

令和 2 年 5 月 26 日現在

機関番号：26402

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06060

研究課題名(和文)連続傾斜機能圧電材料作製への電気泳動法の応用と材料強度特性

研究課題名(英文)Application of electrophoretic method to forming of functionally graded piezoelectric materials and its strength characteristics

研究代表者

楠川 量啓 (Kusukawa, Kazuhiro)

高知工科大学・システム工学群・教授

研究者番号：60195435

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：電気泳動堆積法を用いて、傾斜機能圧電セラミックスを作製し、その強度特性を明らかにした。圧電特性の異なる2種類のニッケル酸ニオブ酸鉛-チタン酸ジルコン酸鉛(PNN-PZT)仮焼粉を、それぞれエタノール溶媒に混合した懸濁液を準備し、これによる電気泳動堆積の最適なプロセス条件を見出した。次に、2種類の懸濁液の割合を連続的に変化させながら堆積を行うことで、傾斜機能圧電セラミックスを成形した。この成形材をさらに加圧した後に焼結することで、傾斜機能性圧電セラミックスの強度を向上させることができた。この焼結材は緻密な微視構造を有しており、3点曲げ強度はEPDのみによる成形材の3倍程度高いことが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

屈曲変位を出力する圧電アクチュエータの代表的なものはバイモルフ型と呼ばれる金属製シム板と圧電セラミックスを接合した構造を有する。このタイプのアクチュエータでは異種材料を接合しているため、長期使用に対する強度信頼性が低い。これに対し単一材料内で圧電特性を傾斜させたセラミックスを用いるモノモルフ型ではこの欠点を除くことができる。本研究では電気泳動堆積法によりこの傾斜機能圧電セラミックスを作製した時の強度特性を明らかにしたことにより、この成形法によるモノモルフ型アクチュエータの実用化に対し重要な知見が得られた。

研究成果の概要(英文)：Mechanical properties of continuous functionally graded piezoelectric ceramics formed by electrophoretic deposition (EPD) method were clarified. As the EPD suspensions, two kinds of lead niobate nickelate-lead zirconate titanate (PNN-PZT) calcined powders were mixed with ethanol solvent respectively. First, we found the optimum process conditions for EPD in this system. Functionally graded piezoelectric ceramics were formed by depositing ceramics while changing the mixing ratio of the suspension continuously. It was found that the functionally graded piezoelectric ceramics with high strength can be obtained by compressing the EPD formed material before sintering. The sintered ceramics had a dense microstructure, and its three-point bending strength was about three times higher than that of the molded material made by EPD only.

研究分野：材料強度学

キーワード：傾斜機能圧電材料 電気泳動堆積法 曲げ強度

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

圧電セラミックスを用いたアクチュエータは積層型とバイモルフ型に大別できる。後者のアクチュエータは金属製のシム板の両面に圧電セラミックスを接着した構造を有し、電界を印可した時生じる厚み方向伸縮の横効果の差により屈曲変形を生じさせる。このため、比較的大きな変位を出力できる特徴があるが、その構造に起因して、長期稼働中にセラミックス-金属接合部の剥離やセラミックス自体のき裂発生などにより使用が困難になるといった問題点が指摘されている。

これに対し圧電材料に傾斜機能を持たせ、圧電逆効果特性の傾斜を利用して屈曲変位を出力できるモノモルフ型アクチュエータに関する研究が進められている。この圧電材料の傾斜機能化の有力な手法の一つに電気泳動法による成形がある。この成形法では、帯電したセラミックス粒子を含む懸濁液中に二枚の電極を浸し、これに電界を与えるとセラミックス粒子が電極基板上に堆積する原理を利用して、特性の異なるセラミックス粒子を順次、泳動堆積させることで傾斜機能圧電材料として成形させるものである。

研究開始当初では、この電気泳動堆積法により圧電セラミックスの傾斜機能化が可能であることは明らかであったものの、実用化に不可欠な強度特性を含めた種々の特性は十分明らかにされていない。

