研 究

PZT 圧電セラミックスの高パルス電圧印加時における疲労特性

北川賀津一^{☆1}, 豊田 文紫^{☆1}, 山名 一男^{☆1}, 北川 和夫^{☆2}, 山本 孝^{☆3}^{☆1} 石川県工業試験場, 〒920-0223 金沢市戸水町口1番地.^{☆2} 金沢大学工学部, 〒920-0942 金沢市小立野2-40-20.^{☆3} 防衛大学校通信工学科, 〒239-0811 横須賀市走水1-10-20.

Degradation in PZT Ceramics after Applying a Large Pulsed Input Power

Kaduichi Kitagawa^{☆1}, Takeshi Toyoda^{☆1}, Kazuo Yamana^{☆1}, Kazuo Kitagawa^{☆2} and Takashi Yamamoto^{☆3}^{☆1} Industrial Research Institute of Ishikawa, Ro-1 Tomizu-machi, Kanazawa 920-0223.^{☆2} Faculty of Engineering, Kanazawa University, 2-40-20 Kodatuno, Kanazawa 920-0942.^{☆3} Department of Communicative Engineering, National Defense Academy, 1-10-20, Hashirimizu, Yokosuka 239-0811.

Received March 9, 2001

SYNOPSIS

Heat generation, piezoelectric property and fracture of PZT ceramics were investigated applying a large pulsed input power. Heat generation in low- Q_m material was larger than in high- Q_m one. Nonlinear phenomena were revealed in low- Q_m material at high voltage power. The values of k_{31} were roughly constant, Q_m values decreased with increasing driving time. Applying a pulsed input power, however a fracture was suppressed in low- Q_m material.

KEY WORDS

mechanical quality factor, heat generation, piezoelectric property, fracture, nonlinear phenomena

1 緒 言

近年、圧電トランス、圧電アクチュエータや超音波モータなどハイパワー用 PZT 圧電セラミックス (主成分はチタン酸ジルコン酸鉛, $\text{Pb}(\text{Ti}, \text{Zr})\text{O}_3$) の需要が増加するとともに、多くの研究が進められている¹⁻⁴⁾。圧電トランスや超音波モータでは、電気機械結合係数 (k_{31} , k_{33}) と機械的品質係数 (Q_m) がともに高く安定していることが求められる。圧電アクチュエータでは、変位が大きく、再現性に優れ、安定していることが必要である。

PZT の Zr と Ti は 4 価の価数を示す。PZT に 2,3 価アクセプターイオンを添加すると、材質が硬くなり Q_m が大きくなる。著者等は、PZT に各種金属酸化物を微量添加し、その圧電特性を調べた⁵⁾。0.005~0.01 mol% のアクセプターを添加した場合に、 k_{31} と Q_m が大きくなり、同時に格子定数の比を示す c/a 比が大きく、等価回路定数の抵抗が大きくなり、粒成長が抑えられることを報告した。

ハイパワー応用のために電気的特性の向上のみならず PZT セラミックスの機械的強度や、繰り返し疲労試験に対する耐久性を上げることなどの研究が進められている⁶⁾。しかし高パルス電圧印加時における疲労特性は十分に解明されているとは言い難い。圧電トランス等では高励振駆動を行うので、圧電特性 (k_{31} , Q_m 等) の低下が少ないことと、機械的強度に優

れていることが必要となる。本研究では、PZT に高パルス電圧を印加して圧電共振振動する高励振駆動を行い、その疲労特性を試料の発熱現象、圧電特性 (k_{31} , Q_m)、及び試料の破断の観点から調べた。

2 試料及び実験方法

PZT セラミックスには、機械的品質係数 $Q_m=1253$ の high- Q_m 材と、 $Q_m=75$ の low- Q_m 材の林化学工業(株)製の 2 種類を使用した。PZT 粉末は PVA5% を重量比として添加し成形機で 123.8 MPa の圧力を印加して $\phi 55$ mm の円板を作製した。この成形体はマグネシアと 99.5% アルミナの二重坩堝中で鉛雰囲気電気炉中で 500°C で脱脂、1260°C で焼成、1040°C で焼鈍を行った。PZT 焼結体は研削、切断を行い所定の寸法に加工した。焼結体に銀ペーストを 750°C で 10 分間焼き付け、120°C のシリコンオイル中で 3 kV/mm で 30 分間直流電界を印加して分極した。試料は 150°C で 4 時間短絡した状態でエージングし、圧電特性をインピーダンスアナライザー (HP-4192A) で測定した。high- Q_m 材と low- Q_m 材の物性を Table 1 に示す。

high- Q_m 材と low- Q_m 材の疲労試験は Fig.1 に示す部品構成からなる装置を用いて行った⁷⁾。パルス発生器は 50 kHz (260 μs)、13 波長を 1 パルスとしたパルス集合波を発生させ、このパルス集合波を可変抵抗器で電圧を 60, 120, 150, 270 V に調節した。

Table 1 Piezoelectric properties of high- Q_m and low- Q_m materials.

