伴い、き裂開口により発生する反電場も大きくなると考えられ、短いき裂が複数あるよりも、それらのき裂長さの総和に相当する長さのき裂が一つあるほうが開口量が大きく、反電場も大きくなることになる。0.3 mm 間隔で圧痕を導入してき裂が合体した場合は、他の間隔で圧痕を導入して複数の独立したき裂が発生した場合よりも、圧痕数に対する r_p の増加挙動が顕著になったが、これは、き裂の合体によるき裂の開口部分の体積の増加が反電場領域の増加を引き起こし、 r_p に影響していると考えられる。一方、 y 方向に 0.3 mm 間隔で圧痕を導入した場合は、他の間隔と比較して、圧痕数と r_p の関係に特に差異は認められなかった。これは、 y 方向に打撃を与えているので y 方向のき裂はほとんど開口しなかったためであり、き裂の長さが同じであっても、き裂の方向により r_p が変化することを示している。

このようにき裂の開口が r_p に影響を与えたとするモデルにより実験結果を定性的に説明することは可能であるが、本実験では衝撃荷重が作用しているため、上記のモデルの仮定とは異なり、試験片内部は一樣な応力ではないので、き裂発生、進展による r_p の変化を正確に予測するためには、衝撃荷重下でのき裂の開口や衝撃による応力波のき裂面で反射による応力場の変化を計算する必要がある。また、圧痕の発生が r_p に及ぼす影響についても検討する必要があるが、これらは今後の課題である。

繰返し負荷試験時において荷重条件が異なるときき裂進展量と r_p との間に違いが生じたことは、 r_p の増加挙動がき裂進展量以外のパラメータの影響を受けていることを示しており、試験片内部のき裂形状の差がパラメータとして考えられる。

しかしながら、同一荷重条件においてき裂進展量と r_p の増加挙動との間に一定の関係が認められたこと、 r_p^1/r_p^0 がほぼ等しい値であったことは、圧電波形をモニタリングすることにより圧電材料の破壊が予知できる可能性を示している。

V. 結 論

ビッカース圧子の押し込みにより複数のき裂を発生させた場合、繰返し負荷試験によりき裂を進展させた場合につい

て、PZT 試験片に軽微な打撃を加えて生じさせた圧電波形を測定した。

(1) ビッカース圧痕数の増大とともに、打撃試験により得られた圧電波形の第一ピークと第二ピークの大きさの比 r_p が増加した。また、圧痕間隔が 0.3 mm の場合にき裂の合体が認められた。打撃および分極方向と垂直の方向にき裂が合体した場合、圧痕数の増大に伴う r_p の増加挙動はさらに顕著となったが、打撃および分極方向と平行の方向にき裂が合体した場合、圧痕数の増大に伴う r_p の増加挙動はき裂が合体しない場合と差異はなかった。

(2) き裂の進展に伴って r_p は増加した。また、同一荷重条件では、き裂進展量に対する r_p の増加挙動は類似しており、き裂発生前と破断直前における r_p の比はほぼ一定となった。

(3) r_p が増加する原因の一つとして、き裂開口による反電場の発生が考えられた。また、き裂発生・進展による r_p の変化はき裂長さや方向に依存しており、このような圧電波形をモニタリングすることにより圧電材料の破壊が予知でき

る可能性を示した。

文 献

- (1) Y. Ohara, M. Shiwa, H. Yanagida and T. Kishi: J. Ceram. Soc. Jpn., **103**(1995), 664-669.
- (2) M. Shiwa, O. Chen, S. Carpenter and T. Kishi: J. Jpn. Inst. Met., **59**(1995), 627-633.
- (3) K. Kageyama, M. Enoki and T. Kishi: *Nondestructive Characterization of Materials VI*, Plenum Press, New York, (1994), 263-270.
- (4) M. Enoki and T. Kishi: ASTM Special Technical Publication n 1077, ASTM, Philadelphia, (1991), 47-66.
- (5) M. Sugita, H. Yanagida and N. Muto: Smart Materials and Structure, **1A**(1995), A52-A57.
- (6) H. Yanagida and H. Matsubara: J. Japan Soc. Mech. Eng., **102**(1999), 68-71.
- (7) B. Koepke and K. McHenry: Ferroelectrics, **28**(1980), 343-346.
- (8) B. Koepke, K. McHenry, M. Seifried and R. Stokes: Ultrasonics Symposium Proc., IEEE, New York, (1986), 675-683.
- (9) J. Calderon-Moreno, F. Guiu, M. Meredith and M. Reece, Mat. Sci. Eng., **A234-236**(1997), 1062-1066.