2. 研究の目的

電気泳動堆積法を用いて、特性の異なる複数の種類の圧電セラミックスを段階的に堆積させていくことで傾斜機能化を行う方法はこれまでも研究が行われてきた。本研究ではリラクサー型強誘電体である、二種類のニッケル酸ニオブ酸鉛-チタン酸ジルコン酸鉛 (PNN-PZT) を用いて、電気泳動法によるセラミックス紛の堆積、成形により圧電特性を連続的に傾斜させるプロセスの最適な条件を見出すことを第一の目的とした。さらにその手法で作製したモノモルフ型アクチュエータの駆動特性を調査する。

一方、電気泳動堆積法により成形した圧電セラミックス焼結体の強度は通常の加圧成形による材料と比べ、より多くの空隙を含んでいるため強度が低いという問題点があった。本研究ではこの点を改善する方法を検討し、それにより作製した傾斜機能材料の強度特性を明らかにすることも主要な目的である。

3. 研究の方法

(1) 圧電セラミックス材料 実験には 2 種類のリラクサー強誘電体セラミックス、 $0.55\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-}0.45\text{Pb}(\text{Zr}_{0.3}\text{Ti}_{0.7})\text{O}_3$ (以下 A 材) および $0.15\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-}0.85\text{Pb}(\text{Zr}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ (以下 B 材) を用いた。原材料として PbO 、 NiO 、 Nb_2O_5 、 ZrO_2 、 TiO_2 を用いた。化学量論的組成となるよう計量後、遊星ボールミルを用いてエタノール中で粉砕、乾燥後 900℃、4 時間の条件により仮焼きし、材料としてのセラミックス紛を準備した。

(2) 電気泳動堆積法 図 1 に示すシステムを構築し、電気泳動法による圧電セラミックス紛の堆積・成形を行った。エタノール 200 ml に A 材 10 g (A 材または B 材の単層材を成形する場合は 20 g) を混入した懸濁液を入れた堆積槽に銅製の電極を配置し、これらに 300 V の電圧をかけた。その間、同じ重量割合で作製した B 材の懸濁液を入れた原材料槽から、7.5 ml/min の流量で堆積槽に流入させると同時に、同量の流量で堆積槽から廃液槽に流出させることで堆積槽内の A 材、B 材の割合を連続的に変化させて堆積・成形を行った。これにより 30 分の堆積時間で最終的に A 材 : B 材 = 33 : 67 となる。

(3) 加圧成形および焼結 電気泳動法により堆積させた材料をさらに加圧することで機械的強度の向上を試みた。電気泳動法により堆積後、エタノールを乾燥させ、90 MPa で 60 秒保持の条件で加圧した。焼結は 1270℃ で 4~10 時間の保持する条件で行った。

(4) 材料の特性評価 焼結した材料から $20 \times 4 \times 1$ mm の寸法の曲げ試験片を作製した。支点間距離 12 mm において 0.5 mm/s の変位速度で 3 点曲げ試験を行い各材料の曲げ強度を求めた。また、150℃ のシリコンオイル中で 3 kV/mm の電界を 30 分印可することで各圧電セラミックス焼結材の分極処理を施す。この分極処理後の各材料の静電容量および誘電損失を LCR メータで、圧電定数 d_{33} を d_{33} メータにより測定した。

(5) 傾斜機能圧電材料の圧電逆効果 EPD により作製した傾斜機能圧電セラミックス分極材を用いて $10 \times 7 \times 1.4$ mm の寸法の片持ちはり型アクチュエータを作製し、振幅 ± 200 V、50~1800 Hz の交流電圧により駆動させる。その時のアクチュエータ先端変

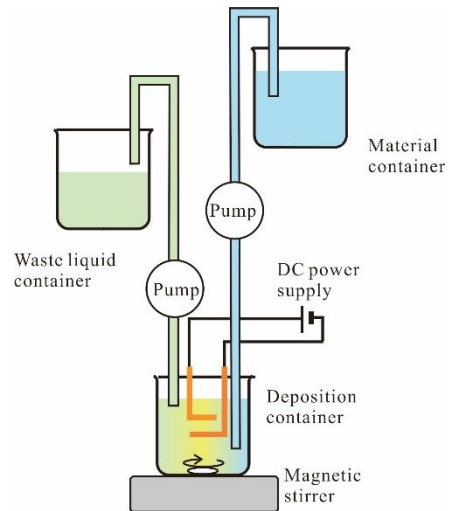


図 1 電気泳動堆積装置の概略

位をレーザードップラー振動計により測定した。

4. 研究成果

(1) 電気泳動堆積の最適条件

粒子の移動度および堆積性を高めるために溶媒中に適度な酸や官能基を側鎖に持つ高分子電界液を添加することが行われる。本研究ではエタノールを溶媒としてこれにヨウ素を添加する系によりサスペンションを構成した。B材 2.5 g をエタノール 50 ml に混合したサスペンションに、0.1×8×15 mm のニッケル基板を浸漬し、電圧 200 V を 2 分間印可した時の EPD 堆積量とヨウ素エタノール溶液（エタノール 16 mg にヨウ素 2 g を溶解）の関係を図 2 に示す。堆積量はあるヨウ素添加量で最大値となり、最適な EPD サスペンション条件を見出すことができた。

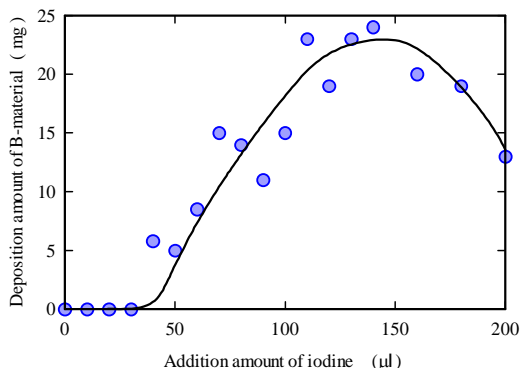


図 2 堆積量に及ぼすヨウ素添加の影響

(2) 連続した傾斜組成とする EPD プロセスのための装置検討

サスペンションを変えつつ、電気泳動による堆積を継続させるための装置として、前節において図 1 に示したシステムを作製した。仮焼き後にさらに遊星ボールミルを用いて微細化したセラミックス粉を用いること、また、堆積槽とサスペンション容器を上下に配置することで均一なサスペンションを堆積槽に供給することができ、組成を連続的に傾斜させた材料を得ることができた。

(3) 強度評価

EPD により成形した材料を焼結した試験片の曲げ強度は、通常の金型を用いた加圧成形材のそれに比べて A 材で 61%、B 材では 31% 程度の値となり、このままでは強度的に問題があることが分かった。これは EPD 法では材料内部の空孔が増加するためである。これに対し EPD 成形後、大気中で溶媒となるエタノールを乾燥させた後に一軸加圧 (UAP) を行う工程を加えることで、通常の加圧成形材の強度の約 80% の強度まで向上させることができた。