Marks	Curie Temperature ($^{\circ}\text{C}$)	Grain Size (μm)	Electromechanical coupling factor (k_{31})	Frequency constant (Hzm)	Mechanical quality factor	Dielectric loss
low- Q_m	330	4.7	0.31	1400	73	0.018
high- Q_m	300	4.2	0.28	1610	1250	0.004

パルス回数は1000, 2000, 4000回/分の条件で変化させた。PZTは試料長手寸法を50kHzで共振するように機械加工し(Fig.2), PZTにパルス電圧が印加されると, 試料は長手方向に電圧印加部分を節として共振振動を行った。試料の中心部付近に熱電対を接着剤で貼り付け試料温度上昇を測定した。所定の時間パルス電圧を印加した後の試料は, 前述の方法で圧電特性(k_{31} , Q_m)を測定した。試料の4点曲げ強度は, ファインセラミックスの曲げ強度試験方法(JIS R1601)に準じて5本の試験片を用いて材料試験機(島津製作所製 AGS-500D)を用いて測定した。疲労試験の途中で破断した試料はその破断面を走査型電子顕微鏡(日立製作所製 H-8010)で観察した。

3 実験結果および考察

3.1 パルス電圧印加時に発生する応力と変位

high- Q_m 材と low- Q_m 材にパルス電圧を印加すると, 中央部

Fig.1 Experimental setup for applying a pulsed input power of PZT ceramics.

high- Q_m material: 32mm $\times$ 8mm $\times$ 2.7mm
low- Q_m material: 27mm $\times$ 6.8mm $\times$ 2.3mm

Fig.2 Shapes and sizes of high- Q_m (a) and low- Q_m (b) materials.

分を節として試料長手方向に共振振動を開始する。節である中央部分は最も応力が大きくなり変位は0となる。一方腹の部分に当たる試料両端では変位は最も大きくなるが, 発生応力は最も小さくなる。圧電方程式のd型式と運動方程式から変位の一般解が導かれる。境界条件を代入すると次式(1), (2)のように応力と変位が発生する。

$$T_1 = \frac{d_{31} V_0}{s_{11}^E b} \left(\cos(\omega x/v) \right) / \left(\cos(\omega l/2v) - 1 \right) \cdot \sin \omega t \quad (1)$$

$$\xi = \frac{d_{31} V_0 v}{\omega b} \left(\cos(\omega x/v) \right) / \left(\cos(\omega l/2v) \right) \cdot \sin \omega t \quad (2)$$

(T_1 : 応力, ξ : 変位, d_{31} : 圧電定数, V_0 : 電圧ピーク値, s_{11}^E : 弾性定数, b : 試料厚さ, l : 試料長さ, v : 音速 ($= \sqrt{1/s_{11}^E \cdot \rho}$), ω : 角速度, x : x 方向の位置, t : 時間)

式(1), (2)に材料定数を代入して計算した最大変位と最大発生応力を Fig.3 に示す。変位と発生応力は印加電圧に比例して増加した。変位は約 0.3~2.8 μm , 応力は 20~220 N/mm^2 の範囲を示し印加電圧に依存して変化した。試料の音波伝搬速度などの材料定数の違いから, high- Q_m 材の方が low- Q_m 材よりも変位及び発生応力が 2~3 倍大きくなった。

3.2 パルス電圧印加時の発熱現象

圧電トランスや圧電アクチュエータなど電子機器が高周波で使用されると, 試料が小型・薄型化して発熱が大きくなる。発熱が大きくなると電子部品の動作や疲労に問題を起こすことが懸念され研究が進められている⁹⁾。今回は最も応力がかかる試料中央節部分(Fig.2)の表面温度を測定した。試料の発熱状態にはある程度温度分布を持つこと, また試料内部は更に温度が高いことが予想されるが, 最も試料破断の発生しやすい箇所の温度をもって代表値とした。

Fig.4 は high- Q_m 材と low- Q_m 材に 4000 パルスで電圧 60, 120, 150, 190 V 印加時の試料温度上昇((測定時の試料温度)-(測定前の試料温度))を示す。240 分後には high- Q_m 材は 5 $^{\circ}\text{C}$, low- Q_m 材は 18 $^{\circ}\text{C}$ の最大温度上昇が確認された。low- Q_m 材の方が変位応力は大きい⁹⁾が, 試料発熱はこれらの条件には依存しない。試料発熱は Q_m の大小によって大きく異なった。共振振動した時の振動エネルギーの損失分が熱エネルギーに変換されたとすると⁹⁾, 弾性損失の大きい low- Q_m 材の方が発熱による温度上昇が大きくなる。60 V の印加電圧では, 温度上昇は他の印加電圧と比較して 20~30% 低い。しかし 120, 150, 190 V 間の温度上昇の差異は殆ど無い。これは振動による試料の伸びが飽和に達したためである。

(b)

(a)

Fig. 3 Relation of calculated maximum force (a) and displacement (b) to input voltage.

(b)low- Q_m , 4000 pulse (a)high- Q_m , 4000 pulseFig. 4 Heat generation of high- Q_m (a) and low- Q_m (b) materials at various pulsed input voltage.

Fig.5に印加電圧を150Vに固定して, パルス回数を1000, 2000, 4000回/分の条件で変えた時の600分までの試料温度上昇を示す. 600分ではlow- Q_m 材は27°C, high- Q_m 材は12°Cの温度上昇を示した. パルス回数に比例して, 温度上昇は大きくなる傾向を示した.

Fig.4とFig.5は10分毎の測定値であるが, 印加電圧を150Vに固定し, パルス回数4000回/分印加し, 10秒間隔で試料温度を測定した結果をFig.6に示す. 試料温度は飽和した後一定となるのではなく, ある一定時間を過ぎると急激に約5°C程

(b)low- Q_m , 150V (a)high- Q_m , 150VFig. 5 Heat generation of high- Q_m (a) and low- Q_m (b) materials at various pulse number.

Fig. 6 Nonlinear phenomenon of heat generation by ten seconds interval measurement.

Fig.7 Piezoelectric properties of high- Q_m and low- Q_m materials to driving time.

15 μ m

Fig.8 Fracture surface of high- Q_m material.

低下した。一定時間温度が保持された後に再び試料温度が約 5°C 上昇する現象が観測された。high- Q_m 材でもこの現象は観測されたが、温度上昇が大きい low- Q_m 材で顕著であった。パルス電圧を印加して試料をハイパワーで共振振動させ、温度上昇が大きくなると、共振周波数が 50kHz よりも少し低周波数側にずれるので、試料温度は若干低下する。試料の温度が低下して安定な状態になると、再び共振周波数が 50kHz に回復して、試料温度が上昇する。この変化が繰り返されると推定すると、発熱の非線形現象を説明できる¹⁰⁾。

3.3 パルス電圧印加時の圧電特性変化

Fig.7に、 270V 、 4000 パルスの電圧を印加した後の圧電特性 (k_{31} , Q_m) の変化を示す。山本等が報告するように²⁾、high- Q_m 材と low- Q_m 材の k_{31} 値は、時間のパルス電圧を印加しても低下しない。一方、 Q_m 値は low- Q_m 材の場合 17% 、high- Q_m 材の場合 37% の低下が観測された。 Q_m 値の低下は、PZTへの添加によって生じた欠陥双極子による自発分極のピン止めが不安定化されたため¹¹⁾、この要因としては発熱による温度上昇と、繰り返し電圧印加による疲労が考えられる。

3.4 パルス電圧印加時の試料破断

前述のパルス電圧を印加している時に、破断した試料について調べた。試料の破断は high- Q_m 材で発生し、low- Q_m 材では破断しなかった。high- Q_m 材と low- Q_m 材の4点曲げ強度の測定と、破断面観察を行った。4点曲げ強度は、high- Q_m 材が 100.6N/mm^2 で、low- Q_m 材が 77.8N/mm^2 で機械的強度は high- Q_m 材の方が大きくなった。3.1章で述べたように、high- Q_m 材の

方が low- Q_m 材よりも発生応力が $2\sim3$ 倍大きい、その値は4点曲げ強度の約 $1/4$ である。high- Q_m 材は繰り返し応力による疲労によって破壊した可能性がある。

