

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 13 日現在

機関番号：26402

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420028

研究課題名(和文)電気泳動堆積法による傾斜機能圧電セラミックスの成膜とその寿命評価

研究課題名(英文) Fabrication of functionally graded piezoelectric ceramics by using electrophoretic deposition and its life evaluation

研究代表者

楠川 量啓 (KUSUKAWA, Kazuhiro)

高知工科大学・工学部・教授

研究者番号：60195435

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、電気泳動堆積法を利用して傾斜機能圧電材料を作製するプロセスを確立した。そのプロセスにより2層チタン酸ジルコン酸鉛(PZT)圧電セラミックス材料を作製しその特性を評価した。PZT粒子の電気泳動堆積では、時間当たりの堆積量が懸濁液のpHに依存し、pHが5付近で最適となることを明らかにした。本方法により作製したPZT系セラミックスの破壊じん性値は堆積方向の値が積層面内のそれに比べ、50%程度の低い値となり、極めて強い異方性を示すことが分かった。

研究成果の概要(英文)：In this study, the fabrication process of a functionally graded piezoelectric material by using the electrophoretic deposition (EPD) was established. The bilayer lead zirconate titanate (PZT) piezoelectric ceramic material was fabricated by applying this process and its characteristics were evaluated. The results obtained are as follows. In EPD, amount of deposition per hour depend on the pH of suspension. It was clarified that the optimal pH is about 5 in deposition of PZT. Measuring fracture toughness of the PZT ceramics made by this process showed that the fracture toughness in the direction of deposition is about 50 % lower than that in the deposition surface, so there is strong anisotropy of strength in the material by using EPD.

研究分野：工学

キーワード：電気泳動堆積法 圧電セラミックス アクチュエータ 破壊じん性値

1. 研究開始当初の背景

チタン酸ジルコン酸鉛 (PZT) を典型とする圧電セラミックスを用いた圧電アクチュエータには大きく積層型とバイモルフ型がある。後者は圧電逆効果の横効果を利用して大きな屈曲変位を出力できるもので、従来の電磁力型のアクチュエータなどに比べて、小型化が可能で応答性が高いなどの利点を有する。しかしながら、圧電材料と弾性体であるシムとを接合した構造を有しており、長期使用においては接合部で応力集中のため、はく離や破壊などが発生することがあり信頼性の低い点が指摘されてきた。

この欠点を克服するため圧電体自体が屈曲変位する一体型のモノモルフアクチュエータの開発が行われている。モノモルフアクチュエータを実現するため圧電材料の傾斜機能化が必要となる。液体中で帯電した微粒子を外部電界により電極表面に堆積させる電気泳動堆積法は、特性の異なる粒子を順次堆積させることができるため傾斜機能材料作製プロセスに有効である。しかしながらこのプロセスにより作製した圧電体の諸特性についてはまだよく知られていない。

2. 研究の目的

本研究の目的は、電気泳動堆積法 (EPD) による PZT 系圧電セラミックスの作製プロセスを確立する、このプロセスを応用した圧電体の圧電特性傾斜機能化を実現する、さらにその材料の強度特性を明らかにすることである。

3. 研究の方法

市販の PZT 仮焼粉を用いて図 1 に示すシステムにより電気泳動堆積のための条件を探索した。微粒子堆積のための重要な因子は微粒子が分散する懸濁液の分散安定性を支配するゼータ電位であるが、これは溶液の pH 値と密接に関係する。溶液の pH 値を 0.1 %硝酸を用いて制御し、PZT 堆積量が最大となる条件を求めた。

市販の PZT の圧電特性とは異なるそれを有する材料としてリラクサー型 PNN-PZT 圧電セラミックス(組成: $0.55\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - 0.45\text{Pb}(\text{Zr}_{0.3}\text{Ti}_{0.7})\text{O}_3$) を作製し、前者と後

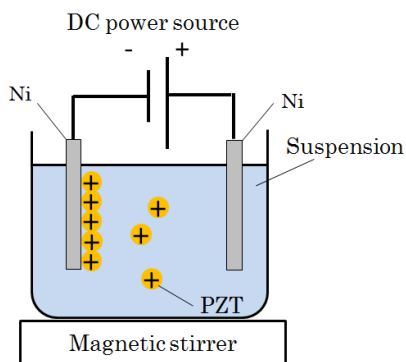


図 1 電気泳動堆積システムの模式図

者の 2 層圧電セラミックスを EPD により作製する。この 2 層材の機械的性質を評価した。

PZT および PNN-PZT の 2 層材料から片持ちはり型のモノモルフアクチュエータを作製し、図 2 に示すようなシステムにより交流電圧を負荷した時のアクチュエータ変形特性を評価した。