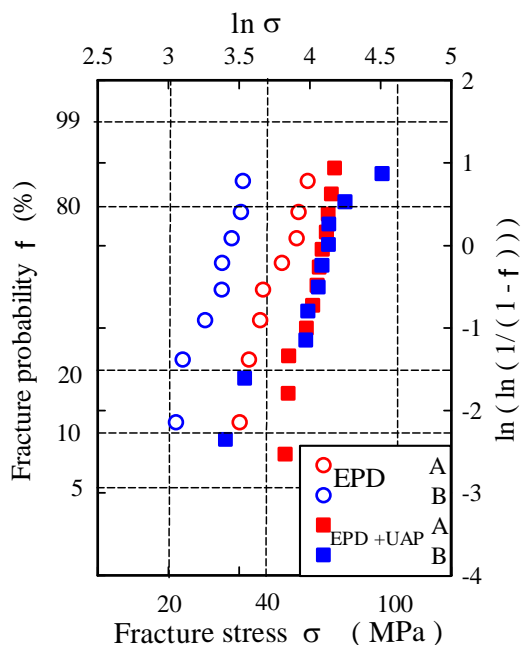


図 3 EPD 材の強度分布

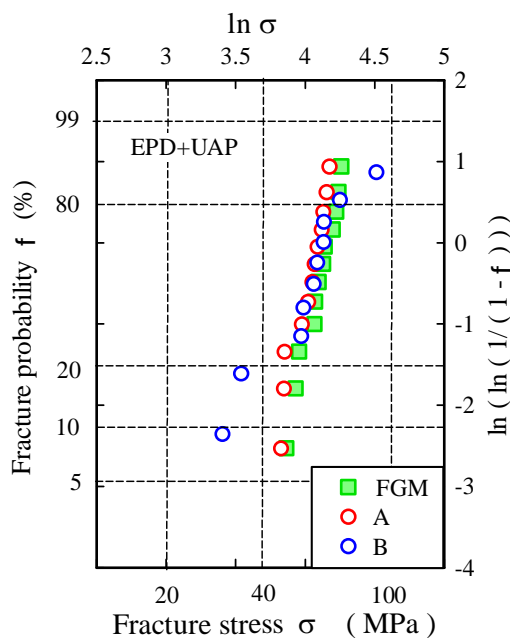


図 4 EPD 材の強度分布

EPD のみによる成形材と EPD+UAP 成形材の 3 点曲げ試験の結果をワイブルプロットとして図 3 に示す。EPD のみの場合、B 材の強度は A 材のそれに比べて著しく低くなるが、その後、加圧を行うことで両材料の強度が向上するとともに、材料間での強度レベルに差異が見られなくなった。

本研究で作製した傾斜機能圧電セラミックスの 3 点曲げ試験結果をワイブルプロットし、A および B 単層材と比較した結果を図 4 に示す。曲げ試験では A 材 100% の部分が最大引張り応力となるように負荷をかけたため、A 材単層の結果とほぼ同様な分布となった。また、傾斜機能化により強度が低下することはなかった。

(4) アクチュエータ特性

EPD + UAP により作製した傾斜機能材料を用いて加工した片持ちはり型アクチュエータに交流電圧を負荷し駆動させたときの変位振幅と交流周波数の関係を図5に示す。

EPD のみで作製した傾斜機能材による同型のアクチュエータの結果と比較すると、約5倍の変位が出力されることがわかった。すなわち、加圧工程を行うことで強度向上のみならず、より緻密な組織となり圧電特性も向上する効果が得られる。

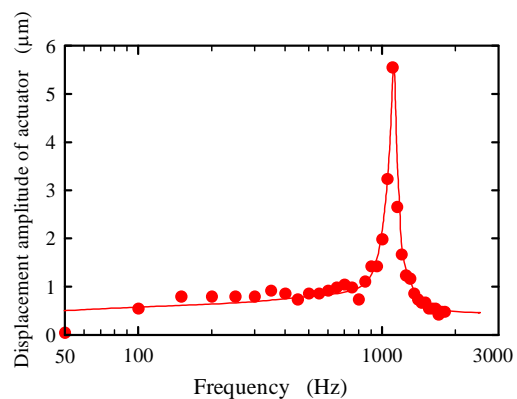


図5 傾斜機能材料を用いた片持ちはり型アクチュエータの駆動特性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 幡野利史, 坂東侑磨, 楠川量啓, 高坂達郎
2. 発表標題 電気泳動堆積法による傾斜機能圧電セラミックスの機械的性質
3. 学会等名 日本機械学会M&M2018材料力学カンファレンス
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 坂東侑磨, 幡野利史, 楠川量啓, 高坂達郎
2. 発表標題 電気泳動堆積法による傾斜機能圧電セラミックスの曲げ強度
3. 学会等名 日本材料学会四国支部第17回学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考