Fig.8は high- Q_m 材の破断面である。電子顕微鏡から粒界破壊が主に確認された。パルス電圧を印加している間に、粒界を通じてクラックが進行し、ある臨界長に達すると瞬時に破断したと考える。

low- Q_m 材は high- Q_m 材よりも材料的には柔らかい¹³⁾。low- Q_m 材は、パルス電圧によって繰り返し応力が印加された際に、応力が緩和するメカニズムが働くので、クラックが進行しづらく破壊がまぬがれる。試料の発熱で確認された非線形現象で、試料温度が約 5°C の振幅で振動することで試料の伸びが一気に破壊にまで至らないことも、前述の応力緩和メカニズムの一因である。

4 ま と め

PZT 圧電セラミックスをパルス電圧を印加して、圧電共振振動を行い、発熱、圧電特性、及び試料破断について調べた結果、以下の事がわかった。

- (1) 発熱は low- Q_m 材で最大 27°C 、high- Q_m 材は 12°C であった。高パルスであるほど発熱が大きくなった。
- (2) 120V 以上の電圧では発熱は飽和して一定となった。これは印加電圧を大きくしても共振振動による試料の伸びが飽和に達したためと思われる。

- (3) low- Q_m 材に150Vの高い電圧を印加すると, 共振周波数が低周波数側にずれ温度が下がり, しばらくすると共振周波数が戻り温度が上昇する, 振動(非線形現象)が観測された.
- (4) パルス電圧印加後, 時間経過後の試料で k_{31} 値は低下しない. 一方 Q_m 値はlow- Q_m 材の場合17%, high- Q_m 材の場合37%の低下した.
- (5) low- Q_m 材はhigh- Q_m 材と比較して, 繰り返しパルス電圧を印加しても破壊しにくい.

謝 辞

本研究を遂行するに当たり, 貴重なご支援を頂いたニッコー株式会社に謝意を表します.

文 献

- 1) K.Uchino: "Applied Aspects of Piezoelectricity", Key Engineering Materials, **66&67**(1992)311-337.
- 2) T.Yamamoto and F.Mizuno: "Degradation of Piezoelectric Properties at Resonant Operational Mode by a Large Input Power", Jpn. J. Appl. Phys., **34**(1995)2627-2631.
- 3) 酒井武信, 河本洋: "圧電材料の繰り返し疲労試験方法と特性変化", 日本セラミックス協会学術論文誌, **105**(1997) 1032-1036.
- 4) K.Nagata, J.Thongrueng and K.Kato: "Evaluation of the Reliability of Piezoelectric Ceramic Transformers", Jpn. J. Appl. Phys., **36**(1997)6103-6105.
- 5) 北川賀津一, 山名一男, 中村静夫, 北川和夫, 山本孝: "微量アクセプターを添加したPZT圧電セラミックスの圧電特性と構造特性", 粉体および粉末冶金, **47**(2000)935-940.
- 6) 高津學, 高橋順一, 西川直宏, 大矢寛二, 服部晃好: "圧電セラミックスの繰り返し疲労特性について", 日本セラミックス協会学術論文誌, **98**(1990)1343-1348.
- 7) H.J.Hwang, K.Tajima, M.Sando, M.Toriyama and K.Niihara: "Microstructure and Mechanical Properties of Lead Zirconate Titanate (PZT) Nanocomposites with Platinum Particles", J. Ceram. Soc. Jpn., **108**(2000)339-344.
- 8) S.Takahashi, S.Yoshikawa, K.Uchino and J.W.C. de Vries: "Heat Generation in Multilayer Piezoelectric Actuators", J. Am. Ceram. Soc., **79**(1996)3193-3198.
- 9) 生島弘志: "大振幅下における圧電セラミックの力学的挙動(圧電セラミクトランスの場合)"材料, **30**(1981)1038-1043.
- 10) 石井啓介, 秋元則仁, 田代新二郎, 五十嵐秀二: "ハイパワー励振下の圧電セラミックスにおける非線形現象の解析", 日本セラミックス協会学術論文誌, **106**(1998)555-558.
- 11) S.Takahashi: "Internal Bias Field Effects in Lead Zirconate-Titanate Ceramics Doped with Multiple Impurities", Jpn. J. Appl. Phys., **20**(1981)95-101.
- 12) 清原正勝, 加藤憲一, 永田邦裕: "圧電セラミックスの圧電特性及び電界誘起歪みに及ぼす添加物の影響", 日本セラミックス協会学術論文誌, **104**(1996)208-214.
- 13) 岡崎清: "第4版セラミックス誘電体工学", 学献社, (1992) 333-337.