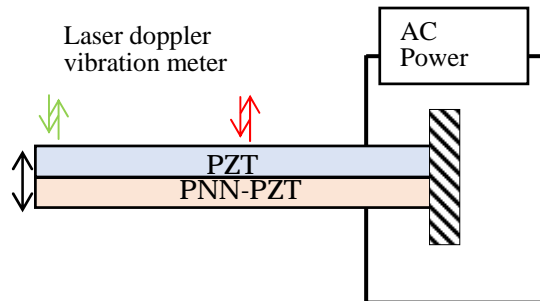


図 2 片持ちはりアクチュエータの変形特性評価システム

4. 研究成果

(1) PZT の電気泳動堆積特性

PZT 粉を分散させる溶媒として精製水およびエタノールを検討した結果、それぞれ水の電気分解、乾燥時のき裂生成等の短所があるものの、堆積量の観点からエタノールが適していることがわかった。図 1 に無水エタノール 50 ml、市販 PZT 仮焼粉 2.5 g を混合した懸濁液を用いて $10 \times 15 \times 0.1$ mm の Ni 基板間に電圧を印可した時の 5 分間における PZT 堆積量と懸濁液 pH の関係を示す。電圧に関わらず、pH が約 5 付近において堆積量が最大となる。これはこの付近の pH において PZT 粒子の分散性が高くなるためである。

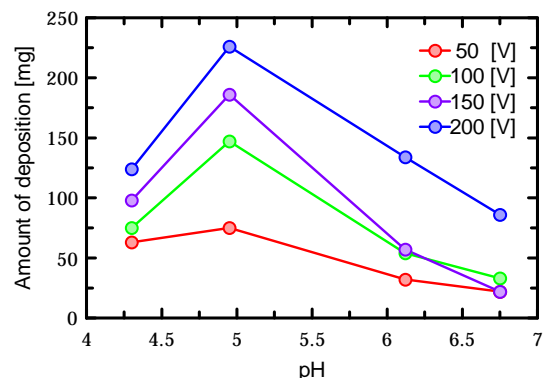


図 3 EPD 堆積量に及ぼす pH の影響

この pH の最適条件のもと、基板間電圧と堆積量および電圧一定としたときの電圧印可時間と堆積量の関係を明らかにした。

(2) EPD による圧電セラミックス焼結材の圧電

本研究で用いた PZT および PNN-PZT を用いて、金型による通常の加圧成形法と EPD にり成形した試験片を 1200 °C、2 時間の条件で焼

成させたときの圧電定数 d_{33} の比較を表 1 に示す。なお分極は 90° のシリコンオイル中で 2 kV/mm の電界を 30 分印可後、電界をかけたまま自然冷却する条件で行った。両材料とも加圧成形による試料より EPD によるその d_{33} が 30% 程度低下した。

表 1 材料の圧電定数

	成形法	圧電定数 d_{33} pC/N
PNN-PZT	加圧成形法	424
	EPD	300
PZT	加圧成形法	340
	EPD	240

(3) EPD による 2 層圧電材料の作製とその特性

EPD により PNN-PZT, PZT と順次積層させ焼結した 2 層材料を作製した。200 V の電圧によりそれぞれの材料を 4 分ずつ計 8 分、銅基板上に EPD させ、その状況を観察した結果を図 4 に示す。巨視的には材料の境界は確認できないが微視的には粒径の差があり、2 層材料として焼成されていることが分かる。

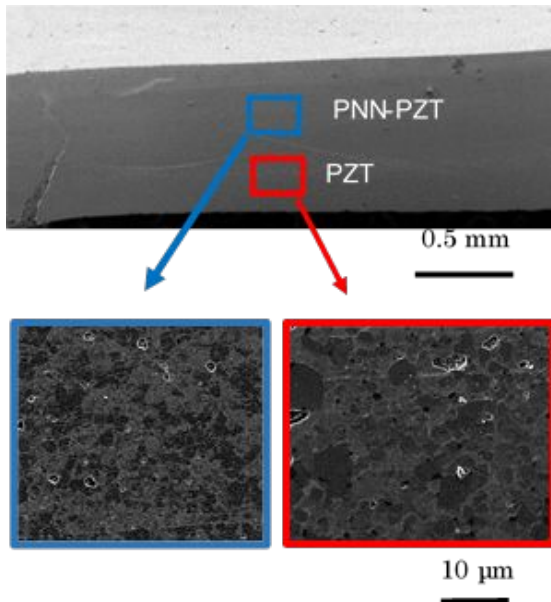
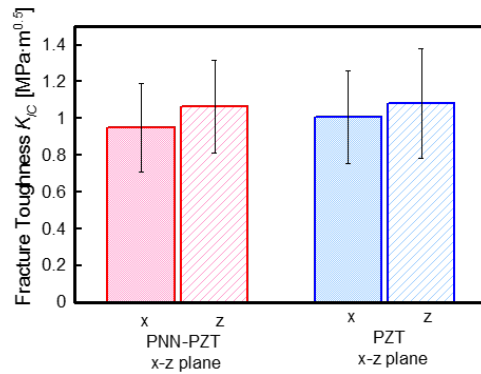
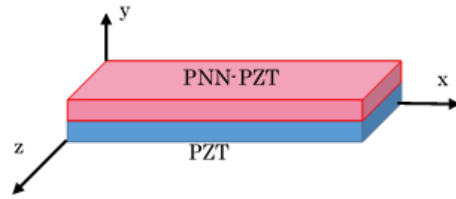
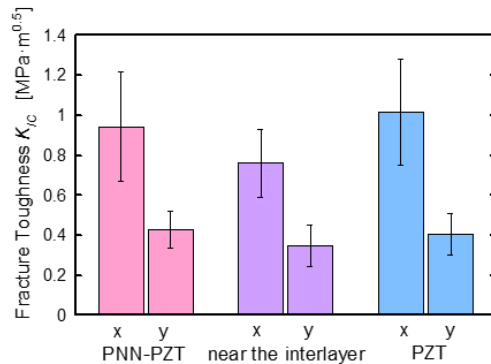


図 4 2 層圧電セラミックスの微視組織

EPD により成形、焼成した 2 層材料の破壊じん性値を IF 法により求めた結果を図 5 に示す。堆積面である x-z 面内での結果 (図 5 a) では材料および方向に関わらず、約 $1 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ の値であった。しかしながら堆積方向に沿った面内である x-y 面内では (図 5 b) 堆積方向での破壊じん性値がこれに直角な方向の値の 50% 以下となる著しい異方性が生じることが分かった。一般に圧電セラミックスの破壊じん性値は分極処理後に異方性が生じ、分極方向での破壊じん性値が若干低下する



(a) 堆積面内



(b) 堆積端面

図 5 EPD による圧電セラミックスの破壊じん性値

ことが知られているが、非分極材であっても EPD 法による材料にはそのプロセスに起因する機械的性質の異方性が生じることが明らかとなった。

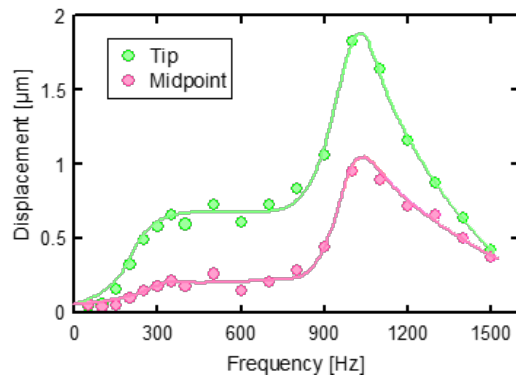


図 6 EPD による 2 層圧電セラミックスアクチュエータの駆動特性

この2層圧電セラミックスから作製した10×7×1 mmの片持ちはり型モノモルフアクチュエータにピーク振幅50 Vの交流電圧を周波数を変化させつつ印可した時のアクチュエータ先端と中央付近の最大変位と周波数の関係を図6に示す。300 Hzから800 Hzまでの範囲で変位出力は安定しており、先端付近で14 μm/V、中央付近でその1/4程度の出力が生じた。また周波数が1kHz付近で共振による振幅のピークが見られた。このように圧電特性を単一の材料内で変化させることで、外部電界により屈曲変位を出力させることができた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表](計3件)

矢野 洋平, 楠川量啓, 高坂達郎, 水系電気泳動法による圧電セラミックスの作製, 日本材料学会四国支部第13回学術講演会 2015.4.11

矢野洋平, 楠川量啓, 高坂達郎, 山本新, 電気泳動法による多層圧電アクチュエータの作製, 日本機械学会中国四国支部第54期総会・講演会 2016.3.9

山本新, 矢野洋平, 楠川量啓, 高坂達郎, 電気泳動法を用いて作製した多層圧電デバイスの特性評, 日本材料学会四国支部第14回学術講演会 2016.4.23

6. 研究組織

(1) 研究代表者

楠川 量啓 (Kazuhiro KUSUKAWA)
高知工科大学 システム工学群 教授
研究者番号: 60195435

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: