

ハイパワー用圧電材料に関する研究

2019年11月

早野 修二

目次

第1章 序論

1.1 研究の背景	1
1.2 研究の目的と進め方	4
1.3 本論文の構成	5
参考文献	6

第2章 ハイパワー圧電特性の測定法

2.1 緒言	8
2.2 振動レベル	8
2.3 定電圧法	9
2.4 定電流法	10
2.5 電氣的過渡応答法	11
2.5.1 測定原理	11
2.5.2 測定システム	13
2.5.3 データ解析法	15
2.5.4 測定例	15
2.6 結言	20
参考文献	20

第3章 振動波形のスペクトル解析

3.1 緒言	21
3.2 基本縦振動のスペクトル	21
3.2.1 実験方法	21
3.2.2 低振動レベルにおけるアドミッタンス特性	22
3.2.3 周波数スペクトル	23
3.3 高次縦振動のスペクトル	27
3.3.1 実験方法	27
3.3.2 低振動レベルにおけるアドミッタンス特性	27
3.3.3 周波数スペクトル	29
3.4 径方向基本拵がり振動のスペクトル	33
3.4.1 実験方法	33
3.4.2 低振動レベルにおけるアドミッタンス特性	34
3.4.3 周波数スペクトル	35
3.5 結言	36

参考文献	36
第 4 章 高調波の理論的検証	
4.1 緒言	38
4.2 電極構造と固有振動	38
4.3 非線形効果を考慮した圧電基本式	40
4.4 非線形振動と高調波	41
4.4.1 基本固有振動励振	41
4.4.2 第 2 次固有振動励振	43
4.4.3 第 3 次固有振動励振	45
4.5 理論と実験の比較	47
4.6 結言	48
参考文献	48
第 5 章 セラミックス試料の作製法	
5.1 緒言	50
5.2 $\text{Pb}(\text{Mn}, \text{Sb})\text{O}_3\text{-PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ 系圧電セラミックス	50
5.3 $(\text{K}, \text{Na})\text{NbO}_3$ 系圧電セラミックス	50
5.4 $\text{Pb}(\text{Mg}, \text{Nb})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ 系電歪セラミックス	51
5.5 結言	51
参考文献	52
第 6 章 圧電セラミックスのハイパワー特性	
6.1 緒言	53
6.2 $\text{Pb}(\text{Mn}, \text{Sb})\text{O}_3\text{-PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ 系圧電セラミックスのハイパワー特性	53
6.2.1 PZT 系 3 成分固溶体	53
6.2.2 低振動レベル特性	56
6.2.3 ハイパワー特性	57
6.2.4 振動損失パワー密度	62
6.3 $(\text{K}, \text{Na})\text{NbO}_3$ 系圧電セラミックスのハイパワー特性	64
6.3.1 低振動レベル特性	64
6.3.2 ハイパワー特性	64
6.4 結言	71
参考文献	71

第 7 章	圧電単結晶のハイパワー特性	
7.1	緒言	73
7.2	LiNbO ₃ 及び Pb(Mg,Nb)O ₃ -PbTiO ₃ 系圧電単結晶 のハイパワー特性	74
7.2.1	低振動レベル特性	74
7.2.2	周波数スペクトル	74
7.2.3	ハイパワー特性	78
7.2.4	振動損失パワー密度	81
7.3	結言	83
	参考文献	84
第 8 章	電歪セラミックスのハイパワー特性	
8.1	緒言	85
8.2	Pb(Mg, Nb)O ₃ -PbTiO ₃ 系セラミックスの電歪効果	85
8.3	ハイパワー特性	88
8.3.1	低振動レベル特性	88
8.3.2	ハイパワー特性	89
8.4	結言	93
	参考文献	93
第 9 章	各種圧電・電歪材料のハイパワー特性比較	
9.1	緒言	94
9.2	各材料のハイパワー特性比較	95
9.3	結言	97
	参考文献	98
第 10 章	結論	99
	謝辞	101

第1章 序論

1.1 研究の背景

すべての結晶は、構成する原子やイオンの対称性から 32 の点群に分類される。このうち立方晶の 1 つを除く 20 種の結晶は対称中心を持たない。対称中心のない結晶に機械的応力 T を印加してひずませると誘電分極（電気双極子） P が発生し、ひずみの符号を変えると分極の符号も変わる。またこの結晶に電界 E を印加するとひずみ S が発生し、電界の符号を変えるとひずみの符号も変化する。このような現象は圧電効果と呼ばれ、1880 年に Pierre と Jacques Curie の兄弟によって水晶で初めて見出された。図 1-1 には圧電効果が模式的に示されている。

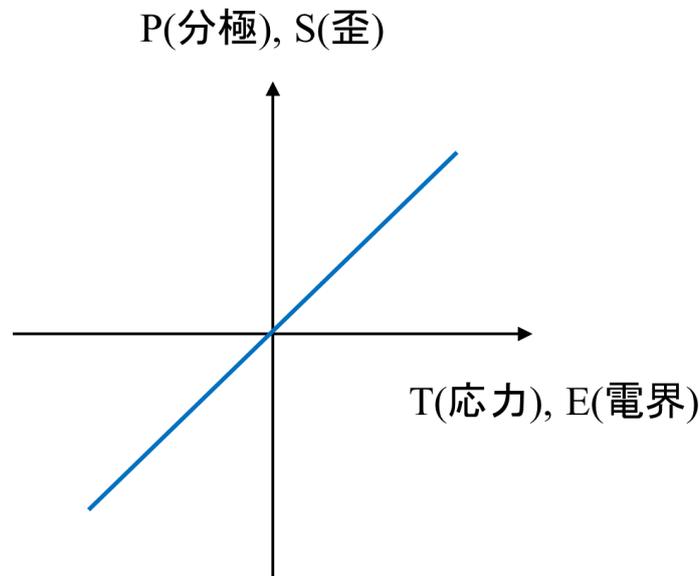


図 1-1 圧電効果の模式図

中心対称を持たない 20 種類の結晶中で 10 種類の結晶は有極性結晶で、外部から電界を印加しなくても電気双極子（自発電気分極）を持ち圧電効果を示す。そしてこの自発電気分極の向きが外部電界で反転できるものを強誘電体と呼ぶ。現在実用されている圧電材料は水晶を除いてその殆どが強誘電体であり、これらの相互関係は図 1-2 のようになる。

圧電材料には色々な種類が存在するが、材料形態の視点からは単結晶、セラミックス、薄膜、高分子、複合材料の 5 種類に分類され、分類毎にその特徴は異なっている。表 1-1 には各分類に属する代表的な材料が示されている。また、圧電材料の応用も多岐にわたるが、その応用分野は大まかには電子回路用

デバイス、センサーデバイス、メカトロニクス・強力超音波デバイスに分類される^{1,2)}。表 1-2 には各応用分野の代表的なデバイスや装置が例示されている。応用分野によって圧電材料に要求される特性が異なるため応用分野毎に材料の使い分けがなされている。電子回路用デバイス応用分野では温度変化や経年変化に対する安定性が重視されるため、水晶などの単結晶が多用されている。それほど高安定性の必要がないラジオなどの中間周波フィルタにはセラミックスも用いられている。センサーデバイス分野では感度の高いことが要求されるため圧電ひずみ定数 d 及び圧電出力定数 g の大きいセラミックスが有用である。ソナーや医用診断装置用の超音波トランスデューサには水や人体とのインピーダンス整合性に優れた高分子や高分子とセラミックスで構成される複合材料も一部で使用されている。

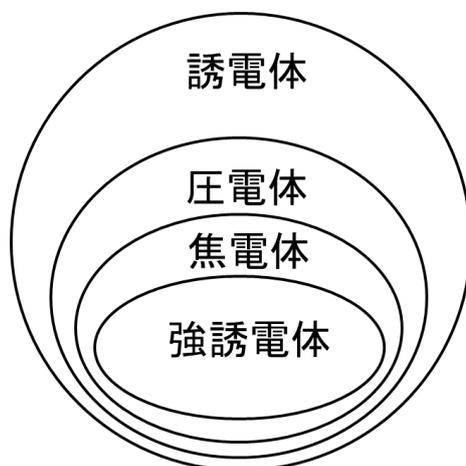


図 1-2 強誘電体の立ち位置

表 1-1 圧電材料の形態別分類とその代表例

分類	代表例
単結晶	水晶, LiNbO_3 , LiTaO_3 , $\text{Li}_2\text{B}_2\text{O}_7$, $\text{Pb}(\text{Zn}, \text{Nb})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PZN-PT), $\text{Pb}(\text{Mg}, \text{Nb})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT)
セラミックス	BaTiO_3 (BT), PbTiO_3 (PT), $\text{PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ (PZT), $\text{Pb}(\text{Mn}, \text{Sb})\text{O}_3\text{-PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMS-PZ-PT)
薄膜	ZnO , AlN , PZT
高分子	PVDF , P(VDF-TrFE)
複合材料	PZT/高分子

表 1-2 圧電材料の応用分野とその代表例

分類	代表例
電子回路用 デバイス	水晶発信器、クロック用水晶振動子 セラミックフィルタ、メカニカルフィルタ SAWデバイス
センサ	ジャイロセンサ、圧力センサ、加速度センサ 超音波顕微鏡、超音波診断装置 魚群探知機、ソナー
メカトロニクス用 デバイス・強力超音波 トランスデューサ	圧電アクチュエータ、圧電トランス 超音波モータ、超音波加工・洗浄・溶接機

一方、メカトロニクス・強力超音波デバイスの分野では大きな変位や発生力が求められるため、圧電 d 定数と機械的品質係数 Q_m が共に大きいセラミックスが主に用いられている。マイクロ・エレクトロメカニカル・システム (MEMS) に対しては薄膜状の圧電材料も使用されている。

電子回路用デバイスへの応用は歴史が古いこともあってこの関連技術は既にある一定レベルに到達している。また電話などの通信方式がアナログ方式からデジタル方式に移行した今日では、アナログ通信時代には使用されてきた大量かつ多種類のフィルタの必要性が低下し、この応用分野における圧電材料の高性能化に対する要求も現在ではあまり強くはない。一方メカトロニクス・強力超音波デバイス分野では圧電アクチュエータ³⁾、超音波モータ⁴⁾、圧電トランス⁵⁾ など次々と新しい応用デバイスが提案されるに至り、研究開発が活発化して実用化も進展している⁶⁾。そして、これら新しいデバイスからの材料ニーズに応えるべく材料に対する研究開発機運も高まりを見せている。

一般に、圧電デバイスでは圧電材料で構成された振動子にその共振周波数に相当する交流電界を印加して機械的共振を励振し、この共振現象を利用して様々な機能を発現させる。電子回路用デバイスでは利用される振動レベルが比較的到低いため、振動波形は正弦波と見なせる。そして長時間連続的に駆動しても自己発熱による温度上昇も無視できる程度に小さい。一方メカトロニクス・強力超音波デバイスでは高振動レベルの振動が利用される。この場合、振動は高電界の交流信号を印加して励振され、励振された振動の波形は非線形効果によりひずみ波（非正弦波）となる。そして機械的品質係数 Q_m が著しく低下し、その結果振動損失が増大して大きな発熱を伴う⁵⁾。また、材料の弾性、誘電性、圧電性も変化することが指摘されている。しかし高振動レベルで駆動された場合の諸特性の高精度な測定法は確立されていないこともあり、この分野の研究は未

だ十分には行われていない状況にある。従ってこの分野で使用される材料の適性も明確にはされていない。

1.2 研究の目的と進め方

上記の背景を踏まえて、本研究では代表的な圧電材料を採り上げ、高振動レベルで駆動した場合の弾性、誘電性、圧電性、即ちハイパワー特性の高精度な測定を行い、これら材料のハイパワー用途への適性評価を行うと同時に材料物性の視点からハイパワー圧電特性について論じることを主眼とする。研究対象用材料にはメカトロニクス・強力超音波デバイスの分野で多用されているジルコン酸チタン酸鉛 $\text{PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ (PZT)を主成分とする3成分系圧電セラミックスとニオブ酸リチウム LiNbO_3 (LN) 圧電単結晶⁷⁾、超音波医用診断装置などに使用されている圧電 d 定数の極めて大きいマグネシウム・ニオブ酸チタン酸鉛 $\text{Pb(Mg, Nb)O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT)圧電単結晶、非鉛系の代表的圧電セラミックス、ニオブ酸カリウム・ナトリウム $(\text{K, Na})\text{NbO}_3$ (KNN)、また優れたハイパワー特性が期待されるマグネシウム・ニオブ酸チタン酸鉛 $\text{Pb(Mg, Nb)O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT)系電歪セラミックス⁸⁾を選定した。そしてハイパワー特性の評価は市販のPZT系圧電セラミックスとの比較で行われた。これらの低振動レベル（振動速度 $<0.05\text{m/s}$ ）における諸特性を表1-3と表1-4にまとめて示しておく。C213材、C201材、C21材は（株）富士セラミックス製のハード系PZT、C6は同社のソフト系PZTである。またN8は（株）トーキン製のハード系PZTであり、N10は同社のソフト系PZTである。

表 1-3 (株)富士セラミックス製 PZT 系圧電セラミックスの低振動レベルで測定された諸特性

	C213	C201	C21	C6
弾性コンプライアンス $s_{11}^E (\times 10^{-12}\text{m}^2/\text{N})$	12.2	12.7	12.0	16.1
比誘電率 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$	1470	1550	1400	2130
圧電 d 定数 $d_{31} (\times 10^{-12}\text{C}/\text{N})$ d_{33}	-135 310	-145 330	-131 288	-210 472
電気機械結合係数 k_p k_{31}	0.58 0.34	0.60 0.34	0.59 0.34	0.66 0.38
機械的品質係数 Q_m	2500	900	1400	90
密度 ρ (kg/m^3)	7.8	7.8	7.8	7.65

表 1-4 (株)トーキン製 PZT 系圧電セラミックスの低振動レベルで測定された諸特性

	N8	N10
弾性コンプライアンス $s_{11}^E (\times 10^{-12} \text{m}^2/\text{N})$	11.2	14.8
比誘電率 $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$	850	5440
圧電 d 定数 $d_{31} (\times 10^{-12} \text{C}/\text{N})$ d_{33}	-99 226	-287 635
電気機械結合係数 k_p k_{31}	0.50 0.34	0.56 0.34
機械的品質係数 Q_m	1400	65
密度 $\rho (\text{kg}/\text{m}^3)$	7.72	8.0

ハイパワー特性の測定には電氣的過渡応答法を用いた⁹⁾。電氣的過渡応答法では圧電振動子にバースト正弦波電圧を印加して振動を励振し、印加電圧除去後の自由振動を観測することでハイパワー特性が測定される。しかし振動レベルが高くなると振動波形はひずみ波となるため高精度の測定は望めない。そこで本研究では測定精度の高度化を図る目的で、スペクトル解析手法を導入して正弦波成分を抽出し、これを利用する方法を検討する。また、ひずみ波の原因を理論と実験の両面から考察する。

1.3 本論文の構成

第2章「ハイパワー圧電特性の測定法」では、まずハイパワー圧電特性と振動レベルとの関係について論じる。次いで圧電特性の測定に通常使用される定電圧法はハイパワー特性の測定には適さないことを明らかにする。さらにハイパワー特性測定法として開発された2つの測定法、定電流法と電氣的過渡応答法、の測定原理と特徴について比較検討する。その結果を踏まえて本研究で採用された電氣的過渡応答法について、そのシステムの概略、データの解析法及び測定例について述べる。

第3章「振動波形のスペクトル解析」では、高振動レベルの振動波形を周波数スペクトル解析し、振動波形は多数の高調波成分を含むひずみ波であることを示す。そしてこれらの高調波成分は固有振動の高次波ではないことを実験的に明らかにする。更に測定データに周波数フィルタ処理を施して基本波成分(正弦波)を抽出し、これを利用した高精度測定法を検討する。実験には圧電横効果で

駆動されるセラミック縦振動子と円板の径方向拡がり振動子を用いる。

第4章「高調波の理論的検証」では、非線形効果を考慮した圧電基本式を用いて振動解析を行い、第3章で得られた実験結果を理論的側面から検証する。そしてひずみ波は弾性的非線形効果によって生じることを明らかにする。

第5章「セラミックス試料の作製法」では、本研究で使用される圧電セラミックスの内 $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMS-PZ-PT) 及び $(\text{K}_{1/2}, \text{Na}_{1/2})\text{NbO}_3$ (KNN)、そして電歪セラミックス $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT) の作製方法について述べる。

第6章「圧電セラミックスのハイパワー特性」では、ハイパワー用材料として実用性の高い PMS-PZ-PT に着目し、正方晶系と菱面体晶系との相境界とハイパワー特性との関係を論じる。また、代表的な非鉛系圧電セラミックス KNN についても高振動レベル下におけるハイパワー特性を検討する。

第7章「圧電結晶のハイパワー特性」では2種類の圧電単結晶、 LiNbO_3 (LN) と $0.7\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-}0.3\text{PbTiO}_3$ (PMN-PT)、のハイパワー特性を論じる。

第8章「電歪セラミックスのハイパワー特性」では、室温では圧電効果を示さず常誘電的に振る舞うが、大きな電歪効果を示す $x\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-(}1-x\text{)PbTiO}_3$; $x=1.0\sim 0.9$ (PMN-PT)系電歪セラミックスについて、特に直流バイアスの印加により材料を予めひずませた状態での高振動レベル下におけるハイパワー特性を明らかにする。

第9章「各種圧電・電歪材料のハイパワー特性比較」では、市販されているソフト系及びハード系 PZT と比較しながら、圧電セラミックス PMS-PZ-PT と KNN、圧電単結晶 LN と PMN-PT、電歪セラミックス PMN-PT のハイパワー特性について論じる。

第10章「結論」では、本研究で得られた主要な成果を測定法とハイパワー特性とに分類して示す。

参考文献

- 1) 池田拓郎 著：「圧電材料学の基礎」(オーム社、東京、1982年)
- 2) 川端昭 編著、一ノ瀬昇、高橋貞行 著：「やさしい超音波工学 (増補版)」(工業調査会、東京、1998年)
- 3) 日本工業技術振興協会 固体アクチュエータ研究部会 編：「精密制御用ニューアクチュエータ便覧」(フジ・テクノシステム、東京、1994年)
- 4) S. Ueha and Y. Tomikawa, Eds., "Ultrasonic Motors, Theory and Applications", (Clarendon Press, Oxford, 1993)
- 5) 高橋貞行, 固体物理, **34**, 9 (1999) 65.
- 6) 超音波パワーエレクトロニクス論文特集編集委員会 編：“超音波パワーエレ

- クトロニクス論文特集” 電子情報通信学会論文誌, **J80-A**, 10 (1997)
- 7) 若月昇、電子情報通信学会論文誌 **J87-C**, 2 (2004) 216.
- 8) K. Uchino and J. Giniewics : 「マイクロメカトロニクス : 圧電アクチュエータを中心に」 (森北出版, 東京, 2007)
- 9) M. Umeda, K. Nakamura and S. Ueha, Jpn. J. Appl. Phys., **37**, Part 1, 9B (1998) 5322.

第2章 ハイパワー圧電特性の測定法

2.1 緒言

圧電材料の弾性的、誘電的、圧電的諸特性は一般的には圧電振動子の共振特性の測定から求められる。そしてこれらの諸特性は低振動レベルの振動を励振して測定する限りでは振動レベルとは無関係に一定値を示す。しかし振動レベルがある程度高くなると諸特性は振動レベルの関数となることが知られている¹⁾。この様な振動レベルにおける特性をハイパワー特性と呼ぶことにする。

低振動レベル領域では、通常、定電圧法に基づくアドミッタンスの共振周波数近傍での周波数特性の測定から諸特性は決定される。しかし高振動レベル領域では共振周波数付近でのアドミッタンスの周波数特性が不安定となり、この方法で諸特性を求めることは困難となる。これに対してハイパワー特性の測定を可能にする2つの測定法、定電流法²⁾と電氣的過渡応答法³⁾が提案されている。

本章ではまず振動レベルについて言及し、次いで定電圧法、定電流法及び電氣的過渡応答法の測定原理と特徴について論じる。そして電氣的過渡応答法が本研究で採用された理由を明らかにする。さらにこの測定法の測定システムの概略、データ解析法、測定例について述べる。

2.2 振動レベル

図2-1(a), (b), (c)に示す圧電横効果で駆動されるセラミック縦振動子を例に採り、まずは振動レベルについて論じる。(a)は振動子の形状と寸法を示すもので各部の寸法は長さ l 、幅 w 、厚さ d ($l \gg w, d$)で分極 P は厚さ方向になされており、上下面には全面にわたり金属電極膜が施されている。(b)には長さ方向の第1次固有振動に対する振動速度 v の分布が、また(c)には応力 T の分布が示されている。ここで添え字 m は最大値を意味する。

この振動子に交流電界を印加して第1次固有縦振動を励振した場合の振動子に蓄積される歪エネルギー U は次式で示される。⁴⁾

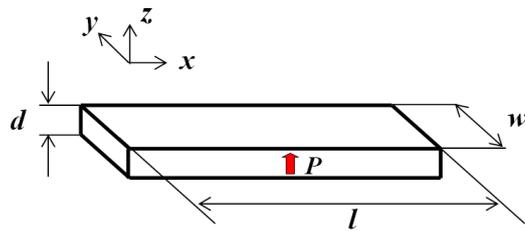
$$U = \int_V u dV = \bar{u} V$$

(2.1)

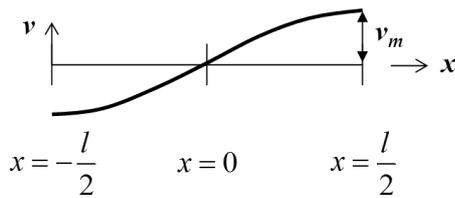
$$\bar{u} = \frac{1}{4} Y_0 S_m^2 = \frac{1}{4} Y_0^{-1} T_m^2 = \frac{1}{4} \rho v_m^2$$

(2.2)

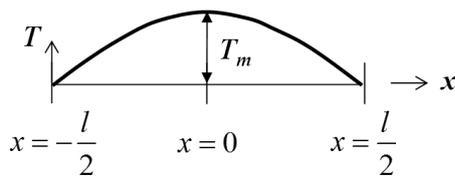
ここで u はひずみエネルギー密度、 \bar{u} は平均ひずみエネルギー密度、 $v_m (= \partial \xi_m / \partial t, \xi_m: \text{変位})$ は最大振動速度、 S_m は最大ひずみ、 T_m は最大応力、 Y_0 はヤング率、 ρ は密度、 $V (= l \times w \times d)$ は体積を表している。このように \bar{u} は S_m, T_m ある



(a)



(b)



(c)

図2-1 厚み方向に分極された測定用圧電横効果縦振動子 (a) 振動子の形状, (b) 振動速度 v の振幅

図 2-1 厚み方向に分極された測定用圧電横効果縦振動子

いは v_m の— (a)振動子の形状, (b)振動速度 v の振幅分布, (c)振動応力 T の振幅分布、即ち
振動レベルの振幅分布

T_m ($= \sqrt{\rho/s_{11}^E} v_m$, s_{11}^E : 弾性コンプライアンス)あるいは v_m で表わすことにする。

2.3 定電圧法

定電圧法とは低出力インピーダンス電源を用いて一定の電圧を試料振動子に印加し、共振周波数付近のアドミッタンス $|Y|$ 特性を測定して諸特性を求める方法である。図 2-2 には振動子の制動容量を補償する回路⁵⁾を用いて、定電圧法で測定したアドミッタンス $|Y|$ の周波数特性が振動レベル（振動速度 v ）をパラメータとして示されている。 $|Y|$ は上に凸の曲線を描き、共振周波数 f_r で極大値をとる。低振動レベルでは $|Y|$ は f_r に対して左右対称となるが、振動レベルが上がると対称性が崩れる。そして振動レベルがある一定値を超えると跳躍現象が現れる。その結果 $|Y|$ の測定からは高振動レベルにおける f_r やその半値幅 Δf の正確な測定

が困難となり、この方法はハイパワー特性の測定に適用することが出来ない⁶⁾。

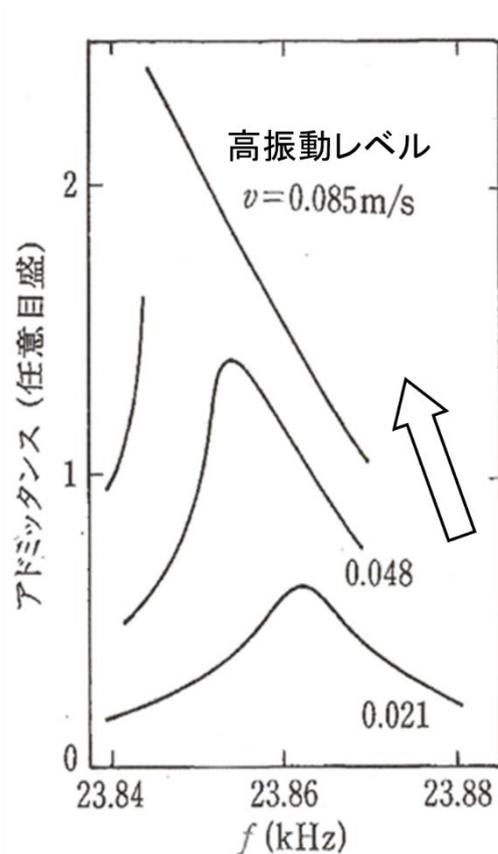


図 2-2 定電圧法で測定した各振動レベルのアドミタンス波形

なお、跳躍現象は $f=f_r$ とその前後の周波数とで振動レベルが大幅に変動するために起るものと考えられている。

2.4 定電流法

定電流法とは出力インピーダンスの高い電源を用いて試料振動子に一定の電流を供給して、共振周波数付近のインピーダンス $|Z|$ の周波数特性の測定から諸特性を求める方法である。制動容量補償回路を使用すれば電流 i は振動速度に対応する。図 2-3 には振動速度 v をパラメータとした場合の $|Z|$ が示されている。 $|Z|$ は $|Y|$ とは逆に下に凸の曲線を描き、 $f_r(=\omega_r/2\pi)$ で極小値をとる。そしてこの場合には振動レベルが変化しても対称性が損なわれることがない。従ってこの方法を採用することでハイパワー特性の測定が可能となる⁶⁾。なお、高振動レベルでも跳躍現象が起らない理由は周波数が変化しても振動レベルが常に一定値に保たれるためである。

圧電横効果縦振動子(図 2-1)に例を採り、諸特性の測定法について述べる。

先ず定電流法を適用して f_r , 共振周波数の半価幅 Δf , i を測定し、これと並行して振動速度計を用いて振動速度 v を同時に測定すれば、弾性コンプライアンス s_{11}^E 、圧電 d_{31} 定数、機械的品質係数 Q_m のハイパワー特性は次式に従って求められる。

$$\omega_r = \frac{\pi}{\ell} \sqrt{\frac{1}{\rho s_{11}^E}} \quad (2.3)$$

$$A = \frac{i}{v} = \frac{2bd_{31}}{s_{11}^E}$$

(2.4)

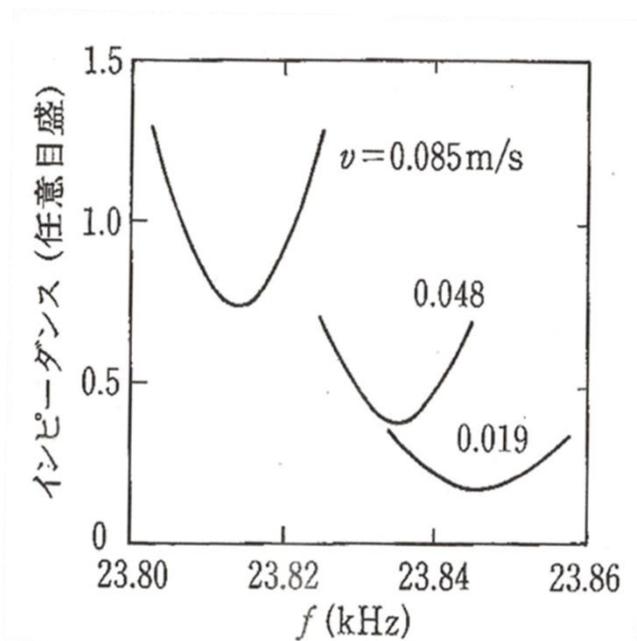


図2-3 定電流法で測定した各振動レベルのインピーダンス波形

$$Q_m = \frac{\omega_r}{\Delta\omega}$$

(2.5)

ここで A は力係数を表すものとする。

2.5 電氣的過渡応答法

電氣的過渡応答法の測定原理、測定システム、データ解析法及び測定例をハード系PZTセラミックスC201材(表1-3)で構成された圧電横効果縦振動子(図2-1(a); $\ell=43$, $w=7$, $d=1\text{mm}$)を例に採り以下に論じる。

2.5.1 測定原理

電氣的過渡応答法の測定原理を図2-4の模式図に従って述べる。まず振動子に

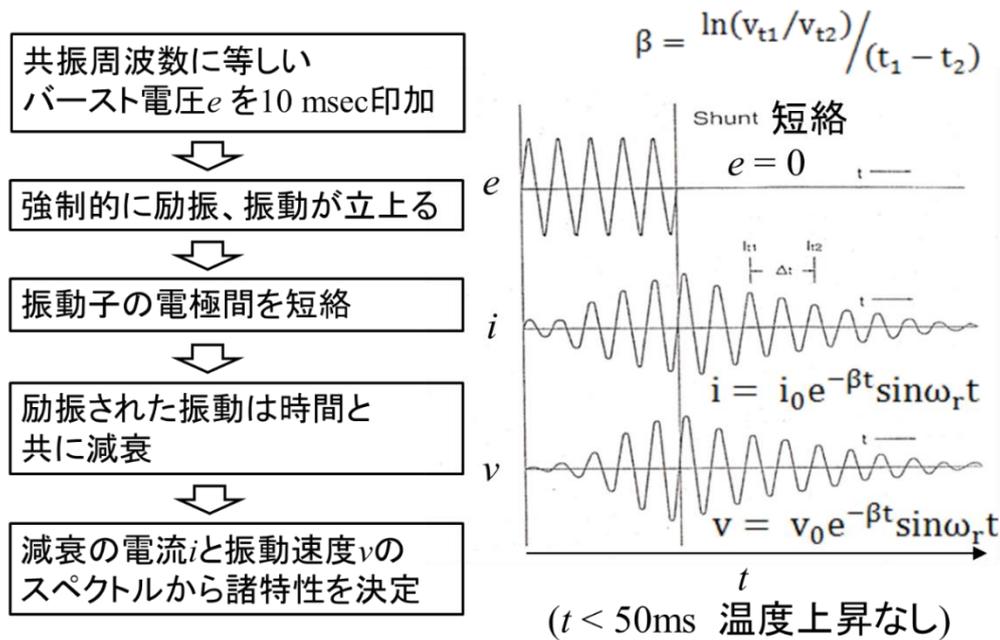


図 2-4 電氣的過渡応答法の測定原理

は共振周波数にはほぼ等しい数 10msec 程度の時間幅を有するバースト電圧波 e が印加され振動が強制的に励振される。振動が十分に立ち上がった時点で振動子の電極端子間を電氣的に短絡すると、振動子は共振周波数で機械的に振動しながらその振幅は経過時間 t の指数関数で減衰していく。この減衰過程における電流 i と振動速度 v を同時測定し、これら振動波形のスペクトル解析から角周波数 ω_r を得ることで諸特性が振動レベルの関数として表される。そして s_{11}^E 、 d_{31} 、 Q_m は次式から決定される。

$$A = \frac{i}{v} = \frac{2bd_{31}}{s_{11}^E} \quad (2.6)$$

$$\beta = \frac{\ln\left(\frac{i_{t1}}{i_{t2}}\right)}{\Delta t} = \frac{\ln\left(\frac{v_{t1}}{v_{t2}}\right)}{\Delta t}, \quad \Delta t = t_1 - t_2 \quad (2.7)$$

$$\omega_r = \frac{\pi}{\ell} \sqrt{\frac{1}{\rho s_{11}^E}} \quad (2.8)$$

$$Q_m = \frac{\omega_r}{2\beta} \quad (2.9)$$

ここで β は振動の減衰定数を表す。

図 2-5 は第 1 次固有振動の共振周波数付近での振動子の電氣的等価回路を示し、

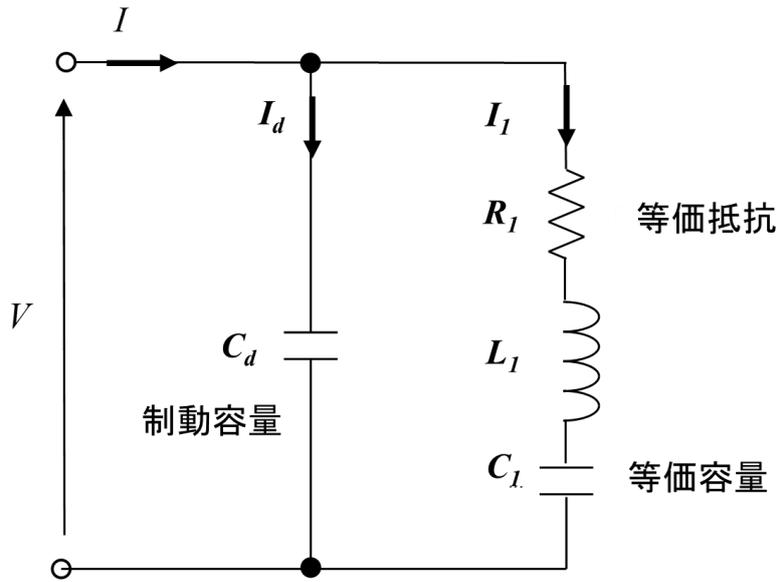


図2-5 圧電素子の電氣的等価回路

L_1, C_1, R_1, C_d は各々等価インダクタンス、等価容量、等価抵抗、及び制動容量を表す。これらの値及び比誘電率 ϵ_{33}^T は次式の関係から決定される。

$$L_1 = \frac{m}{A^2} \quad (2.10)$$

$$C_1 = \frac{1}{\omega_f^2 L_1} \quad (2.11)$$

$$R_1 = \frac{2m\beta}{A^2} \quad (2.12)$$

$$C_d = \frac{\epsilon_{33}^S \epsilon_0 \ell b}{t}, \quad C_1 + C_d = \frac{\epsilon_{33}^T \epsilon_0 \ell b}{t}$$

$$(2.13)$$

ここで m は等価質量であり振動子の全質量の 1/2、また C_d は共振周波数より十分に低い周波数で測定される容量であり、キャパシタンスメータなどを用いて別途測定される。

定電流法では振動子を高振動レベルで励振すると振動子の自己発熱により振動子の温度が上昇する。従ってこの測定法で得られるハイパワー特性は温度特性を含んだものとなるため、純粋なハイパワー特性とは言い難い。また温度が安定状態に達するまでに長時間を要することもこの測定法の弱点となっている。一方、電氣的過渡応答法では測定に要する時間は 0.1s 以下と極めて短時間である。その結果測定中の振動子温度の上昇は無視出来る程度に小さい。従ってこの

図 2-5 圧電素子の電氣的等価回路

図 2-7 に振動速度 v と電流 i の測定例を示す。この様な減衰波形を取り込むことで大振幅状態から小振幅状態までの連続した振幅情報が一度の測定で得られることになる。なお、電圧印加直後の波形の乱れは印加電圧周波数と試料の共振

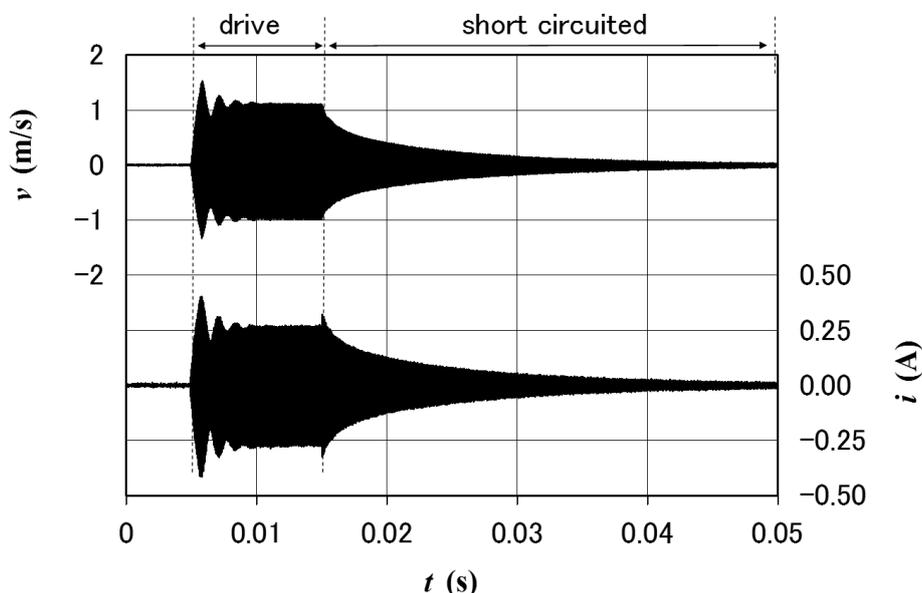


図 2-7 電氣的過渡応答法による実際の振動速度 v と電流 i の測定例

周波数との間に多少の差があるために生じるうなり現象が原因と推定される。減衰波形は電気端子間を短絡した状態での波形であるから、この減衰振動は電界 E が一定の波形、即ち共振状態での波形と言える。従ってこのデータの解析から得られる材料の諸定数は電界 E 一定の定数である。なお、電源電圧 $e=0$ の実現にはアンプとしてバイポーラ型の内部インピーダンスが無視できる程度に小さいものを用いる必要がある。

このように本測定法では電圧印加による強制振動の時間と減衰振動の時間とを合わせても 0.1s 以下と極めて短時間であるため、振動損失に起因した自己発熱により起る振動子温度の上昇は無視できる程度に小さい。

2.5.3 データ解析法^{8,9)}

振動速度 v 波形 (図 2-7) を例にとりデータ解析方法について論じる。測定の実データ中には種々の原因で生じる多くの周波数成分が含まれているため、パソコンなどを利用してまず減衰波形をスペクトル分析し、バンドパスフィルタ処理をして基本周波数成分 v_1 を抽出する。次いでヒルベルト変換などの手法で基本波の瞬時振幅 V と瞬時周波数 f_t とを割り出す。図 2-8(a), (b), (c), (d)にはそれぞれ抽出された振動速度の基本波成分 v_1 , その瞬時振幅 V 、瞬時周波数 f_t 及び減衰係数 β が示されている。振幅の減少、即ち振動レベルの減少に伴って f_t は増

大、一方減衰係数 β は減少している。また、同様にして図 2-8(e)に示す電流の基本周波数成分の瞬時振幅 I から f_r 及び β の算出は可能である。

2.5.4 測定例¹⁰⁾

図 2-9(a), (b)には(a)力係数 A と等価抵抗 R_1 , (b)には等価インダクタンス L_1 と等価容量 C_1 のハイパワー特性がそれぞれ振動速度 v_m の関数で示されている。図中で点線(#A)は定電圧法で測定された低振動レベル($v_m < 0.05\text{m/s}$)を、また実線(#B)は電氣的過渡応答法で測定された高振動レベルでの測定結果をそれぞれ示している。定電圧法ではいずれも一定値を示すのに対して、電氣的過渡応答法では、 A と C_1 とは振動レベルの増大と共に微増、一方 L_1 は微減している。そして R_1 は急増することが分かる。この R_1 の急増は振動子の発熱量の急増を示唆するものである。

また図 2-10(a), (b), (c)には弾性コンプライアンス s_{11}^E , 圧電 d_{31} 定数, 機械的品質係数 Q_m のハイパワー特性が T_m の関数で表示されている。図 2-9 と同様、図中で点線(#A)は定電圧法、実線(#B)は電氣的過渡応答法で測定されたそれぞれの測定結果を示している。定電圧法ではいずれも一定値を示すのに対して、電氣的過渡応答法では、 s_{11}^E と d_{31} は振動レベルと共に増大する傾向があり、また Q_m に対しては急激な減少傾向が認められる。

以上のように電氣的過渡応答法を利用すれば振動子の等価回路定数や材料の諸特性のハイパワー特性の評価が可能となる。

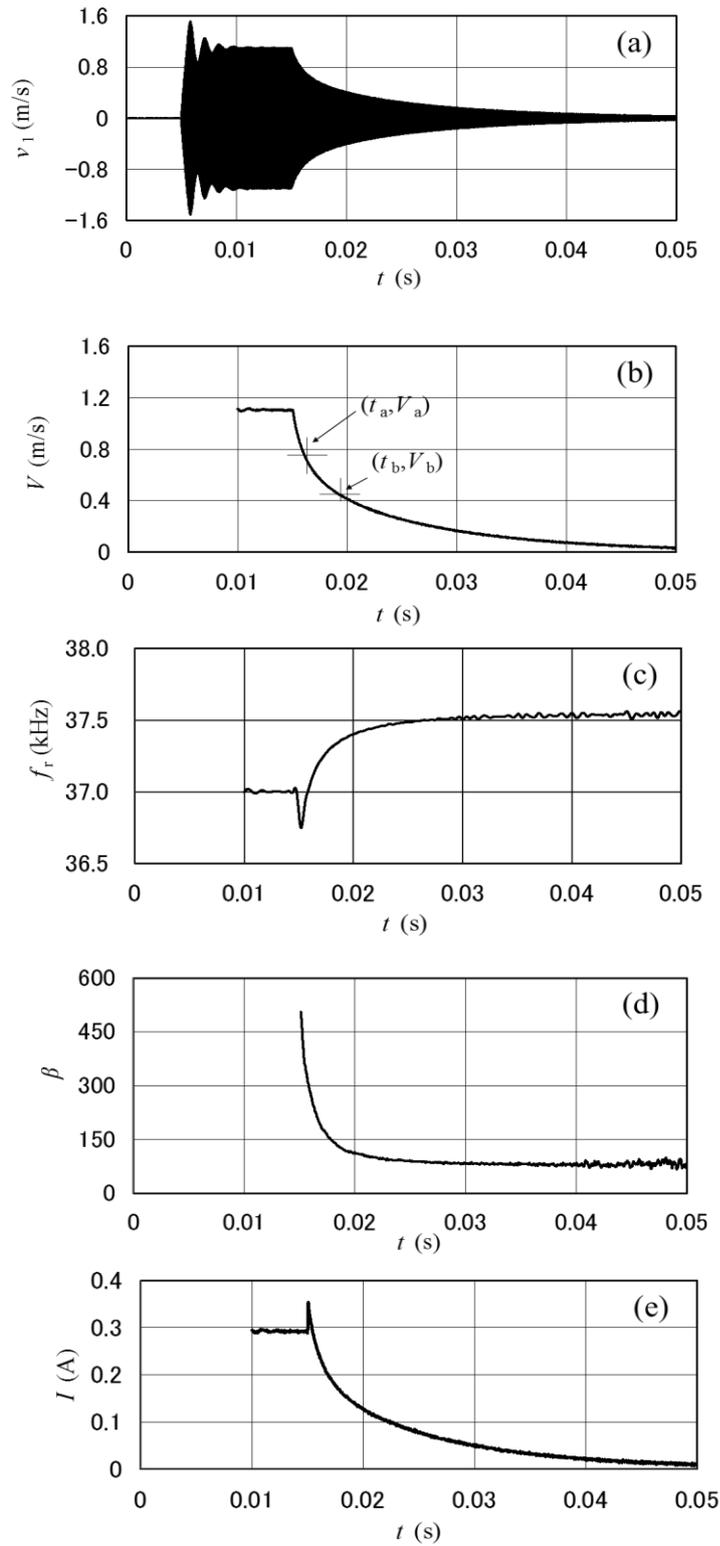


図 2-8 抽出された振動速度の各成分 (a)振動速度 v_1 , (b)瞬時振幅 V , (c)瞬時周波数 f_r , (d)減衰係数 β , (e)瞬時電流振幅 I

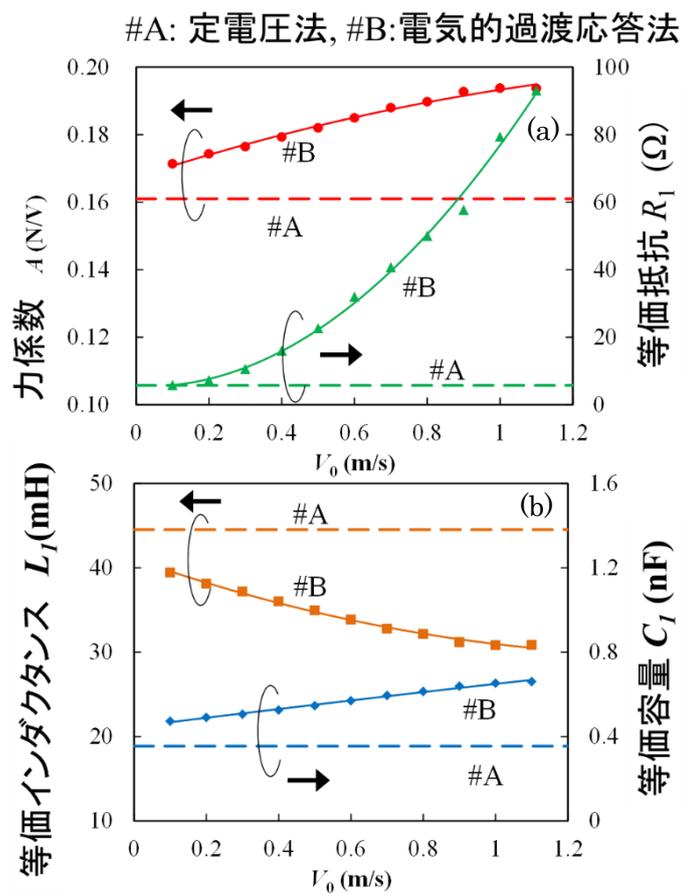


図 2-9 各パラメータに与える振動速度の影響
 (a)力係数 A と等価抵抗 R_1 , (b)等価インダクタンス L_1 と等価容量 C_1

#A:定電圧法, #B:電氣的過渡応答法

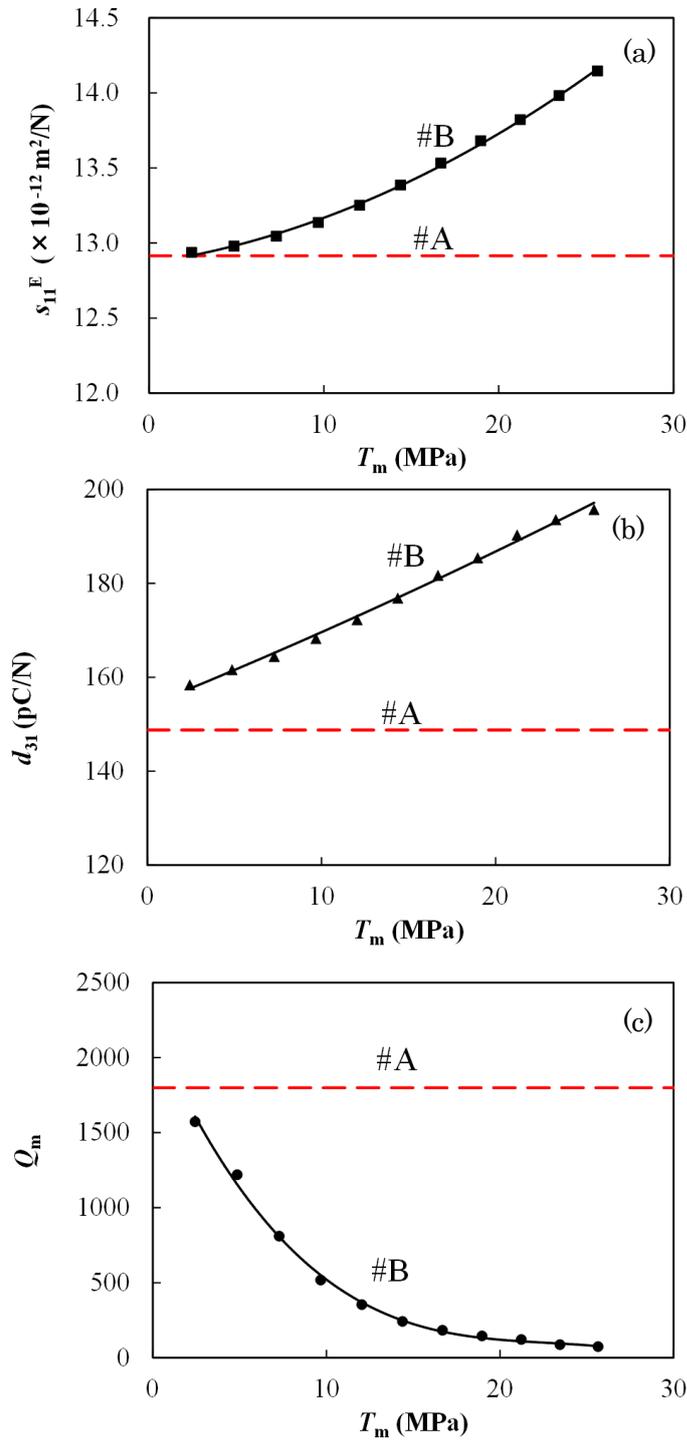


図 2-10 (a)弾性コンプライアンス s_{11}^E , (b)圧電定数 d_{31} 及び (c)機械的品質係数 Q_m に与える振動応力(T_m)の影響

2.6 結言

振動レベルでその値が変動する状態における諸特性をハイパワー特性と定義し、ひずみ、応力及び振動速度が振動レベルを表す普遍的なパラメータであることを述べた。また、ハイパワー特性の測定には電氣的過渡応答法が適することを明らかにし、その原理、測定システム、データの解析法を述べ、具体的な測定例を示した。

参考文献

- 1) S. Takahashi, Y. Hirose and K. Uchino and K. Y. Oh, Proc. 9-th IEEE ISAF, (1994)377.
- 2) 広瀬精二, 高橋貞行, 電子情報通信学会論文誌, J80-A, 10 (1997) 1621.
- 3) M. Umeda, K. Nakamura and S. Ueha, Jpn. J. Appl. Phys. 37, Part1, 9B (1998) 5322.
- 4) 永井健三, 近野正 編:「電気機械振動子とその応用」(コロナ社, 東京, 1974年)
- 5) 池田拓郎 著:「圧電材料学の基礎」(オーム社, 東京, 1982年)
- 6) 高橋貞行、固体物理、**34**, 9 (1999) 65.
- 7) M. Umeda, S. Takahashi, Y. Sasaki, K. Nakamura and S. Ueha, Electron. Comm. Jpn. Part2, 83, 9 (2000) 762.
- 8) 梅田幹雄, 中村健太郎, 高橋貞行, 超音波テクノ, 3-4 (2013) 45.
- 9) 梅田幹雄, 早野修二, 高橋貞行, 日本音響学会誌 **72**, 5 (2016) 228.
- 10) 梅田幹雄, 日本音響学会誌 **72**, 5 (2016) 250.

第3章 振動波形のスペクトル解析

3.1 緒言

電氣的過渡応答法を用いた圧電材料のハイパワー特性の測定においては、まず圧電振動子にバースト正弦波電圧を印加して高レベルの振動を励振する。次いで振動子の電極端子間を短絡して電界 $E=0$ の電氣的条件で減衰振動させる。この減衰振動の振動速度 v と電流 i の測定からハイパワー特性を算出する。ところで高レベル振動には多数の周波数成分が含まれているため、その振動波形はひずみ波（非正弦波）となっている。従って測定された生データから直接算出されたハイパワー特性には大きな誤差が生じる恐れがある。本章では測定データに周波数フィルタ処理を施して基本波成分（正弦波）を抽出し、これを利用した高精度測定法を検討する。また、測定データのスペクトル解析からひずみ波の原因を明らかにする。実験には圧電横効果で駆動される縦振動子と円板の径方向拡がり振動子を用いる。

3.2 基本縦振動のスペクトル¹⁾

3.2.1 実験方法

実験に使用する圧電横効果縦振動子を図 3-1(a), (b)に示す。振動子材料にはハード系 PZT セラミックス C21 材（表 1-3）を使用する。長さ $l=43\text{mm}$ 、幅 $b=7\text{mm}$ 、厚さ $t=1\text{mm}$ の矩形板で対向する上下面には銀電極膜が焼き付けられており、厚

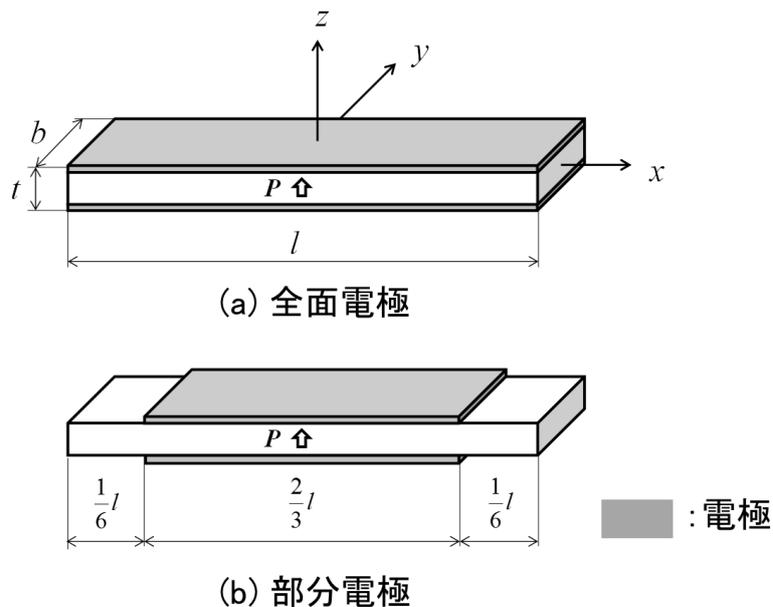


図 3-1 測定に用いた圧電横効果縦振動子
(a)全面電極構造, (b)部分電極構造

さ方向に分極 P 処理されている。(a)は振動子の上下面全面に電極膜が施されており（全面電極構造）、この電極構造では偶数次数の高次固有振動の励振が抑圧される。一方(b)は $2/3 \ell$ 長の電極膜が振動子の中央部に左右対称となるように施されている（部分電極構造）。この振動子では第2次及び第3次固有振動の励振が抑圧される。

測定には(2.5.2)項で論じた測定システムが使用された。振動励振用バースト正弦波電圧の振幅は $50V_{op}$ 、周波数は $37.1kHz$ 、印加時間は $30ms$ とした。

3.2.2 低振動レベルにおけるアドミッタンス特性

図 3-2(a), (b)には定電圧法で測定された低振動レベル ($v < 0.05m/s$, $T_m < 1.5MPa$) におけるアドミッタンス $|Y|$ と位相 θ の周波数 f 特性が示されている。(a)は全面電極構造振動子、(b)は部分電極構造振動子に対する結果である。全面電極振動子の基本固有振動周波数は $f_1 = 37.9kHz$ であり、偶数次数の固有振動が励振されない電極構造となっていることが確認される。また部分電極構造振動子の基本固有振動周波数は $f_1 = 38.4kHz$ であり、第2次、第4次の偶数次数固有振動に加え

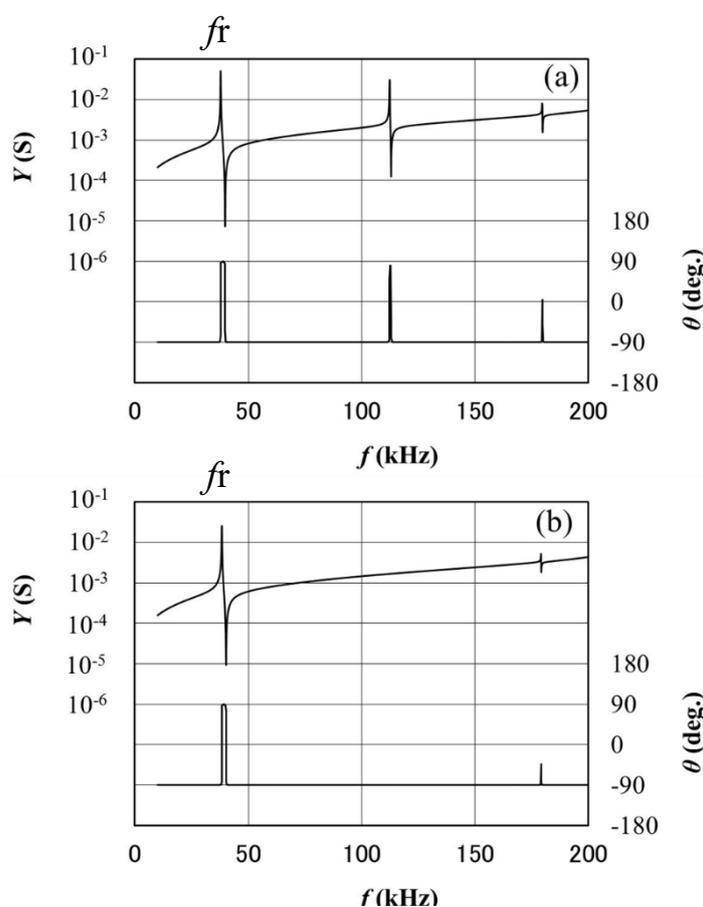


図 3-2 低振動レベルでのアドミッタンス Y と位相 θ の周波数特性 (a)全面電極構造, (b)部分電極構造

て第 3 次の奇数次数固有振動の励振も抑圧されることが確認される。なお、全面電極構造振動子と部分電極構造振動子の基本共振周波数間で多少のズレが見られるが、これは電極部の弾性コンプライアンス s_{11}^E が電界 E 一定であるのに対して無電極部では弾性コンプライアンス s_{11}^D が電束密度 D 一定となるためである。

3.2.3 周波数スペクトル

図 3-3(a), (b)には振動速度 v の周波数スペクトルが示されている。(a)は全面電極構造振動子、(b)は部分電極構造振動子に対する結果である。また図 3-4(a), (b)には振動速度と同時に測定された電流 i の周波数スペクトルが示されている。(a)は全面電極構造振動子に対する結果であり、(b)は部分電極構造振動子に対する結果である。これらの図において f_1 は基本共振周波数にほぼ一致しており、 f_1 と f_2, f_3, f_4, f_5 との間には次式の関係が成立している。

$$f_n = n f_1 \quad (n =$$

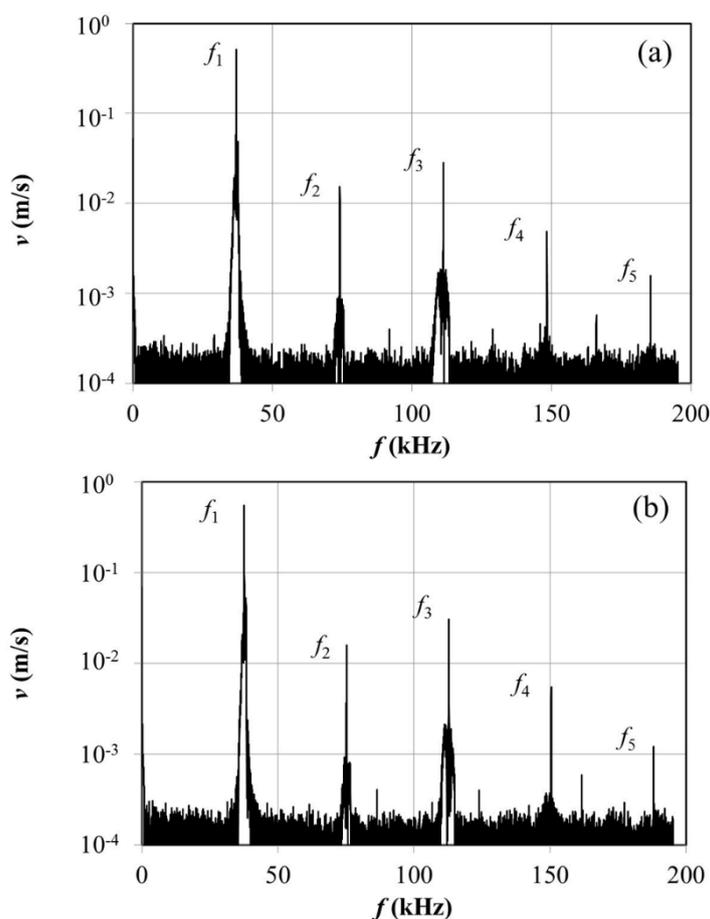


図 3-3 振動速度 v の周波数スペクトル
(a)全面電極構造, (b)部分電極構造

2, 3, 4, 5)

(3.1)

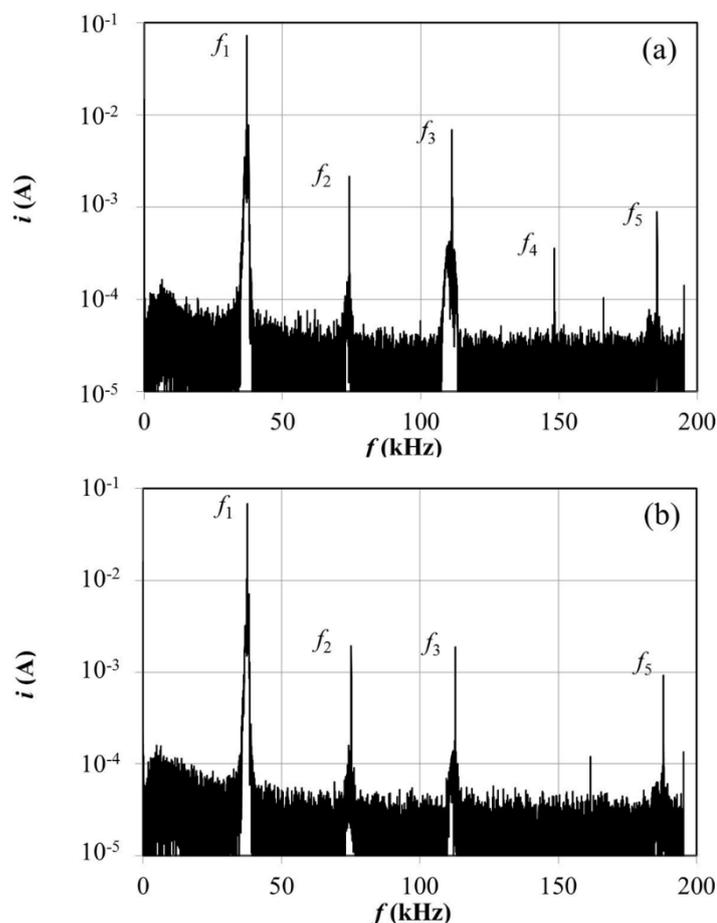


図 3-4 電流 i の周波数スペクトル
(a)全面電極構造, (b)部分電極構造

先の図 3-2 から明らかなように全面電極振動子では偶数次数の高次固有振動は抑圧されるため(a)における f_2 と f_4 は第 2 次及び第 4 次の固有振動を表すものではない。また部分電極構造振動子は第 2、3、4 次の固有振動が抑圧される電極構造であることから(b)における f_2, f_3, f_4 は第 2、3、4 次の固有振動に対応するものではない。(3.1)式の関係が成立することからこれらは非線形効果に基づく高調波と考えられ、 f_1 は基本調波、 $f_n(n=2, 3, 4, 5)$ は第 n 高調波に対応するものと理解される。

この様に測定された振動速度と電流の振動波形は非線形効果に基づく高調波成分を多数含むひずみ波であることから、測定生データを使用したのでは高精度な測定は期待できない。そこで高精度化を図るためバンドパスフィルタ処理を施して基本波成分を抽出し、その後でヒルベルト変換を施して振動速度と電流の瞬時振幅の算出を試みる。

図 3-5(a), (b), (c)はバンドパスフィルタ処理の効果を示すもので、(a)には処理前の瞬時の振動速度振幅 V_H (薄色) と処理後の瞬時の振動速度振幅 V_H' (濃色) が、また(b)には処理前の瞬時の電流振幅 I_H (薄色) と処理後の瞬時の電流振幅 I_H' (濃色)、(c)には処理前の基本調波周波数 f_H (薄色) と処理後の基本調波周波数 f_H' (濃色) が示されている。これらの図から明らかなようにバンドパスフィルタ処理を行うことで振動速度、電流、周波数の変動幅が大幅に低減される。従ってこの処理はハイパワー特性の測定精度向上に対して大変有効に働くことが明らかである。

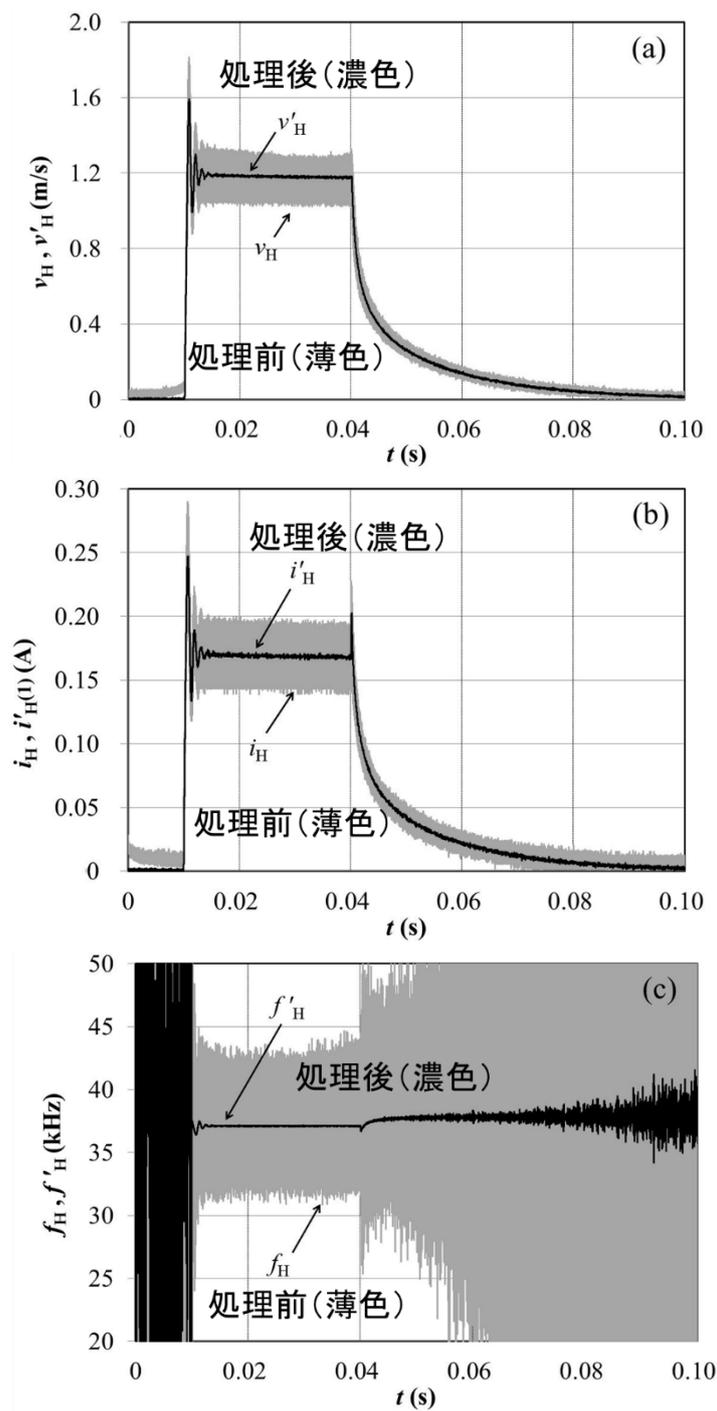


図 3-5 ヒルベルト変換後の振動速度、電流、周波数の振幅 v_H , i_H , f_H (薄い色) 及びバンドパスフィルタ処理後ヒルベルト変換した各振幅 v'_H , i'_H , f'_H (濃い色) (a)振動速度, (b)電流, (c)周波数

3.3 高次縦振動のスペクトル²⁾

3.3.1 実験方法

本節の実験では 3 種類の電極構造を有する圧電横効果で駆動される縦振動子が用いられた。図 3-6(a), (b), (c)はその電極構造を示すもので(a)は全面電極構造振動子、(b)は中央部で上部電極が分割された 2 分割電極構造振動子、(c)は上部電極が 3 等分された 3 分割電極振動子を示している。振動子材料、寸法、分極方向は先の図 3-1 に示された振動子と同じである。全面電極構造振動子は基本固有振動励振用振動子である。2 分割振動子は第 2 次固有振動励振用であり、一方の電極に交流電界を印加して振動を励振する。他方の電極は短絡して電流測定用に用いる。また 3 分割振動子は第 3 次固有振動励振用であり、中央電極は振動の励振用であり、他の電極は短絡して電流測定用に使用される。

振動は基本、第 2 次、第 3 次固有振動周波数にほぼ等しいバースト正弦波電圧 $e=50V_{op}$ を振動子に印加して励振された。バースト波の印加時間は 15ms である。

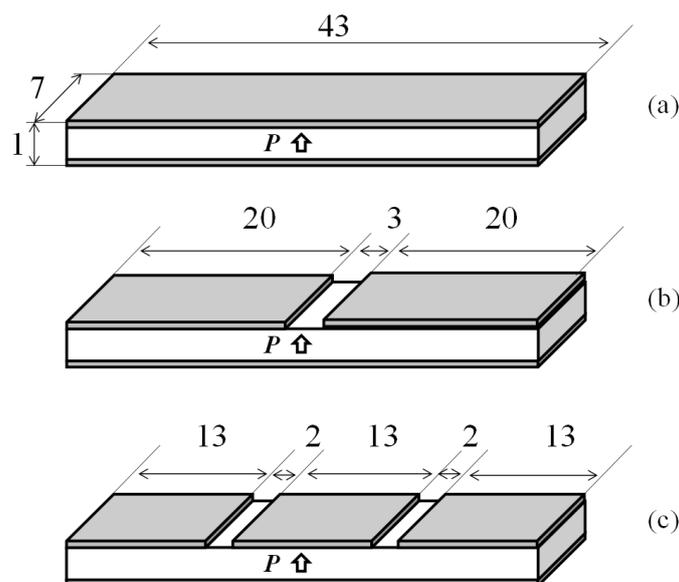


図 3-6 測定に用いた振動子

- (a)基本固有振動励振用, (b)第 2 次固有振動励振用,
(c)第 3 次固有振動励振用

3.3.2 低振動レベルにおけるアドミタンス特性

図 3-7(a), (b), (c)には定電圧法で測定された低振動レベル ($v<0.05m/s$, $T_m<1.5MPa$) におけるアドミタンス $|Y|$ の周波数 f 特性が示されている。(a)は基本固有振動励振用振動子に対する結果であり、(b)は第 2 次固有振動励振用振動

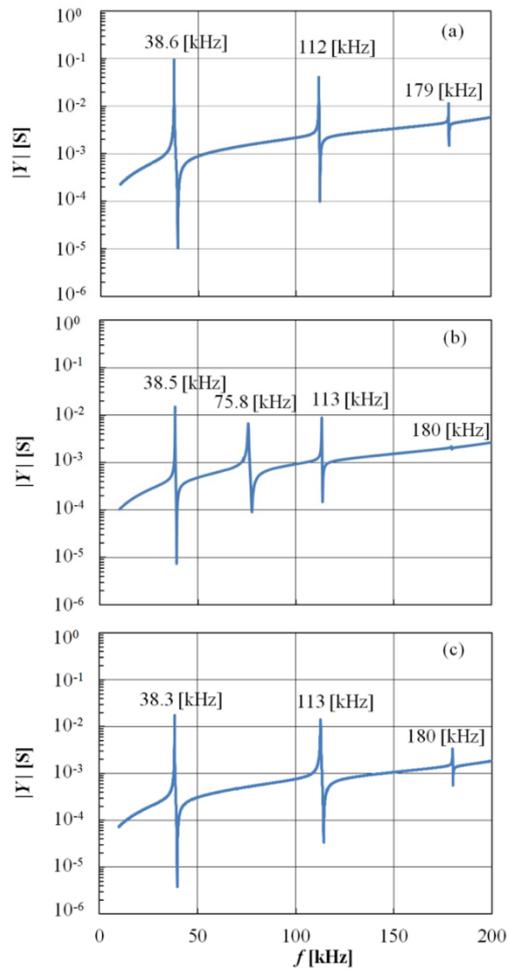


図 3-7 アドミッタンス $|Y|$ の周波数スペクトル (a)基本固有振動励振用振動子, (b)第 2 次固有振動励振用振動子, (c)第 3 次固有振動励振用振動子

子、(c) は第 3 次固有振動励振用振動子に対する結果である。また、表 3-1 には各次数の固有振動周波数の実測値が示されており、添え字 r_1, r_2, r_3, r_4, r_5 は固有振動次数を表している。

基本固有振動励振用振動子では偶数次数の固有振動の励振は電氣的に抑圧されるため、奇数次数の固有振動のみが観測されている。第 2 次固有振動励振用振動子に対しては基本固有振動励振用振動子では決して励振されることのない第 2 次の固有振動が確認される。また、第 3 次固有振動励振用振動子は基本固有振動励振用振動子の場合にほぼ等しい。従って基本固有振動励振用振動子を第 3 次固有振動励振用に流用することも可能ではあるが、振動励振用と検出用電極を分離する目的で第 3 次固有振動励振用にはこれを使用した。

なお、各振動子における高次振動の周波数は基本固有振動周波数の整数倍と比較して多少低めの値を示す傾向がみられる。これは振動次数が上がると長さ

方向振動の波長が幅方向振動の波長に接近し、その結果両者の結合振動の影響をより強く受けるためと推定される。

表 3-1 低振動レベルでの各スペクトル成分の周波数

振動子 周波数	基本固有振動 励振用	第2次固有振動 励振用	第3次固有振動 励振用
f_{r1} (kHz)	38.6	38.5	38.3
f_{r2} (kHz)		75.8 ($f_{r1} \times 2$)	
f_{r3} (kHz)	112 ($f_{r1} \times 2.9$)	113 ($f_{r1} \times 2.9$)	113 ($f_{r1} \times 3$)
f_{r4} (kHz)			
f_{r5} (kHz)	179 ($f_{r1} \times 4.6$)	180 ($f_{r1} \times 4.7$)	180 ($f_{r1} \times 4.7$)

3.3.3 周波数スペクトル

図 3-8(a), (b)には図 3-6(a)に示す振動子に基本固有振動周波数のバースト正弦波電圧 e を印加した場合の(a)振動速度 v と(b)電流 i の周波数スペクトルが示されている。図 3-9(a), (b)、図 3-10(a), (b)にはそれぞれ図 3-6(b)に示す振動子に第2次固有振動周波数を、また図 3-6(c)に示す振動子に第3次固有振動周波数のバースト正弦波電圧 e を印加した場合の振動速度 v と電流 i の周波数スペクトルが示されている。これらの固有振動周波数は表 3-1 と比較して多少低い値となっているが、これは表 3-1 が低振動レベル ($v < 0.05\text{m/s}$, $T_m < 1.5\text{MPa}$) での測定値であるのに対して、本データは $v > 0.4\text{m/s}$ 以上の高振動レベルでの測定値であることによる。

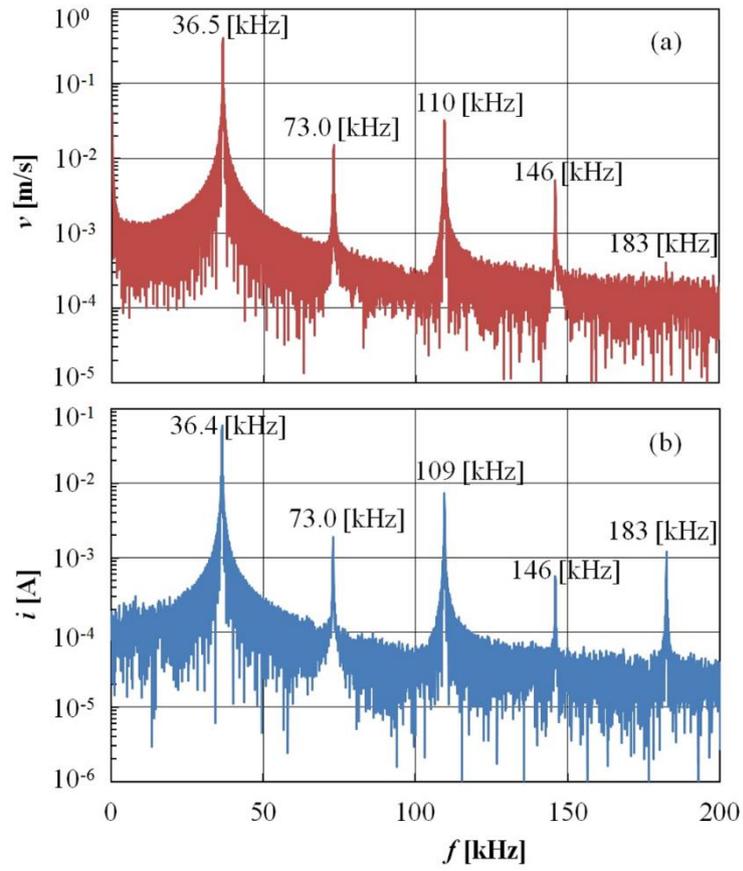


図 3-8 基本固有振動の周波数スペクトル
(a)振動速度 v , (b)電流 i

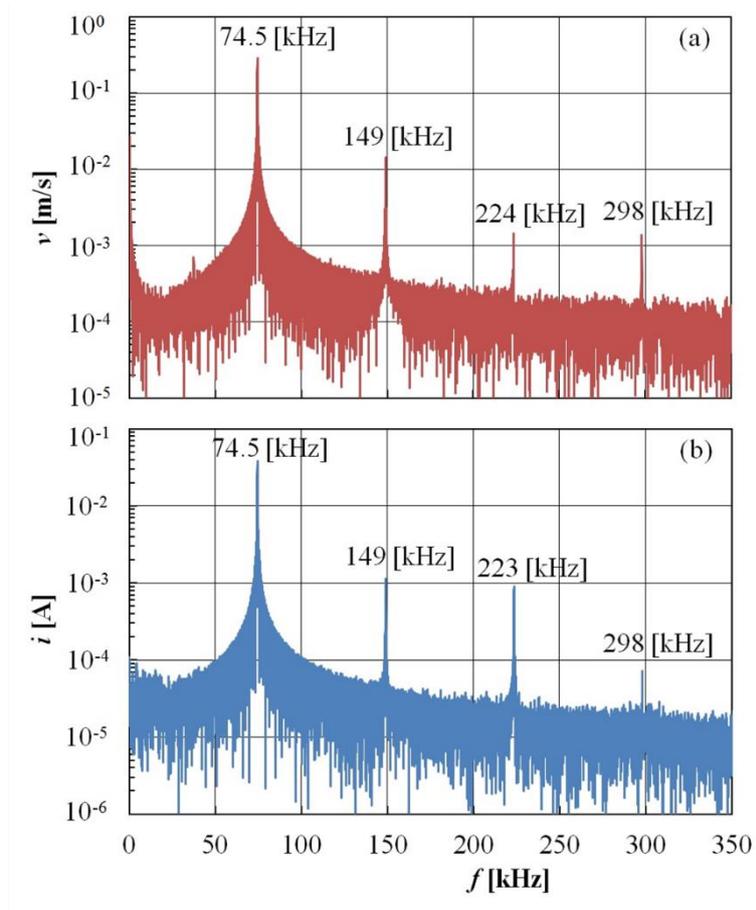


図 3-9 第 2 次固有振動の周波数スペクトル
 (a) 振動速度 v , (b) 電流 i

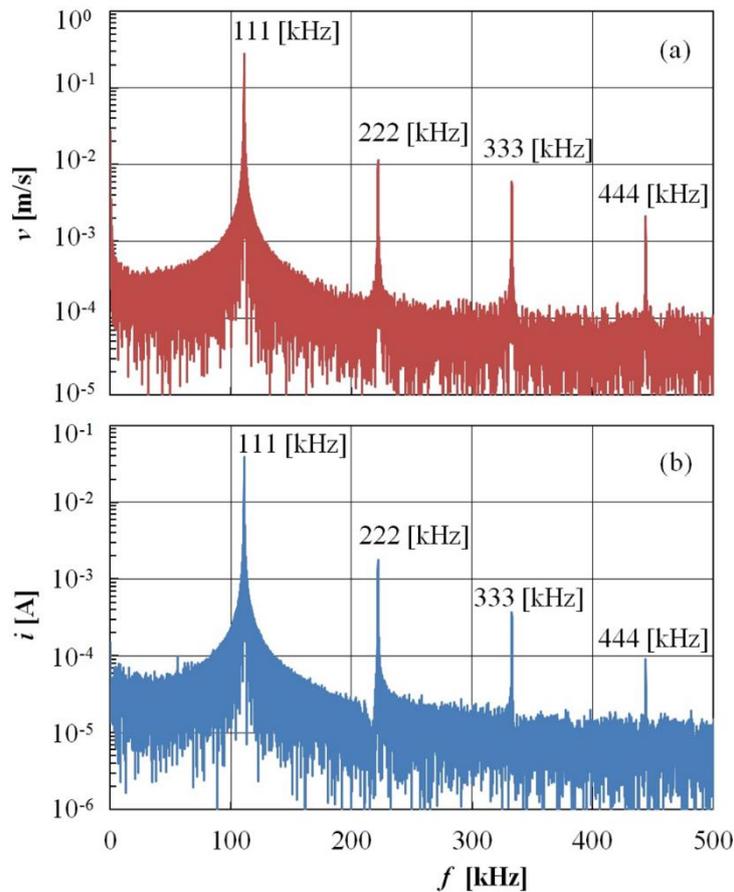


図 3-10 第 3 次固有振動の周波数スペクトル
(a)振動速度 v , (b)電流 i

また、表 3-2 には各スペクトル成分の周波数がまとめて示されている。いずれの場合に対しても電氣的に励振された固有振動を基本調波として、その周波数 f_{h1} の整数倍の周波数成分 $f_{h2}, f_{h3}, f_{h4}, f_{h5}$ ($h1, h2, h3, h4, h5$ は高調波の次数を表す。) を有する高調波が重畳されているものと考えられる。即ち基本固有振動周波数の振動を励振した場合には基本固有振動周波数の整数倍の周波数成分を有する高調波が重畳され、第 2 次固有振動周波数の振動を励振すると第 2 次固有振動周波数の整数倍の高調波が重畳される。そして第 3 次固有振動周波数の振動を励振すると第 3 次固有振動周波数の整数倍の高調波が重畳される。この結果は高レベル振動が励振されると、励振された振動の整数倍の周波数成分を持つ高調波が弾性的非線形効果によって生じることを示唆している。

表 3-2 振動速度 v と電流 i の周波数スペクトル

振動子 周波数	基本固有振動 励振用		第2次固有振動 励振用		第3次固有振動 励振用	
	v	i	v	i	v	i
f_{h1} (kHz)	36.5	36.4	74.5	74.5	111	111
f_{h2} (kHz)	73.0 $(f_{h1} \times 2)$	73.0	149 $(f_{h1} \times 2)$	149	222 $(f_{h1} \times 2)$	222
f_{h3} (kHz)	110 $(f_{h1} \times 3)$	109	224 $(f_{h1} \times 3)$	223	333 $(f_{h1} \times 3)$	333
f_{h4} (kHz)	146 $(f_{h1} \times 4)$	146	298 $(f_{h1} \times 4)$	298	444 $(f_{h1} \times 4)$	444
f_{h5} (kHz)	183 $(f_{h1} \times 5)$	183				

3.4 径方向基本拵がり振動のスペクトル

3.4.1 実験方法

ここでの実験に使用する円板振動子を図 3-11 に示す。寸法は直径 $2a=25\text{mm}$ 、厚さ $t=1\text{mm}$ で上下面には銀電極膜が焼き付けられており、厚さ方向に分極 P 処理されている。振動子材料にはハード系 PZT セラミックス C21 材（表 1-3）が使用されている。振動励振用バースト正弦波の電圧は $e=50V_{op}$ 、周波数は $f=85.5\text{kHz}$ 、電圧印加時間は 10ms である。

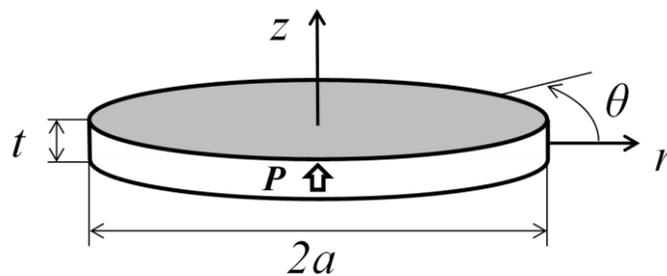


図 3-11 測定に用いた円板振動子
 材料:ハード系 PZT(C21),
 寸法:直径 $2a=25\text{mm}$, 厚み $t=1\text{mm}$

3.4.2 低振動レベルにおけるアドミッタンス特性

図 3-12 には定電圧法で測定された低振動レベル ($v < 0.05 \text{m/s}$, $T_m < 1.5 \text{MPa}$) におけるアドミッタンス $|Y|$ と位相角 θ の周波数 f 特性が示されている。 $|Y|$ の極大値は固有振動周波数に対応しており、低周波側から順に基本固有振動周波数 f_{r1} , 第 2 次固有振動周波数 f_{r2} , 第 3 次固有振動周波数 f_{r3} , 第 4 次固有振動周波数 f_{r4} , 第 5 次固有振動周波数 f_{r5} を表している。

円板の拡がり振動の第 n 次固有周波数 f_{rn} ($n=1, 2, 3, 4, 5$) の理論式は次式で表される³⁾。

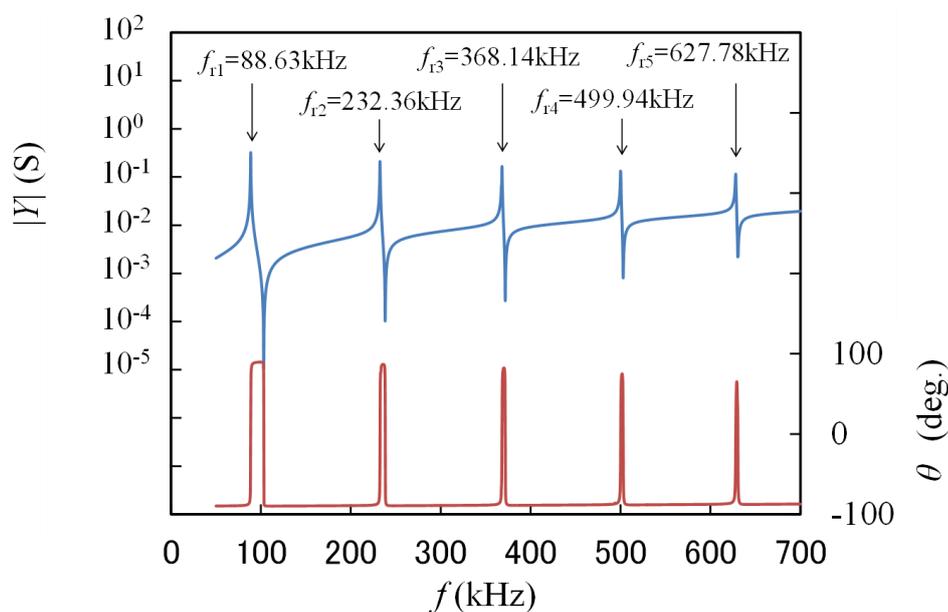


図 3-12 低振動レベルでのアドミッタンス $|Y|$ と位相角 θ の周波数特性

$$f_{rn} = \frac{\alpha_n}{2\pi a} \sqrt{\frac{1}{\rho S_{r1}^E (1-\sigma^2)}}$$

(3.2)

ここで α_n は周波数定数、 σ はポアソン比を表しており、 $\sigma=0.3$ とすれば $\alpha_1=2.05$, $\alpha_2=5.39$, $\alpha_3=8.57$, $\alpha_4=11.73$ である。従って円板の高次固有振動周波数は縦振動子のように基本固有振動周波数の整数倍とはならない。因みに第 2, 3, 4 次固有振動の周波数 f_{r2} , f_{r3} , f_{r4} と基本固有振動周波数 f_{r1} との間には $f_{r2}=2.64f_{r1}$, $f_{r3}=4.19f_{r1}$, $f_{r4}=5.72f_{r1}$ の関係が成立する。表 3-3 には f_{r1} , f_{r2} , f_{r3} , f_{r4} , f_{r5} の実測値がまとめて示されている。そして f_{r1} と f_{r2} , f_{r3} , f_{r4} との間には $f_{r2}=2.62f_{r1}$, $f_{r3}=4.15f_{r1}$, $f_{r4}=5.64f_{r1}$ の関係があり、理論から導かれる関係とほぼ一致している。

表 3-3 円板の径方向拡がり振動の固有振動周波数

振動次数	n=1	n=2	n=3	n=4	n=5
固有振動周波数					
f_m (kHz)	$f_{r1}=88.63$	$f_{r2}=232.36$ $=2.62f_{r1}$	$f_{r3}=368.14$ $=4.15f_{r1}$	$f_{r4}=499.94$ $=5.64f_{r1}$	$f_{r5}=627.78$ $=7.08f_{r1}$

3.4.3 周波数スペクトル

図 3-13(a), (b)には高振動レベルにおける(a)振動速度 v と(b)電流 i との周波数スペクトルが示されている。各スペクトル成分を低周波数側から $f_{h1}, f_{h2}, f_{h3}, f_{h4}, f_{h5}$ とし、その周波数をまとめて表 3-4 に示す。これらの中には(3.1)式と同形の次式

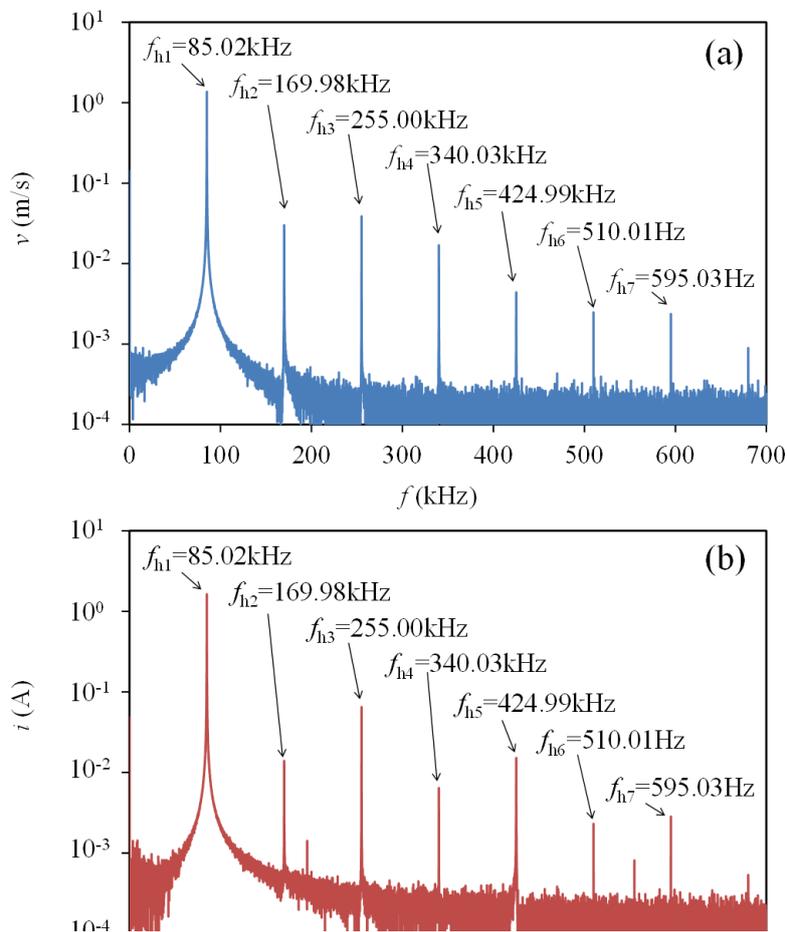


図 3-13 高振動レベルで計測した周波数スペクトル

(a)振動速度 v , (b)電流 i

図3-13 高振動レベルで計測した周波数
スペクトル (a) 振動速度 v , (b)電流 i

の関係が成立している。

$$f_{hn} = n f_{h1} \quad (n = 2, 3, 4, 5) \quad (3.3)$$

このような関係の成立は $f_{h2}, f_{h3}, f_{h4}, f_{h5}$ が非線形効果により発生した高調波であることを示唆している。そして $f_{r2} \neq f_{h2}, f_{r3} \neq f_{h3}, f_{r4} \neq f_{h4}, f_{r5} \neq f_{h5}$ であることは高調波と高次固有振動とが全く別種の振動であることを意味する。即ち高調波は強制的に励振された固有振動の整数倍の周波数成分を持つ振動であり、これらは弾性的

表3-4 円板の径方向拡がり基本固有振動の高調波周波数

表 3-4 円板の径方向拡がり基本固有振動の高調波周波数

高調波周波数 f_{hn} (kHz)	$f_{h1}=84.96$	$f_{h2}=170.04$ $=2.00f_{h1}$	$f_{h3}=255.00$ $=3.00f_{h1}$	$f_{h4}=340.00$ $=4.00f_{h1}$	$f_{h5}=425.05$ $=5.00f_{h1}$
--------------------------	----------------	----------------------------------	----------------------------------	----------------------------------	----------------------------------

非線形効果に由来するものと理解される。

3.5 結言

電氣的過渡応答法を用いて高レベル振動を励振し、振動速度と電流の周波数スペクトルが実験的に解析された。縦振動子に基本固有振動を強制励振した場合には、その整数倍の周波数成分を有する振動が励振された振動に重畳されていることが明らかにされた。また、第2次固有振動、第3次固有振動を強制励振した場合にはそれぞれの周波数の整数倍の周波数成分を有する振動が励振された強制振動に重畳されていることが明らかにされた。重畳されている振動の周波数は励振された振動の周波数の丁度整数倍に当たること、またこれらの振動には電氣的には決して励振されることのない振動成分も多数含まれることから、弾性的非線形効果に由来した高調波であると結論された。

縦振動では高次固有振動周波数が基本振動周波数の整数倍に当たることから、高調波と高次振動との区別が困難である。そこで高次固有振動周波数が基本振動の整数倍ではない円板の径方向拡がり振動に関しても同様のスペクトル解析が行われた。その結果強制的に励振された固有振動に、その整数倍の周波数成分を有する多数の振動が重畳されることが明らかとなった。

上記の結果から圧電振動子に高振動レベルの固有振動を強制的に励振すれば、励振された振動の整数倍の周波数成分を有する高調波が弾性的非線形効果により誘起されると結論された。

参考文献

- 1) 梅田幹雄, 早野修二, 高橋貞行, 日本音響学会誌, **72**, 5 (2016) 228.
- 2) 梅田幹雄, 早野修二, 高橋貞行, 日本音響学会誌, **72**, 11(2016) 678.
- 3) 富川義朗 編著:「超音波エレクトロニクス振動論」(朝倉書店, 東京, 1998 年)

第4章 高調波の理論的検証

4.1 緒言

圧電横効果縦振動子に高振動レベルの固有振動を強制励振すると、その振動波形はひずみ波となり基本振動以外にその整数倍の周波数成分を有する多数の振動が含まれることが見出された。そして第3章ではこれら振動が実験的に検討され、弾性的非線形効果によって生じた高調波であることが明らかにされた。本章ではこの高調波に関して理論的側面から検討を加える^{1,2)}。

4.2 電極構造と固有振動

一般に圧電振動子では、その固有振動周波数の交流電圧を振動子に印加して振動が励振される。しかし固有振動周波数の交流電圧を印加すれば必ずその周波数の固有振動が励振されるとは限らない。振動励振の可否は振動子の電極構造にも依存しており、振動によって発生する電極板上の正負の電荷が相殺される電極構造の振動子では振動の発生は抑圧される。本節ではまず電極構造と固有振動との関係を理論的に論じる。

図4-1(a), (b), (c)には本章の理論検討に用いる圧電横効果縦振動子の電極構造を示している。振動子の各部寸法は長さ l 、幅 b 、厚さ t で厚さ方向に分極 P されている。(a)は上下面全面に電極膜が施された基本固有振動励振用振動子、(b)

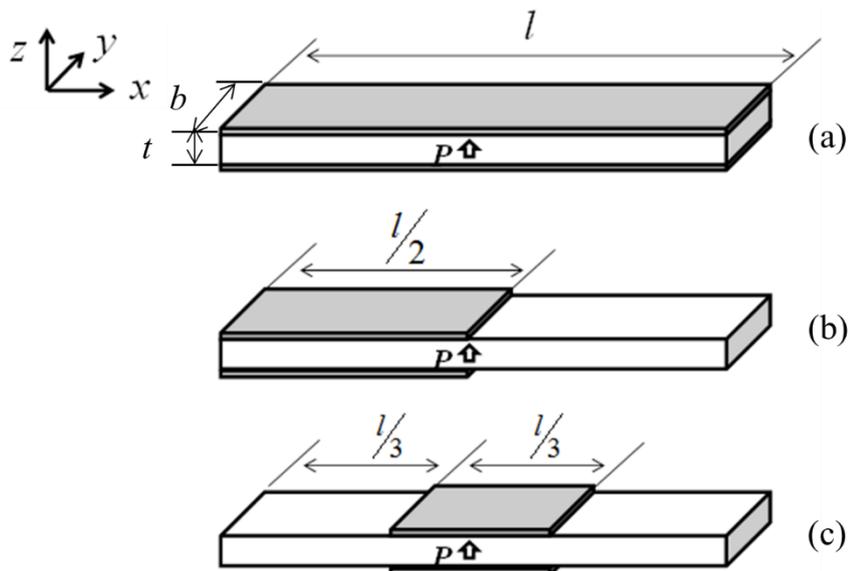


図4-1 理論解析用振動子モデル

図4-1 理論解析用振動子モデル

(a)基本固有振動励振用, (b)第2次固有振動励振用,
(c)第3次固有振動励振用

は $l/2$ 長の電極を有する第 2 次固有振動励振用振動子、(c)は中央部に $l/3$ 長の電極を有する第 3 次固有振動励振用振動子である。

振動子の長さ方向縦振動の固有振動次数を $n(=1, 2, 3, \dots)$ とすると振動変位 u_n はその振幅を u_0 として次式で表される³⁾。

$$u_n = -u_0 \cos\left(\frac{n\pi}{\ell}x\right) \sin(n\omega_0 t + \varphi)$$

(4.1)

ここで ω_0 は基本固有振動周波数、 φ は初期位相である。

従って各次数に対するひずみ $S_{1,n}$ と電束密度 $D_{3,n}$ は次式で表される。

$$S_{1,n} = \frac{\partial u_n}{\partial x} = u_0 \left(\frac{n\pi}{\ell}\right) \sin\left(\frac{n\pi}{\ell}x\right) \sin(n\omega_0 t + \varphi)$$

(4.2)

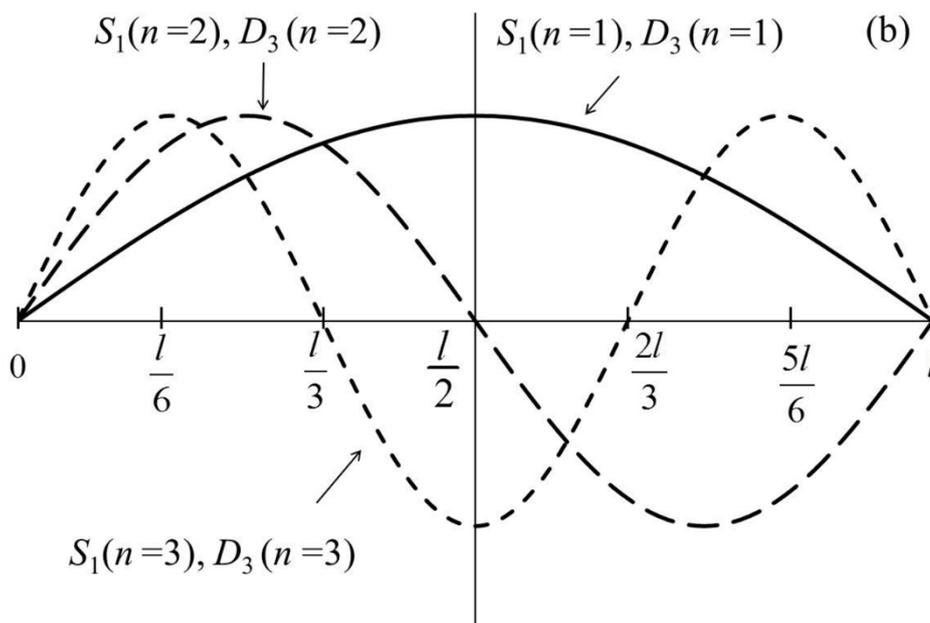


図4-2 各固有振動励振時のひずみ $S_1(n)$ と電束密度 $D_3(n)$ の分布 (縦軸は最大値で規格化)

$$D_{3,n} = \left(\frac{d_{31}}{s_{11}^E}\right) S_{1,n} = u_0 \left(\frac{n\pi}{\ell}\right) \left(\frac{d_{31}}{s_{11}^E}\right) \sin\left(\frac{n\pi}{\ell}x\right) \sin(n\omega_0 t + \varphi)$$

(4.3)

図 4-2 には $S_{1,n}$ と $D_{3,n}$ の x 軸方向分布がその最大値で規格化して示されている。

振動で電極板上に生じる電荷 Q_n は電束密度を電極面積で積分することで求められ、次式で表される⁴⁾。

$$Q_n = b \int D_{3,n} dx$$

(4.4)

(4.4)式を図 4-1(a)の電極構造振動子(電極長 ℓ)に適用すれば基本、第 2 次、第 3 次固有振動に対する電荷 Q_1, Q_2, Q_3 は次式のように計算される。

$$Q_1 = 2u_0 b \left(\frac{d_{31}}{s_{11}^E} \right) \sin(\omega_0 t + \varphi)$$

(4.5)

$$Q_2 = 0$$

(4.6)

$$Q_3 = 2u_0 b \left(\frac{d_{31}}{s_{11}^E} \right) \sin(3\omega_0 t + \varphi)$$

(4.7)

ここで $Q_2=0$ は電極上で正負の電荷が相殺されることを意味しており、この(a)の全面に電極を設けた構造の振動子では第 2 次固有振動が励振されないことになる。

同様にして図 4-1(b)の半面に電極を設けた構造の振動子(電極長 $\ell/2$)では

$$Q_1 = u_0 b \left(\frac{d_{31}}{s_{11}^E} \right) \sin(\omega_0 t + \varphi)$$

(4.8)

$$Q_2 = 2u_0 b \left(\frac{d_{31}}{s_{11}^E} \right) \sin(2\omega_0 t + \varphi)$$

(4.9)

$$Q_3 = u_0 b \left(\frac{d_{31}}{s_{11}^E} \right) \sin(3\omega_0 t + \varphi)$$

(4.10)

となり、この電極構造振動子では基本、第 2 次及び第 3 次の固有振動がすべて励振可能である。

また図 4-1(c)の中央部のみに電極を設けた構造の振動子(電極長 $\ell/3$)では

$$Q_1 = u_0 b \left(\frac{d_{31}}{s_{11}^E} \right) \sin(\omega_0 t + \varphi)$$

(4.11)

$$Q_2 = 0$$

(4.12)

$$Q_3 = 2u_0 b \left(\frac{d_{31}}{s_{11}^E} \right) \sin(3\omega_0 t + \varphi)$$

(4.13)

となり、第2次固有振動は励振されない。

先の図3-1(b)に示した振動子（電極長 $2\ell/3$ ）に対しては

$$Q_1 = 1.72u_0b \left(\frac{d_{31}^E}{s_{11}^E} \right) \sin(\omega_0 t + \varphi) \quad (4.14)$$

$$Q_2 = 0 \quad (4.15)$$

$$Q_3 = 0 \quad (4.16)$$

となり、第2次と第3次固有振動の励振は抑圧される。

以上の結果は第3章の図3-2(a), (b)、3-7(a), (b), (c)で示した実験結果を理論的に裏付けるものである。

4.3 非線形効果を考慮した圧電基本式

電気・力学結合系で独立変数として応力 T と電界 E をとるとき、これに対する熱力学関数はギブスの自由エネルギー G であり、 G は

$$G = T_j - d_{mi} T_i E_m - \frac{1}{2} \varepsilon_{mn}^T E_m E_n - \frac{1}{3} s_{ijk}^E T_i T_j T_k - d_{mij} T_i T_j E_m - R_{mni} T_i E_m E_n - \frac{1}{3} \varepsilon_{mnp}^T E_m E_n E_p - \frac{1}{4} s_{ijkl}^E T_i T_j T_k T_l - \frac{1}{4} \varepsilon_{mnpq}^T E_m E_n E_p E_q \quad (4.17)$$

となる。そして(4.17)式を微分することによって次の圧電関係式が導かれる。

$$S_i = s_{ij}^E T_j + d_{mi} E_m + s_{ijk}^E T_j T_k + 2d_{mij} T_j E_m + R_{mni} E_m E_n + s_{ijkl}^E T_j T_k \quad (4.18)$$

$$D_m = d_{mi} T_i + \varepsilon_{mn}^T E_n + d_{mij} T_i T_j + 2R_{mni} T_i E_n + \varepsilon_{mnp}^T E_n E_p + \varepsilon_{mnpq}^T E_n E_p E_q \quad (4.19)$$

ここで $s_{ij}^E, d_{mi}, \varepsilon_{mn}^T$ はそれぞれ2次（線形）の弾性率、圧電率、誘電率である。

$s_{ijk}^E, d_{mij}, R_{mi}, \varepsilon_{mnp}^T$ は3次の弾性率、圧電率、電歪率、誘電率であり、また $s_{ijkl}^E, \varepsilon_{mnpq}^T$ は4次の弾性率と誘電率である。 S, T, D はそれぞれひずみ、応力、電束密度を表す。

図4-1(a), (b), (c)に示した横効果縦振動子の電極間短絡状態での自由振動を想定する。この場合の力学的、電気的条件は

$$\begin{aligned}
T_2 = T_3 = T_4 = T_5 = T_6 = 0 \\
E_1 = E_2 = E_3 = 0
\end{aligned} \tag{4.20}$$

共振点付近での非線形は弾性的なものであるから式(4.18), (4.19)は

$$\begin{aligned}
S_1 &\cong s_{11}^E T_1 + s_{111}^E T_1^2 + s_{1111}^E T_1^3 \\
D_3 &\cong d_{31} T_1 + d_{311} T_1^2 + d_{3111} T_1^3
\end{aligned} \tag{4.21}$$

で近似される^{5,6)}。以下ではこの式に基づいて解析を進める。

4.4 非線形振動と高調波

4.4.1 基本固有振動励振

基本固有振動励振用振動子（電極長 ℓ , 図 4-1(a)）に周波数 $\omega=\omega_0$ の交流電圧を印加して振動を励振した場合に発生する応力 T_1 を次式の線形式で近似できるものと仮定する。

$$T_1 = T_0 \sin\left(\frac{\pi}{\ell} x\right) \sin(\omega_0 t)$$

(4.22)

ここで T_0 は応力の振幅を表す。(4.22)式を(4.21)式に代入して整理するとひずみ S_1 と電束密度 D_1 の直流成分を除く最初の3つの調波は次式で表される。

なお h_n ($n=1, 2, 3$)は調波の次数を示すものとする。

$$\begin{aligned}
S_{1,h1} &= \left\{ s_{11}^E + \frac{3}{4} s_{1111}^E T_0^2 \sin^2\left(\frac{\pi}{\ell} x\right) + \dots \right\} T_0 \sin\left(\frac{\pi}{\ell} x\right) \sin(\omega_0 t)
\end{aligned} \tag{4.23}$$

$$\begin{aligned}
S_{1,h2} &= \left\{ \frac{1}{2} s_{111}^E T_0 \sin\left(\frac{\pi}{\ell} x\right) + \dots \right\} T_0 \sin\left(\frac{\pi}{\ell} x\right) \sin\left(2\omega_0 t - \frac{\pi}{2}\right)
\end{aligned} \tag{4.24}$$

$$\begin{aligned}
S_{1,h3} &= \left\{ \frac{1}{4} s_{1111}^E T_0^2 \sin^2\left(\frac{\pi}{\ell} x\right) + \dots \right\} T_0 \sin\left(\frac{\pi}{\ell} x\right) \sin(3\omega_0 t - \pi)
\end{aligned} \tag{4.25}$$

$$\begin{aligned}
D_{3,h1} &= \left\{ d_{31} + \frac{3}{4} d_{3111} T_0^2 \sin^2\left(\frac{\pi}{\ell} x\right) + \dots \right\} T_0 \sin\left(\frac{\pi}{\ell} x\right) \sin(\omega_0 t)
\end{aligned} \tag{4.26}$$

$$D_{3,h2} = \left\{ \frac{1}{2} d_{3111} T_0 \sin \left(\frac{\pi}{\ell} x \right) + \dots \right\} T_0 \sin \left(\frac{\pi}{\ell} x \right) \sin \left(2\omega_0 t - \frac{\pi}{2} \right) \quad (4.27)$$

$$D_{3,h3} = \left\{ \frac{1}{4} d_{3111} T_0^2 \sin^2 \left(\frac{\pi}{\ell} x \right) + \dots \right\} T_0 \sin \left(\frac{\pi}{\ell} x \right) \sin(3\omega_0 t - \pi) \quad (4.28)$$

図 4-3 には最大振幅で規格化された $S_{1,hn}, D_{3,hn} (n = 1, 2, 3)$ の x 軸方向の振幅分布が示されている。図 4-2 の固有振動に対する分布とは明らかに異なっており、高調波に対しては偶数次数も存在できることが定性的に理解できる。

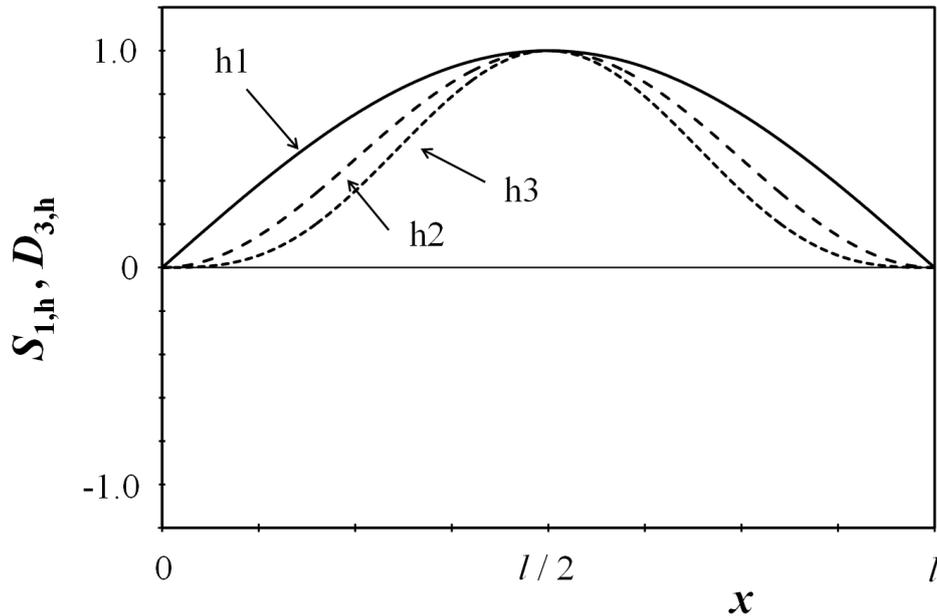


図 4-3 基本波固有振動($n=1$)励振時の各調波のひずみ $S_{1,h}$ 及び電束密度 $D_{3,h}$ の分布

実験結果と照合する目的で各調波に対する振動速度 v_{hn} 及び電流 $i_{hn} (n=1, 2, 3)$ を計算すると以下ようになる。

$$v_{h1} = \frac{d}{dt} \int S_{1,h1} dx = - \left(\frac{\ell}{\pi} \right) s_{111}^E T_0 \omega_0 \cos \left(\frac{\pi}{\ell} x \right) \cos(\omega_0 t) \quad (4.29)$$

$$V_{h2} = \frac{d}{dt} \int S_{1,2h} dx = - \left(\frac{\ell}{4\pi} \right) s_{111}^E T_0^2 \omega_0 \left\{ \sin \left(\frac{2\pi}{\ell} x \right) - \frac{2\pi}{\ell} x + \pi \right\} \times \cos \left(2\omega_0 t - \frac{\pi}{2} \right)$$

(4.30)

$$V_{h3} = \frac{d}{dt} \int S_{1,h3} dx = - \left(\frac{9\ell}{16\pi} \right) s_{1111}^E T_0^3 \omega_0 \left\{ \cos\left(\frac{\pi}{\ell} x\right) - \frac{1}{9} \cos\left(\frac{3\pi}{\ell} x\right) \right\} \\ \times \cos(3\omega_0 t - \pi)$$

(4.31)

$$i_{h1} = \frac{d}{dt} \left\{ b \int_0^\ell D_{3,h1} dx \right\} = \left(\frac{2\ell}{\pi} \right) b d_{31} T_0 \omega_0 \cos(\omega_0 t)$$

(4.32)

$$i_{h2} = \frac{d}{dt} \left\{ b \int_0^\ell D_{3,h2} dx \right\} = \left(\frac{\ell}{2} \right) b d_{311} T_0^2 \omega_0 \cos\left(2\omega_0 t - \frac{\pi}{2}\right)$$

(4.33)

$$i_{h3} = \frac{d}{dt} \left\{ b \int_0^\ell D_{3,h3} dx \right\} = \left(\frac{\ell}{\pi} \right) b d_{3111} T_0^3 \omega_0 \cos(3\omega_0 t - \pi)$$

(4.34)

振動子端部における振動速度 $v_{hn}(x=0, \ell)$ は

$$v_{h1}(x=0, \ell) = - \left(\frac{\ell}{\pi} \right) s_{11}^E T_0 \omega_0 \cos(\omega_0 t)$$

(4.35)

$$v_{h2}(x=0, \ell) = - \left(\frac{\ell}{4} \right) s_{111}^E T_0^2 \omega_0 \cos\left(2\omega_0 t - \frac{\pi}{2}\right)$$

(4.36)

$$v_{h3}(x=0, \ell) = - \left(\frac{\ell}{2\pi} \right) s_{1111}^E T_0^3 \omega_0 \cos(3\omega_0 t - \pi)$$

(4.37)

となる。

以上の結果は圧電振動子に基本固有振動を励振すると、弾性的非線形効果によって基本調波の整数倍の周波数成分を有する振動、即ち高調波の励振されることを裏づけている。

4.4.2 第2次固有振動励振

第2次固有振動励振用振動子（電極長 $\ell/2$, 図 4-1(b)）に周波数 $\omega=2\omega_0$ の交流電圧を印加して振動を励振した場合に発生する応力を次式の線形式で近似できるものと仮定する。

$$T_1 = T_0 \sin\left(\frac{2\pi}{\ell} x\right) \sin(2\omega_0 t)$$

(4.38)

ここで T_0 は応力の振幅を表す。(4.38)式を (4.21) 式に代入して整理すると直流成分を除く最初の3つの調波のひずみ $S_{1,hn}$, と電束密度 $D_{3,hn}$ ($n=1, 2, 3$)は次式で表される。なお、ここでは第2項以下は省略されている。

$$S_{1,h1} = s_{11}^E T_0 \sin\left(\frac{2\pi}{\ell} x\right) \sin(2\omega_0 t)$$

(4.39)

$$S_{1,h2} = \left(\frac{1}{2}\right) s_{111}^E T_0^2 \sin^2\left(\frac{2\pi}{\ell} x\right) \sin\left(4\omega_0 t - \frac{\pi}{2}\right)$$

(4.40)

$$S_{1,h3} = \left(\frac{1}{4}\right) s_{1111}^E T_0^3 \sin^3\left(\frac{2\pi}{\ell} x\right) \sin(6\omega_0 t - \pi)$$

(4.41)

$$D_{3,h1} = d_{31} T_0 \sin\left(\frac{2\pi}{\ell} x\right) \sin(2\omega_0 t)$$

(4.42)

$$D_{3,h2} = \left(\frac{1}{2}\right) d_{311} T_0^2 \sin^2\left(\frac{2\pi}{\ell} x\right) \sin\left(4\omega_0 t - \frac{\pi}{2}\right)$$

(4.43)

$$D_{3,h3} = \left(\frac{1}{4}\right) d_{3111} T_0^3 \sin^3\left(\frac{2\pi}{\ell} x\right) \sin(6\omega_0 t - \pi)$$

(4.44)

図 4-4 には最大振幅で規格化された $S_{1,hn}, D_{3,hn} (n = 1, 2, 3)$ の x 軸方向の振幅分布が示されている。この振動子の電極長は $l/2$ であるから、図 4-3 の場合と全く同様に基本調波の整数倍の周波数成分を有する高調波の存在することが定性的に理解される。

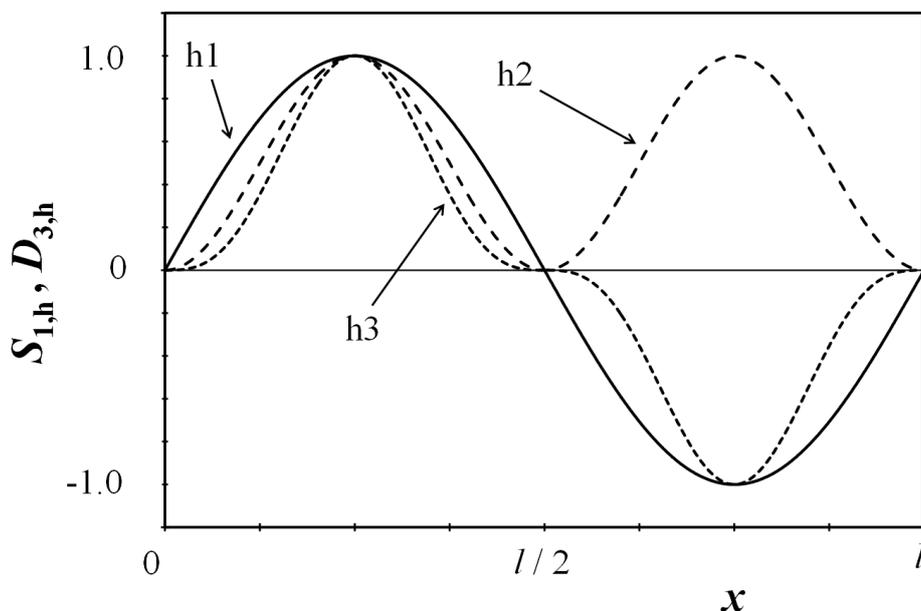


図 4-4 第 2 次固有振動($n=2$)励振時の各調波のひずみ $S_{1,h}$ 及び電束密度 $D_{3,h}$ の分布

各調波の振動速度 v_{hn} 及び電流 $i_{hn} (n=1, 2, 3)$ は以下のように計算される。

$$v_{h1} = \frac{d}{dt} \int S_{1,h1} dx = -\left(\frac{\ell}{\pi}\right) s_{111}^E T_0 \omega_0 \cos\left(\frac{2\pi}{\ell} x\right) \cos(2\omega_0 t) \quad (4.45)$$

$$v_{h2} = \frac{d}{dt} \int S_{1,2h} dx = -\left(\frac{\ell}{4\pi}\right) s_{111}^E T_0^2 \omega_0 \left\{ \sin\left(\frac{4\pi}{\ell} x\right) - \frac{4\pi}{\ell} x + 2\pi \right\} \times \cos\left(4\omega_0 t - \frac{\pi}{2}\right) \quad (4.46)$$

$$v_{h3} = \frac{d}{dt} \int S_{1,h3} dx = -\left(\frac{9\ell}{16\pi}\right) s_{111}^E T_0^3 \omega_0 \left\{ \cos\left(\frac{2\pi}{\ell} x\right) - \frac{1}{9} \cos\left(\frac{6\pi}{\ell} x\right) \right\} \times \cos(6\omega_0 t - \pi) \quad (4.47)$$

$$i_{h1} = \frac{d}{dt} \left\{ b \int_0^\ell D_{3,h1} dx \right\} = \left(\frac{2\ell}{\pi}\right) b d_{31} T_0 \omega_0 \cos(2\omega_0 t)$$

(4.48)

$$i_{h2} = \frac{d}{dt} \left\{ b \int_0^\ell D_{3,h2} dx \right\} = \left(\frac{\ell}{2} \right) b d_{311} T_0^2 \omega_0 \cos \left(4\omega_0 t - \frac{\pi}{2} \right)$$

(4.49)

$$i_{h3} = \frac{d}{dt} \left\{ b \int_0^\ell D_{3,h3} dx \right\} = \left(\frac{\ell}{\pi} \right) b d_{3111} T_0^3 \omega_0 \cos(6\omega_0 t - \pi)$$

(4.50)

振動子端部における振動速度 $v_h(x=0, \ell)$ は

$$v_{h1}(x=0, \ell) = - \left(\frac{\ell}{\pi} \right) s_{11}^E T_0 \omega_0 \cos(2\omega_0 t)$$

(4.51)

$$v_{h2}(x=0, \ell) = - \left(\frac{\ell}{2} \right) s_{111}^E T_0^2 \omega_0 \cos \left(4\omega_0 t - \frac{\pi}{2} \right)$$

(4.52)

$$v_{h3}(x=0, \ell) = - \left(\frac{\ell}{2\pi} \right) s_{1111}^E T_0^3 \omega_0 \cos(6\omega_0 t - \pi)$$

(4.53)

となる。

以上の結果は、振動子に第 2 次固有振動を励振すると弾性的非線形効果で第 2 次固有振動を基本調波として、その整数倍の周波数成分を有する高調波が発生することを裏付けている。

4.4.3 第 3 次固有振動励振

第 3 次固有振動励振用振動子 (図 4-1(c)) に周波数 $\omega=3\omega_0$ の交流電圧を印加して振動を励振した場合に発生する応力を次式の線形式で近似できるものと仮定する。

$$T_1 = T_0 \sin \left(\frac{3\pi}{\ell} x \right) \sin(3\omega_0 t)$$

(4.54)

ここで T_0 は応力の振幅を表す。(4.54)式を(4.21)式に代入して整理すると直流成分を除く最初の 3 つの調波のひずみ $S_{1,hn}$ と電束密度 $D_{3,hn}$ ($n=1, 2, 3$) は次式で表される。なお、ここでは第 2 項以下は省略されている。

$$S_{1,h1} = s_{11}^E T_0 \sin \left(\frac{3\pi}{\ell} x \right) \sin(3\omega_0 t)$$

(4.55)

$$S_{1,h2} = \left(\frac{1}{2}\right) s_{111}^E T_0^2 \sin^2\left(\frac{3\pi}{\ell}x\right) \sin\left(6\omega_0 t - \frac{\pi}{2}\right) \quad (4.56)$$

$$S_{1,h3} = \left(\frac{1}{4}\right) s_{1111}^E T_0^3 \sin^3\left(\frac{3\pi}{\ell}x\right) \sin(9\omega_0 t - \pi) \quad (4.57)$$

$$D_{3,h1} = d_{31} T_0 \sin\left(\frac{3\pi}{\ell}x\right) \sin(3\omega_0 t) \quad (4.58)$$

$$D_{3,h2} = \left(\frac{1}{2}\right) d_{311} T_0^2 \sin^2\left(\frac{3\pi}{\ell}x\right) \sin\left(6\omega_0 t - \frac{\pi}{2}\right) \quad (4.59)$$

$$D_{3,h3} = \left(\frac{1}{4}\right) d_{3111} T_0^3 \sin^3\left(\frac{3\pi}{\ell}x\right) \sin(9\omega_0 t - \pi) \quad (4.60)$$

図 4-5 には最大振幅で規格化された $S_{1,hn}, D_{3,hn} (n = 1, 2, 3)$ の x 軸方向の振幅分布が示されている。この振動子の電極長は $\ell/3$ であるから、図 4-3 の場合と全く同様に基本調波の整数倍の周波数成分を有する高調波の存在することが定性的に

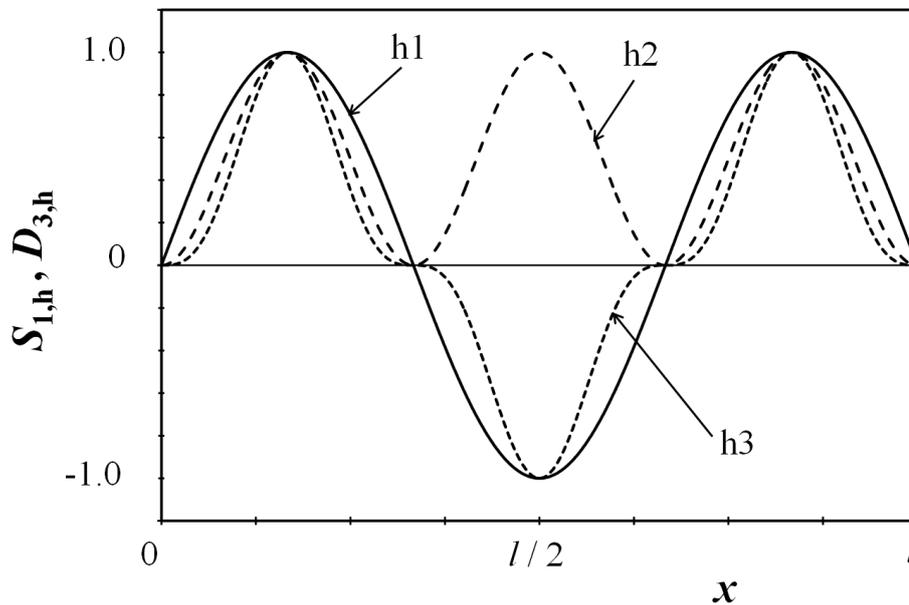


図 4-5 第 3 次固有振動 ($n=3$) 励振時の各調波の振幅分布

図 4-5 第 3 次固有振動 ($n=3$) 励振時の各調波の振幅 $S_{1,h}$ 及び電束密度 $D_{3,h}$ の分布

各調波の振動速度 v_{hn} 及び電流 $i_{hn} (n=1, 2, 3)$ は以下のように計算される。

$$v_{h1} = \frac{d}{dt} \int S_{1,h1} dx = - \left(\frac{\ell}{\pi} \right) s_{111}^E T_0 \omega_0 \cos \left(\frac{3\pi}{\ell} x \right) \cos(3\omega_0 t)$$

(4.61)

$$v_{h2} = \frac{d}{dt} \int S_{1,2h} dx = - \left(\frac{\ell}{4\pi} \right) s_{111}^E T_0^2 \omega_0 \left\{ \sin \left(\frac{6\pi}{\ell} x \right) - \frac{6\pi}{\ell} x + 3\pi \right\} \\ \times \cos \left(6\omega_0 t - \frac{\pi}{2} \right)$$

(4.62)

$$v_{h3} = \frac{d}{dt} \int S_{1,h3} dx = - \left(\frac{9\ell}{16\pi} \right) s_{1111}^E T_0^3 \omega_0 \left\{ \cos \left(\frac{3\pi}{\ell} x \right) - \frac{1}{9} \cos \left(\frac{9\pi}{\ell} x \right) \right\} \\ \times \cos(9\omega_0 t - \pi)$$

(4.63)

$$i_{h1} = \frac{d}{dt} \left\{ b \int_{\frac{\ell}{3}}^{\frac{2\ell}{3}} D_{3,h1} dx \right\} = - \left(\frac{2\ell}{\pi} \right) b d_{31} T_0 \omega_0 \cos(3\omega_0 t)$$

(4.64)

$$i_{h2} = \frac{d}{dt} \left\{ b \int_{\frac{\ell}{3}}^{\frac{2\ell}{3}} D_{3,h2} dx \right\} = \left(\frac{\ell}{2} \right) b d_{311} T_0^2 \omega_0 \cos \left(6\omega_0 t - \frac{\pi}{2} \right)$$

(4.65)

$$i_{h3} = \frac{d}{dt} \left\{ b \int_{\frac{\ell}{3}}^{\frac{2\ell}{3}} D_{3,h3} dx \right\} = \left(\frac{\ell}{\pi} \right) b d_{3111} T_0^3 \omega_0 \cos(9\omega_0 t - \pi)$$

(4.66)

振動子端部における振動速度 $v_h(x=0, \ell)$ は

$$v_{h1}(x=0, \ell) = - \left(\frac{\ell}{\pi} \right) s_{111}^E T_0 \omega_0 \cos(3\omega_0 t)$$

(4.67)

$$v_{h2}(x=0, \ell) = - \left(\frac{3\ell}{4} \right) s_{111}^E T_0^2 \omega_0 \cos \left(6\omega_0 t - \frac{\pi}{2} \right)$$

(4.68)

$$v_{h3}(x=0, \ell) = - \left(\frac{\ell}{2\pi} \right) s_{1111}^E T_0^3 \omega_0 \cos(9\omega_0 t - \pi)$$

(4.69)

となる。

本項での理論的検討結果は先に(4.4.1), (4.4.2)項の場合と全く同様に第 3 次固有振動を励振すると、その振動を基本調波としてその整数倍の周波数成分を有する高調波が弾性的非線形効果によって発生することを理論的に裏付けるものである。

4.5 理論と実験の比較

第3章では3種類の電極構造の振動子を用いて振動子に励振される固有振動と高調波が実験的に調べられた。また本章ではこれらの振動励振の可否が理論的側面から検討された。表4-1にはこれらの結果がまとめて示されている。理論的検討は、固有振動に関しては第3次まで、高調波に対しては第3高調波まで行われた。まず縦振動子では(4.1)式から明らかなように基本固有振動の整数倍の周波数成分を有する高次固有振動が存在することになる。しかし全ての高次固有振動が必ずしも励振可能である訳ではなく、振動励振の可否は電極構造に依存している。そして理論的に励振可能と判断される高次固有振動は全て実験的にもその存在が確認されることが表4-1から明らかである。

表 4-1 固有振動と高調波の存在有無

振動の種類と電極構造		振動次数									
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	
固有振動	全面電極	理論	○		○						
		実験	○		○		○				
	1/2電極	理論	○	○	○						
		実験	○	○	○		○				
	1/3電極	理論	○		○						
		実験	○		○		○				
高調波	全面電極	理論	○	○	○						
		実験	○	○	○	○	○				
	1/2電極	理論		○		○		○			
		実験		○		○		○			
	1/3電極	理論			○				○		○
		実験			○				○		○

一方高調波は弾性的非線形効果によって発生するものであるから、電極構造とは無関係に励振された固有振動の整数倍の周波数成分を有することになる。そして実際このことは理論、実験の両面から裏づけられることを表4-1は示している。

4.6 結言

圧電横効果縦振動子を高振動レベルで励振した場合、振動速度や電流波形には基本波以外にもその整数倍の周波数を有する振動が含まれる。これらの振動

の非線形効果を考慮した理論から検討を加えた結果、高調波であると結論された。

参考文献

- 1) 梅田幹雄, 早野修二, 高橋貞行, 日本音響学会誌, 72, 5 (2016) 228.
- 2) 梅田幹雄, 早野修二, 高橋貞行, 日本音響学会誌, 72, 11 (2016) 678.
- 3) 有山正孝 著, 振動・波動 (裳華房、東京、1997年)
- 4) 富川義朗 編著:「超音波エレクトロニクス振動論」(朝倉書店、東京、1997年)
- 5) H. Beige and G. Schmidt, *Ferroelectrics*, **41** (1982) 39.
- 6) V. D. Kugel and L. E. Cross, *J. Appl. Phys.*, **84** (1998) 2815.

第5章 セラミックス試料の作製

5.1 緒言

本研究では測定用圧電材料として PZT 系圧電セラミックス $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMS-PZ-PT)、C213 材、C201 材、C21 材、N8 材、N81 材、N10 材、非鉛系圧電セラミックス $(\text{K}_{1/2}, \text{Na}_{1/2})\text{NbO}_3$ (KNN)、圧電単結晶 LiNbO_3 (LN)、 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT)、電歪セラミックス $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT) を用いた。この内 PZT 系圧電セラミックス C213 材、C201 材、C21 材、N8 材、N10 材及び圧電単結晶 LN、PMN-PT は市販品を利用した。一方圧電セラミックス PMS-PZ-PT、KNN 及び電歪セラミックス PMN-PT は著者の手で作製された。本章ではこれらセラミックスの作製方法と初期特性について述べる。

5.2 $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMS-PZ-PT) 系圧電セラミックス¹⁾

第3成分である $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3$ の影響及び正方晶系と菱面体晶系との結晶相境界(MPB)とハイパワー特性との関係を明らかにする目的で以下に示す2組の組成のセラミックスを作製した。



$$x=0.075, y=0.41\sim 0.49 \text{ 及び } x=0, y=0.49\sim 0.55。$$

上記の組成式となるように、各種酸化物 PbO , ZrO_2 , TiO_2 , Sb_2O_5 , MnCO_3 の原料を秤量し、所定の化学量論比となるように配合を行った。次に、遊星型ボールミルで湿式混合(蒸留水、 ZrO_2 ボールを使用)し、得られた混合粉末を 850°C で2時間仮焼した。得られた仮焼粉末を同じく遊星型ミルにて粉碎後、バインダ(PVA ; ポリビニルアルコール)を加えて造粒し、プレス成形後、 1200°C で2時間本焼を行った。得られた焼結体は、長さ $l=43$ mm, 幅 $b=7$ mm, 厚み $t=1$ mm の寸法に切り出し、上下面に Ag 電極を印刷・焼付後、 120°C のシリコンオイル中で厚み方向に対して 3kV/mm の電圧を5分間印加して分極処理を行い、本試験片を作製した。

5.3 (K_{1/2}, Na_{1/2}) NbO₃ (KNN)系圧電セラミックス

機械的品質係数 Q_m を改善する目的で 1.5mol% の CuO を含む (K_{1/2}, Na_{1/2}) NbO₃ セラミックス²⁾ を作製した。原料 NaHCO₃、KHCO₃、及び Nb₂O₅、CuO を所定の化学量論比となるように配合し、遊星型ボールミルで湿式混合（エタノール、ZrO₂ ボールを使用）し、得られた混合粉末を 850°C で 2 時間仮焼した。得られた仮焼粉末を同じく遊星型ミルにて粉碎後、バインダ（PVB；ポリビニルブチラート）を加えて造粒し、プレス成形後、1100°C 2 時間で本焼を行った。得られた焼結体は、長さ $l=30$ mm、幅 $b=4.6$ mm、厚み $t=1$ mm の寸法に切り出し、上下面に Ag 電極を印刷・焼付後、120°C のシリコンオイル中で厚み方向に対して 3kV/mm の電圧を 5 分間印加して分極処理を行い、本試験片を作製した。

5.4 Pb(Mg_{1/3}, Nb_{2/3})O₃-PbTiO₃ (PMN-PT)系電歪セラミックス

組成式が $(1-x)\text{PbTiO}_3-x\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ で表される 3 種類のセラミックス $x=0.90, 0.95, 1.00$ が作製された。以下では各組成を PMN/90, PMN/95, PMN/100 の略号で表記する。上記組成のペロブスカイト単相のセラミックスを得るために、図 5-1 に示すコロンバイト法を用いた³⁾。まず、出発原料として MgO と Nb₂O₅ 粉末を遊星型ボールミルで湿式混合（蒸留水、ZrO₂ ボールを使用）し、得られた混合粉末を 1150°C で 4 時間仮焼してコロンバイト（MgNb₂O₆）を合成した。次いで所定量の MgNb₂O₆ 粉末と PbO 及び TiO₂ 粉末を遊星型ボールミルで湿式混合し、750°C で 4 時間仮焼を行った。得られた仮焼粉末を遊星型ボールミルで湿

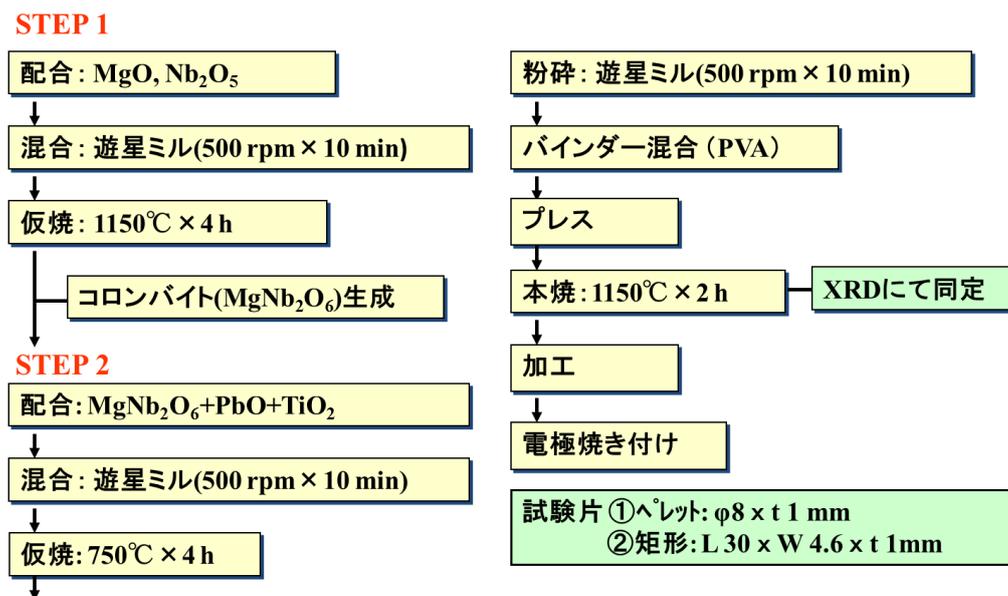


図5-1 コロンバイト法による作製プロセス

式粉碎した。乾燥後、バインダ（PVA；ポリビニルアルコール）を加えて造粒し、プレス成形後、1150℃で2時間焼成を行った。その焼結体より長さ $l=30$ mm、幅

表5-1 作製した各種セラミックスの低振動レベルの特性

	No.	ρ (kg/m ³)	ϵ_r (-)	S_{11}^E (pm ² /N)	d_{31} (pC/N)	Q_m (-)
多結晶	0.075PMS- 0.45PZ-0.475PT	7.76	1250	9.3	-110	1300
	KNN+Cu	4.05	248	9.7	-19.3	334
単結晶	LiNbO ₃	4.70	54.7 (K_{22}^T)	6.9 (S_{23}^E)	-25.6 (d_{23})	20300
	0.7PMN-0.3PT	8.02	5940	56.8	-858	141
電歪	PMN/100	8.04	9500	8.3	-25	12000
	PMN/95	8.01	15100	9.4	-55	360
	PMN/90	7.98	14800	10.3	-110	90

$b=4.6$ mm、厚み $t=1$ mm の寸法に切り出した。最後にその試験片の上下面に Ag 電極を印刷・焼付けて、本試験片を作製した。

5.5 結言

得られたセラミックス材料および LN, PMN-PT 結晶の基本物性については、まとめて表 5-1 に示す。圧電特性については、インピーダンスの周波数特性から共振-反共振法⁴⁾より算出した。なお、電歪材料については、直流バイアス E_b を 0.2 kV/mm 以下

表 5-1 作製した各種セラミックスの低振動レベルの特性

参考文献

- 1) 大野留治, 坪内啓夫, 高橋政雄, 松尾泰幸, 明石雅夫, *Tech. Rep. IEICE Jpn.*, US71-37, (1972) 1.
- 2) Cheol-Woo Ahn, Makarand Karamakar, *Ferroelectrics Letters Section*, **35** (2008) 3.
- 3) S. L. Swartz and T. R. Shrout, *Mater. Res. Bull.*, **17** (1982) 1245.
- 4) 電子情報技術産業協会規格(JEITA), EM-4501, “圧電セラミック振動子の電氣的試験方法”

第6章 圧電セラミックスのハイパワー特性

6.1 緒言

圧電アクチュエータ、超音波モータ、圧電トランスなどのハイパワー圧電デバイスでは高い振動レベルの圧電振動を利用してその機能が発現されている。圧電材料を低い振動レベルで駆動する限りにおいては、その振動波形は正弦波であり、諸特性も安定している。しかし振動レベルがある一定値を超えると振動波形がひずみ波となり¹⁾、諸特性も振動レベルで変動して不安定になる。特に機械的品質係数 Q_m は振動レベルの増大に伴って著しく低下し、デバイスの効率劣化を招く²⁾。また、 Q_m の低下は自己発熱の要因でもあることから、ハイパワー圧電デバイスに使用される圧電材料に対しては高振動レベルまで Q_m の変動が少なく高い値の維持されることが望まれる。高振動レベルまで正弦波状の振動波形が維持され、 Q_m 以外の諸特性も変動しないことが望ましい。

これまでの圧電材料の応用の中心は低振動レベルの圧電振動を利用した電気通信用フィルタや発振素子（レゾネータ）などの電子回路用デバイスであったことから、圧電材料のハイパワー特性への関心は低いものであった。ところが最近になって、メカトロニクス分野への圧電デバイスの応用が活発になり、ハイパワー用圧電材料への関心も高まりをみせている。そして PZT 系圧電セラミックスを初めとして地球環境保護の視点から注目されている非鉛系圧電セラミックスに関してもハイパワー特性の評価が行われるようになってきた³⁻⁸⁾。しかしハイパワー特性の評価法が確立していなかったことも手伝って未だ十分な研究がなされているとは言い難い。

本章では、圧電特性に優れ、かつ幅広く実用に供されている代表的な PZT3 成分系圧電セラミックスである $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMS-PZ-PT) に着目し⁹⁾、そのハイパワー特性を電氣的過渡応答法を用いて測定評価する。そして物性論的な側面から材料組成とハイパワー特性の関係を論じる。

また、非鉛系圧電セラミックスの中でも実用化への期待の高い $(\text{K}_{1/2}, \text{Na}_{1/2})\text{NbO}_3$ (KNN) に関しても、そのハイパワー特性の測定評価を行う。

6.2 $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMS-PZ-PT) のハイパワー特性¹⁰⁾

6.2.1 PZT系3成分固溶体

PbZrO_3 (PZ)はペロブスカイト型結晶構造を有する反強誘電体であり、また PbTiO_3 (PT)はペロブスカイト型結晶構造を有する強誘電体である¹¹⁾。そしてこれらは全率固溶体 $\text{PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ (PZT)を形成することが可能であり、この固溶体は図 6-1 に示すように PZ と PT の組成比を変化させると温度による相転移とともに組成による相転移を伴う。そして菱面体晶系強誘電相 F_R と正方晶系強誘電相 F_T との相境界(MPB: Morphotropic phase boundary)付近の組成では結晶構造

が不安定になり、電氣的、機械的に柔らかいことが知られている。その結果図 6-2 に示すように電気機械結合係数 k_p や比誘電率 K_{33}^T は MPB 付近で極めて大きな

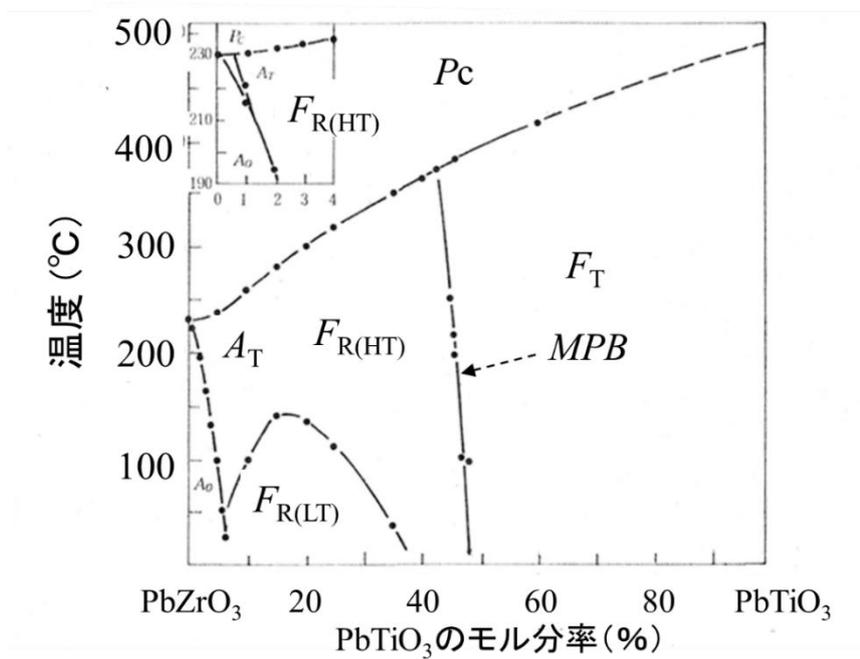


図 6-1 PbZrO_3 - PbTiO_3 系固溶体の相図

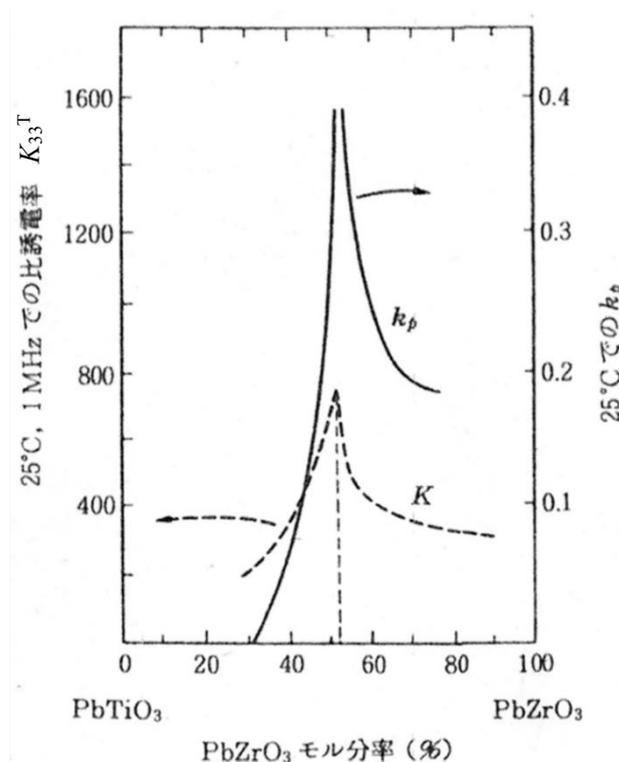


図 6-2 MPB 付近での圧電特性

値を示す。

2成分系固溶体 PZT に複合ペロブスカイト酸化物 $\text{Pb}(\text{B}_1, \text{B}_2)\text{O}_3$ (B_1 : Mg, Ni, Mn など、 B_2 : Nb, Sb, Ta など) を第 3 成分として加えて 3 成分固溶体を形成すると PZT の諸特性の更に改善されることが知られている。第 3 成分を例えば $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3$ とした場合の電気機械結合係数 k_p が図 6-3 に、また機械的品質係数 Q_m が図 6-4 に示されている。図から明らかなように k_p , Q_m が共に PZT の値を凌駕している。

本節では 3 成分系 $x\text{PMS}-y\text{PZ}-(1-x-y)\text{PT}$ 系セラミックスを例にとり、2 成分系

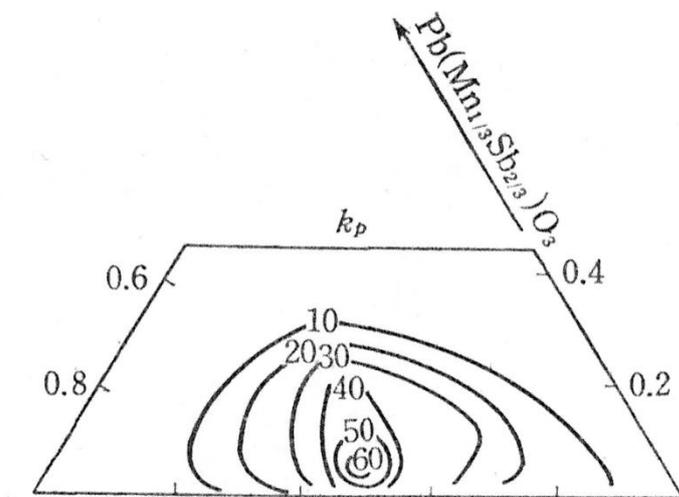


図 6-3 $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3$ -PZ-PT 系材料の電気機械結合係数 k_p

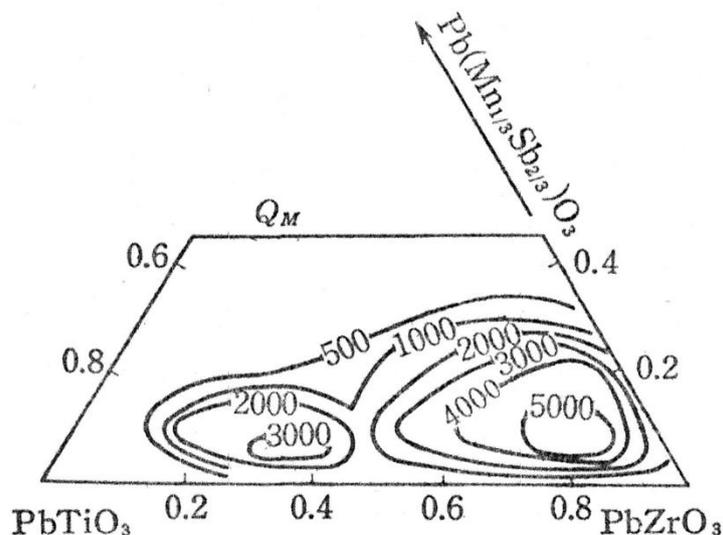


図 6-4 $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3$ -PZ-PT 系材料の機械的品質係数 Q_m

$y\text{PZ}-(1-y)\text{P1}$ システムと比較しながら、その特性を調べる。ただし

圧電セラミックスのハイパワー特性の物性論的な側面からの考察を試みる。

図 6-5 には $x\text{PMS}-y\text{PZ}-(1-x-y)\text{PT}$ 系の相図が示されており、図中で Pc は擬立方晶系常誘電相を表している。測定試料には $x=0.075$, $y=0.41\sim 0.49$ 及び $x=0$, $y=0.49\sim 0.55$ の 2 組の組成セラミックスを用いた。測定用圧電振動子には長さ $l=43\text{mm}$, 幅 $b=7\text{mm}$, 厚さ $t=1\text{mm}$ の圧電横効果縦振動子 (図 3-1(a)) を用いた。

6.2.2 低振動レベル特性

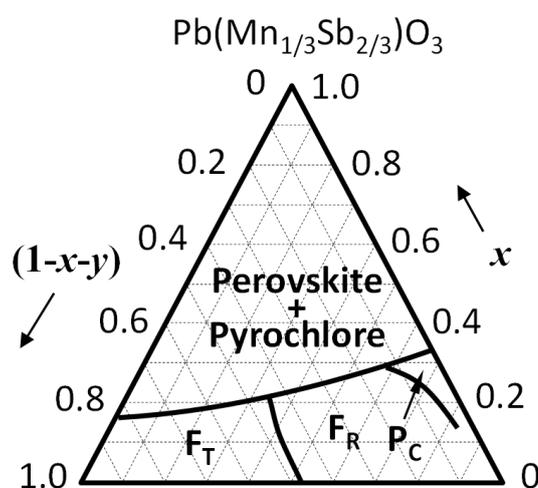


図 6-5 3 成分系固溶体セラミックス $x\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3-y\text{PbZrO}_3-(1-x-y)\text{PbTiO}_3$ 系の相図

F_T : 正方晶系強誘電相, F_R : 菱面体晶系強誘電相, P_C : 擬立方晶系常誘電相

$x-y$) PbTiO_3 の相図 F_T : 正方晶系強誘電相, F_R : 菱面体晶系強誘電相, P_C : 擬立方晶系常誘電相

図 6-6(a), (b), (c), (d)には定電圧法で測定された低振動レベル ($v < 0.05\text{m/s}$, $T_m < 1.5\text{MPa}$) における(a)弾性コンプライアンス s_{11}^E , (b)比誘電率 $K_{33}^T (= \epsilon_{33}^T / \epsilon_0)$, ϵ_{33}^T : 絶対誘電率, ϵ_0 : 真空の誘電率), (c)圧電 d_{31} 定数および (d)機械的品質係数 Q_m を PZ のモル分率 y の関数で示す。

2 成分系 $y\text{PZ}-(1-y)\text{PT}$ では $y=0.52$ 付近に MPB が存在するため、この付近の組成では s_{11}^E , K_{33}^T , d_{31} は極大となり、 Q_m は極小値をとる。一方 3 成分系 $0.075\text{PMS}-y\text{PZ}-(0.925-y)\text{PT}$ では MPB が $y=0.45$ 付近にシフトするため、この付近の組成で s_{11}^E , K_{33}^T , d_{31} は極大、 Q_m は極小となる。そしてこの 3 成分系では 2 成分系と比較して d_{31} と Q_m とが大幅に改善された。 Q_m の改善は第 3 成分中の Mn イオンの一部がアクセプタとして働くためと推定されるが、 d_{31} に関してはその改善理由は不明である。

なお、一般に2成分系では d_{31} と Q_m の大きさがトレードオフの関係にあるとされているが、3成分系でもこの関係が成立している。

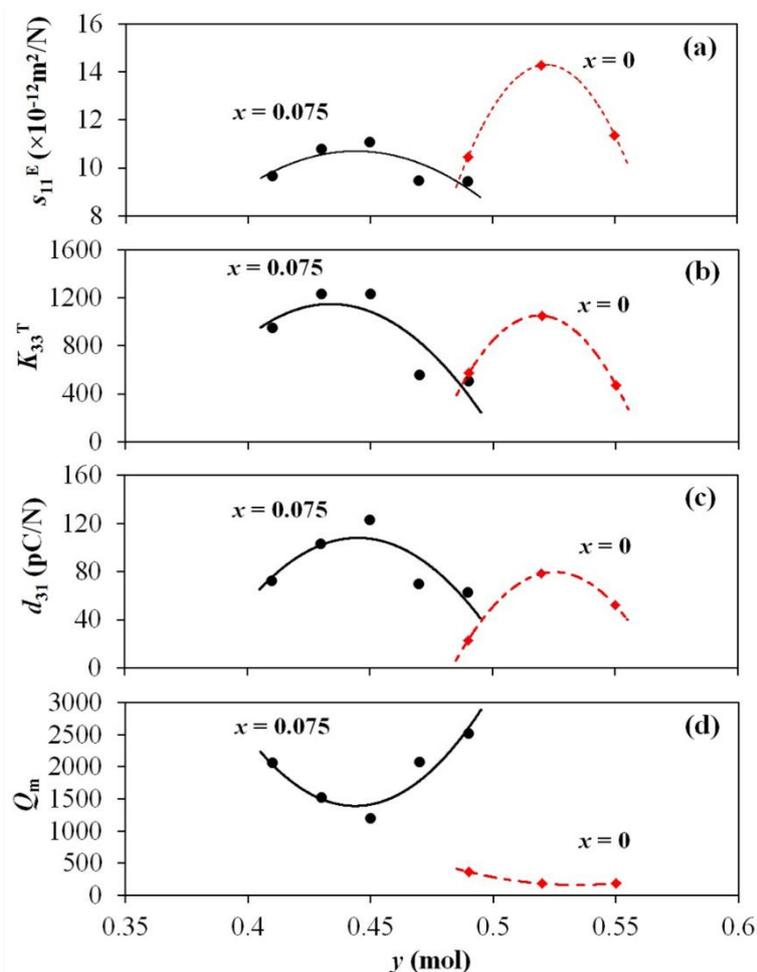


図 6-6 低振動レベルにおける圧電的諸特性 (a)弾性コンプライアンス s_{11}^E , (b)比誘電率 K_{33}^T , (c)圧電定数 d_{31} , (d)機械的品質係数 Q_m

6.2.3 ハイパワー特性

図 6-7(a)には弾性コンプライアンス s_{11}^E が最大応力 T_m の関数で示されている。3成分系では T_m が 30MPa を超える高振動レベルまでほぼ一定であるが、2成分系では低振動レベルから振動レベルと共に増大する。そして後述するように T_m が 10MPa を超えると振動損失パワー密度 P_d が急激に増大する結果(図 6-12), これ以上振動レベルを上げることが困難となる。図 6-7(b)には s_{11}^E の変化率 $\Delta s_{11}^E / s_{11}^E(0)$ が T_m に対して対数表示されている。ここで添え字(0)は $T_m < 1.5\text{MPa}$ の低振動レベルでの値を意味する。

図 6-8(a)には比誘電率 K_{33}^T が T_m の関数で示されている。また、図 6-8(b)には

2成分系の K_{33}^T の変化率 $\Delta K_{33}^T/K_{33}^T(0)$ が、そして図 6-8(c)には 3成分系の $\Delta K_{33}^T/K_{33}^T(0)$ がそれぞれ T_m の関数で対数表示されている。 s_{11}^E と同様に K_{33}^T も T_m と共に増大する傾向にあるが s_{11}^E に見られるような 2成分系と 3成分系との間の差は殆ど認められない。

図 6-9(a),(b)には d_{31} とその変化率 $\Delta d_{31}/d_{31(0)}$ が各々 T_m の関数で示されている。図 6-10 には力係数 $A(=2bd_{31}/s_{11}^E)$ が、また図 6-11(a),(b)には機械的損失 Q_m^{-1} とその変化率 $\Delta Q_m^{-1}/Q_m^{-1}(0)$ が T_m に対して示されている。 d_{31} , A , Q_m^{-1} に関しても s_{11}^E や K_{33}^T と同様に T_m と共に増大する傾向が認められ、その程度は 3成分系に比して 2成分系のほうがより顕著であることも共通している。そして s_{11}^E , K_{33}^T , d_{31} , Q_m^{-1} を k で代表させた場合、これらの結果は次の実験近似式を与える。

$$k = k_0(1 + \alpha T_m^\beta)$$

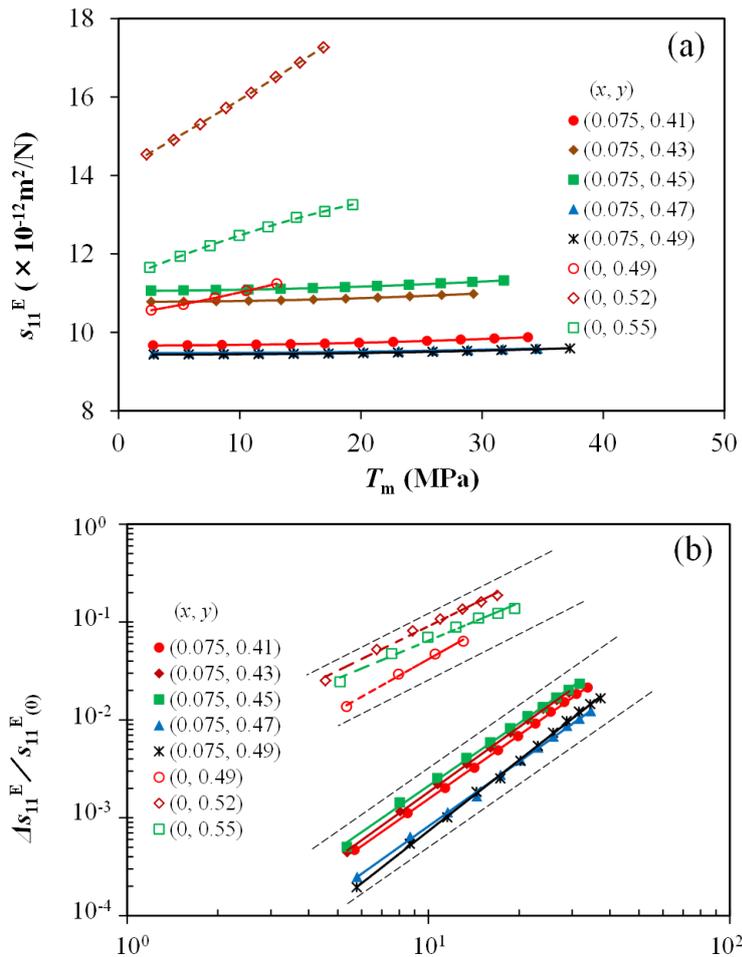


図 6-7 (a)弾性コンプライアンス s_{11}^E と (b)その変化率 $\Delta s_{11}^E/s_{11}^E(0)$ の振動応力 T_m に対する依存性

率 $\Delta s_{11}^E/s_{11}^E(0)$ の振動応力 T_m に対する依存性

(6.1)

ここで α と β は材料で決まる定数である。なお、本実験式の物理的意味に関する考察は今後の検討課題としたい。

圧電的諸特性の振動レベル依存性は、弾性振動による周期的な振動応力の発生が強誘電性非 180°分域壁の運動を促進するために起こるものと理解されている¹²⁻¹⁵⁾。なお、3成分系が2成分系と比較して振動レベル依存性の小さい理由は、第3成分である PMS 中に含まれる Mn イオンの一部がアクセプタ欠陥を生成して強誘電性非 180°分域壁のピン止め効果を発揮するためと推定される¹⁶⁻¹⁸⁾。

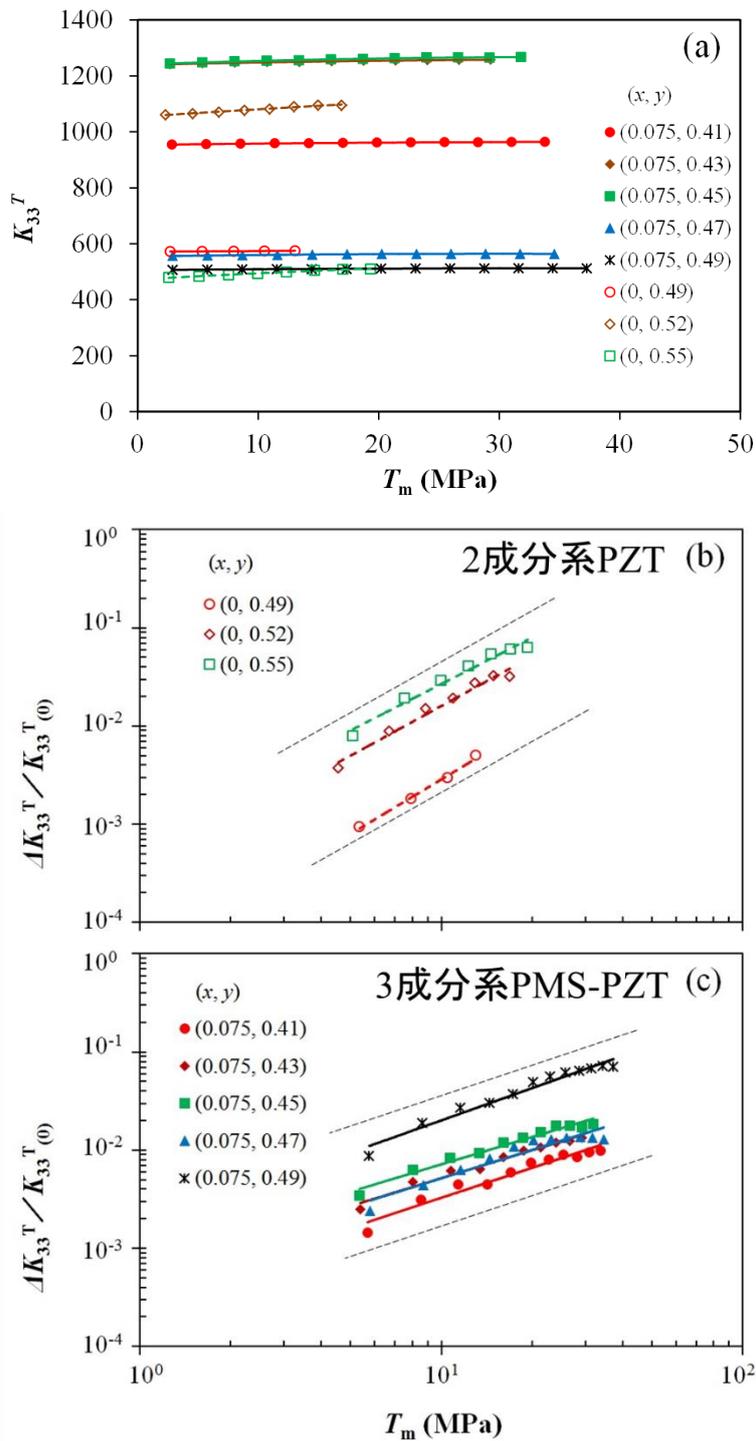


図 6-8 (a)比誘電率 K_{33}^T , (b)2 成分系の比誘電率の変化率 $\Delta K_{33}^T / K_{33(0)}^T$ 及び (c)3 成分系の比誘電率の変化率の振動応力 T_m に対する依存性

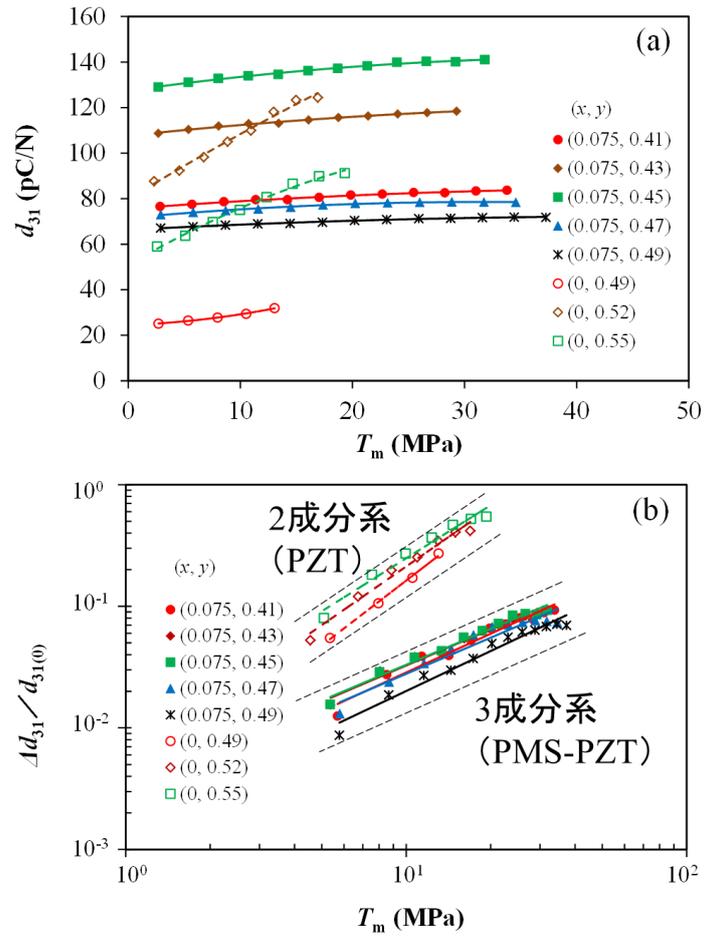


図 6-9 (a)圧電定数 d_{31} と (b)その変化率 $\Delta d_{31}/d_{31(0)}$ の振動応力 T_m に対する依存性

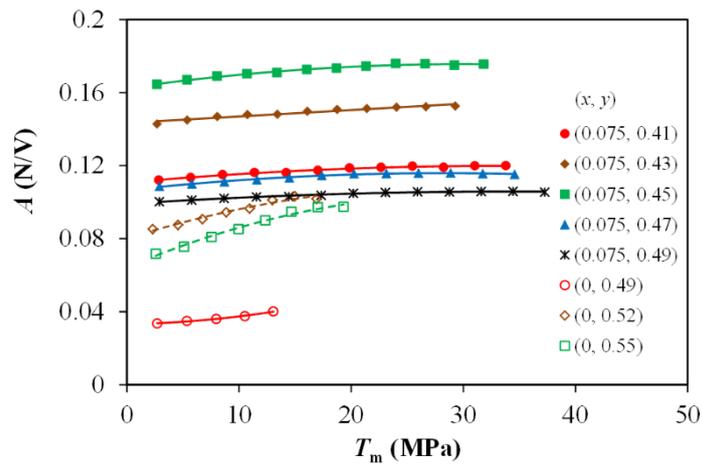


図 6-10 力係数 A の振動応力 T_m に対する依存性

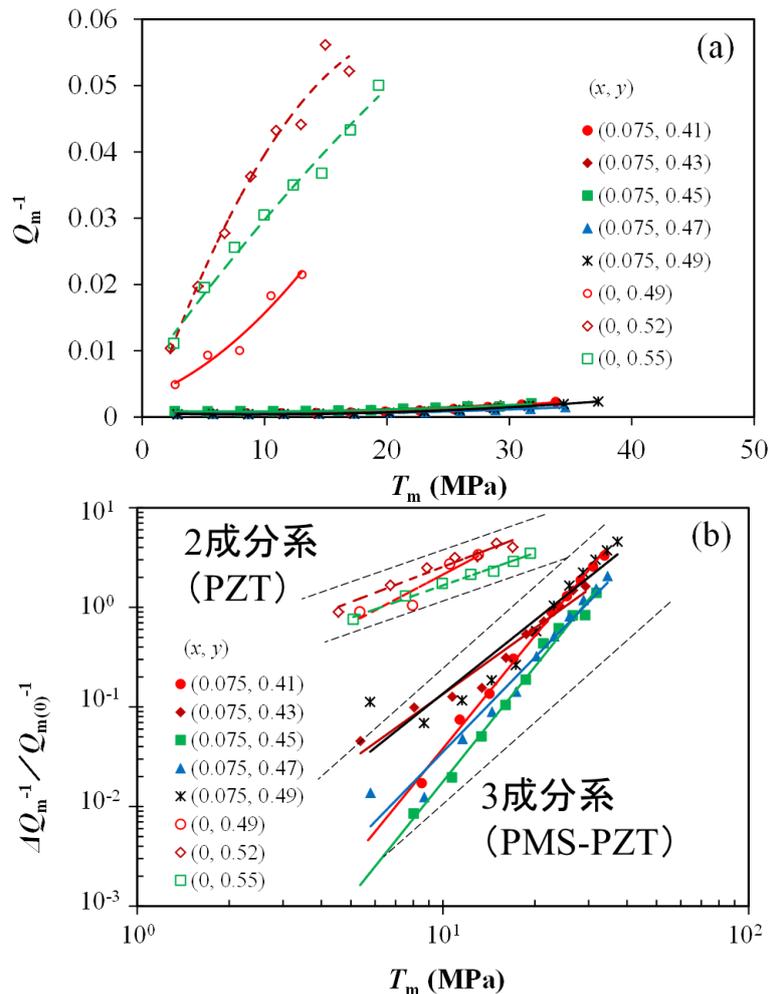


図 6-11 (a)機械的損失 Q_m^{-1} と (b)その変化率 $\Delta Q_m^{-1} / Q_m^{-1}$ の振動応力 T_m に対する依存性

6.2.4 振動損失パワー密度

圧電材料の振動損失パワー密度 P_d は次式で表される。

$$P_d = \frac{1}{4} \rho \omega_0^2 V_m^2 Q_m^{-1} = P_m Q_m^{-1} \quad (6.2)$$

ここで ρ は密度、 ω_0 は角共振周波数、 P_m は蓄積機械パワー密度を表す。ハイパワー圧電デバイスの効率や発熱現象は材料の P_d と密接に関係しており、一般に振動レベルの増大に伴って P_d も増大する傾向がある。従ってハイパワー圧電デバイス用材料としては、高振動レベルまで P_d 値が低く保たれる材料が望ましいことになる。以下この観点から P_d と T_m との関係を論じる。

図 6-12 には P_d が T_m の関数で示されている。2 成分系では T_m が 10MPa を超え

る辺りから P_d が急激に増大し入力電力の大部分は熱エネルギーとして消散され

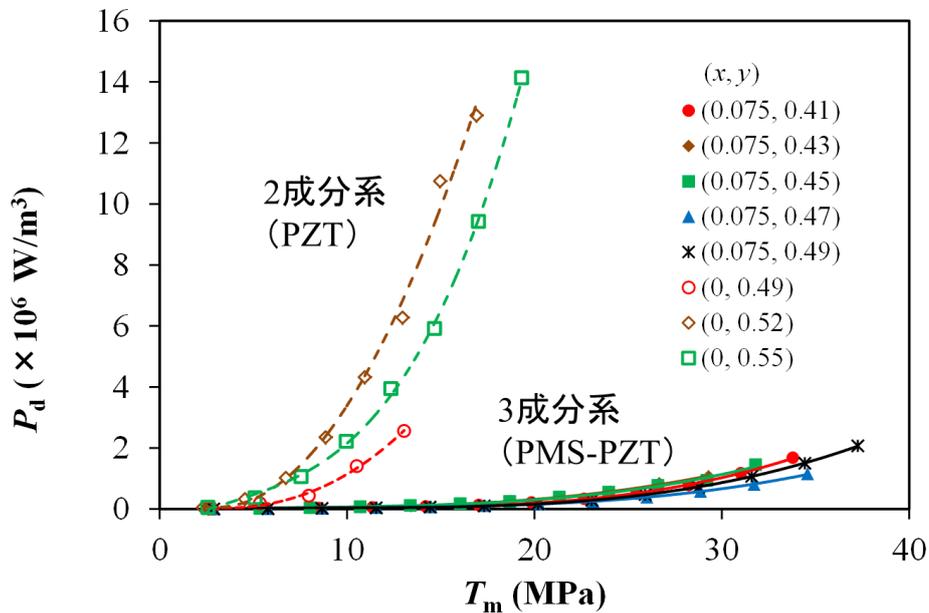


図 6-12 振動損失パワー密度 P_d の振動応力 T_m に対する依存性

るため、これ以上の振動レベル、換言すれば蓄積機械的エネルギーの増大は見込めない。従って P_d の急増に対応する振動レベルがこの材料で実現可能な振動レベルの最大値と言える。一方 3 成分系では T_m が 30MPa を超える高振動レベルまで P_d が低い値に保たれることが明白であり、2 成分系との比較でハイパワー用途に適した材料と言える。これは(6.2.3)項で論じたように、第 3 成分である PMS 中に含まれる Mn イオンの一部がアクセプタ欠陥を生成して強誘電性非 180°分域壁のピン止め効果を発揮し、これが振動損失の増大を抑圧するためと理解される。

図 6-13 には T_m をパラメータとして P_d が PZ のモル分率 y の関数で示されている。2 成分系では $y=0.52$ 付近、3 成分系では $y=0.45$ 付近の MPB 組成領域で P_d が極大となっている。ところで MPB 付近の組成領域では F_T 相と F_R 相との自由エネルギーがほぼ等しいことから、僅かな応力で F_T 相と F_R 相との相変態が起こること、また F_T 相では a 軸と c 軸の入れ替えの可能性もあると指摘されている¹⁹⁾。換言すれば MPB 付近の組成領域では結晶構造が不安定な状態にあると言える。従って結晶構造の安定性もハイパワー特性の重要な支配因子であることが示唆される。

また、低振動レベルでの圧電特性は MPB 付近の組成で最大となることから (図 6-6)、通常低パワー圧電デバイス用には MPB 付近の組成が選択される。しかし高振動レベルでは逆に MPB 付近の組成で振動損失パワー密度 P_d が最大と

なるため、ハイパワーデバイス用圧電材料としては MPB から少し離れた組成が

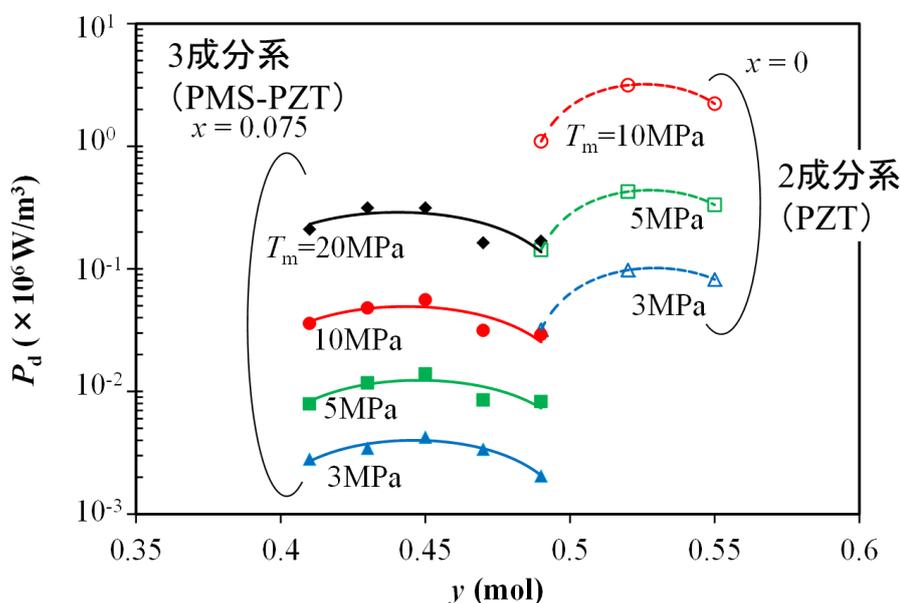


図 6-13 振動応力 T_m をパラメータとした振動損失パワー密度 P_d の PbZrO_3 モル分率 y に対する依存性

望ましい。

6.3 $(\text{K}_{1/2}, \text{Na}_{1/2})\text{NbO}_3$ (KNN) のハイパワー特性

6.3.1 低振動レベル特性

本節では KNN セラミックスのハイパワー特性を PZT 系圧電セラミックス C213 材, C201 材, C21 材, C6 材との比較で論じる。試料振動子には(6.2)節で論じたものと同じ形状・寸法の縦振動子を用いた。本項ではまず低振動レベルで測定された材料特性について述べる。

本材料の低振動レベル ($T_m < 1.5\text{MPa}$) における諸特性は、表 5-1 のとおりである。KNN では s_{11}^E と K_{33}^T とがハード系 PZT (C213, C201, C21 材) よりも小さい値を示しており、弾性的、誘電的にはかなり硬い材料と言える。 Q_m はソフト系 PZT (C6 材) とハード系 PZT との間にある。また、この材料はその構成元素として鉛を含まないため密度が PZT よりかなり低いことも特徴の一つに挙げられる。

6.3.2 ハイパワー特性

KNN を高振動レベル(20MPa)で駆動した場合の振動速度 v と電流 i との周波数スペクトルを図 6-14(a), (b)に各々示す。基本固有振動周波数のバースト正弦波電圧を印加して振動が励振されていることから、これらスペクトルは基本調波、第

2 高調波、第 3 高調波・・・に対応するものとしてよい。即ち PZT 系圧電セラミックスで見られたように、KNN でも高振動レベルで駆動すればその振動波形は非線形効果に起因したひずみ波になることが明白である。

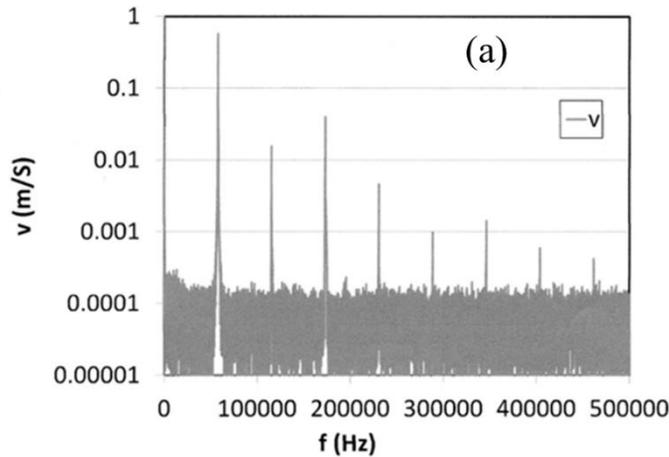


図-16

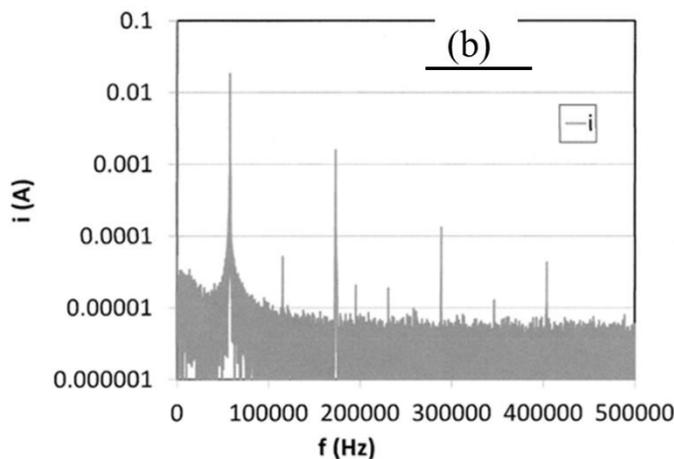


図6-14 KNN材を高振動レベルで駆動時の
 図 6-14 KNN 材を高振動レベルで駆動時の
 周波数スペクトル (a)振動速度 v , (b)電流 i

図 6-15(a), (b)には、図 6-15(a)に示すように、 s_{11}^E が応力 T_m に対して示されている。ここで添え字(0)は $T_m < 1.5\text{MPa}$ 以下の低振動レベルでの値を表している。また、図 6-16(a), (b)には比誘電率 K_{33}^T とその変化率 $\Delta K_{33}^T / K_{33}^T(0)$ 、図 6-17(a), (b)には圧電 d_{31} 定数とその変化率 $\Delta d_{31} / d_{31}(0)$ 、図 6-18(a), (b)には Q_m^{-1} とその変化率 $\Delta Q_m^{-1} / Q_m^{-1}(0)$ 、そして図 6-19 には力係数 A が T_m の関数で表示されている。 s_{11}^E , K_{33}^T , d_{31} , Q_m^{-1} のいずれに関しても T_m と共に増大する傾向が見られる。そしてここでも(6.1)の実験式が近似的に成立することが分かる。

個別の特性については、ソフト系 PZT の弾性コンプライアンスの変化率はハ

ード系と比較して約1桁程度大きい。KNNの変化率はハード系とほぼ同等とみられる。比誘電率も弾性コンプライアンスと同様にソフト系の変化率はハード系と比較して約1桁程度大きい。一方KNNはハード系より更に1桁弱小さい値となっている。圧電定数に関しては弾性コンプライアンスの場合と類似しており、その変化率はソフト系が一番大きく、ハード系とKNNは同程度の値を示す。機械的損失ではその変化率はソフト系、ハード系、KNNの順に小さくなっている。

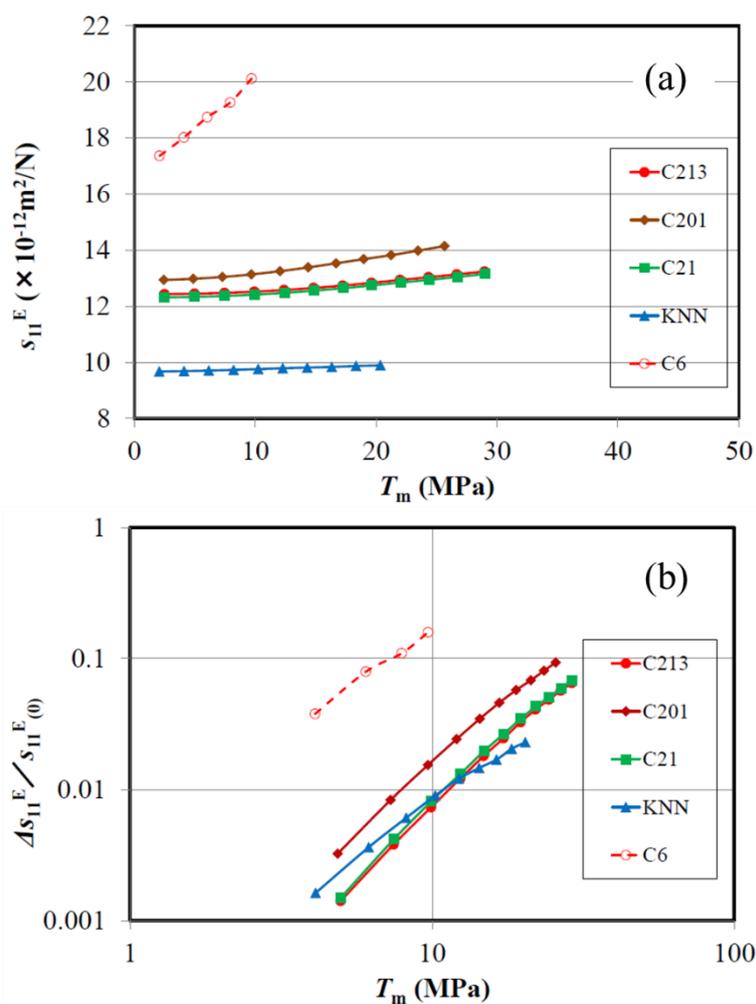


図6-15 KNN材料における s_{11}^E の T_m 依存性

図 6-15 KNN 材料における s_{11}^E の T_m 依存性

(a) $s_{11}^{E(0)}$ vs. T_m , (b) $\Delta s_{11}^E / s_{11}^{E(0)}$ vs. T_m

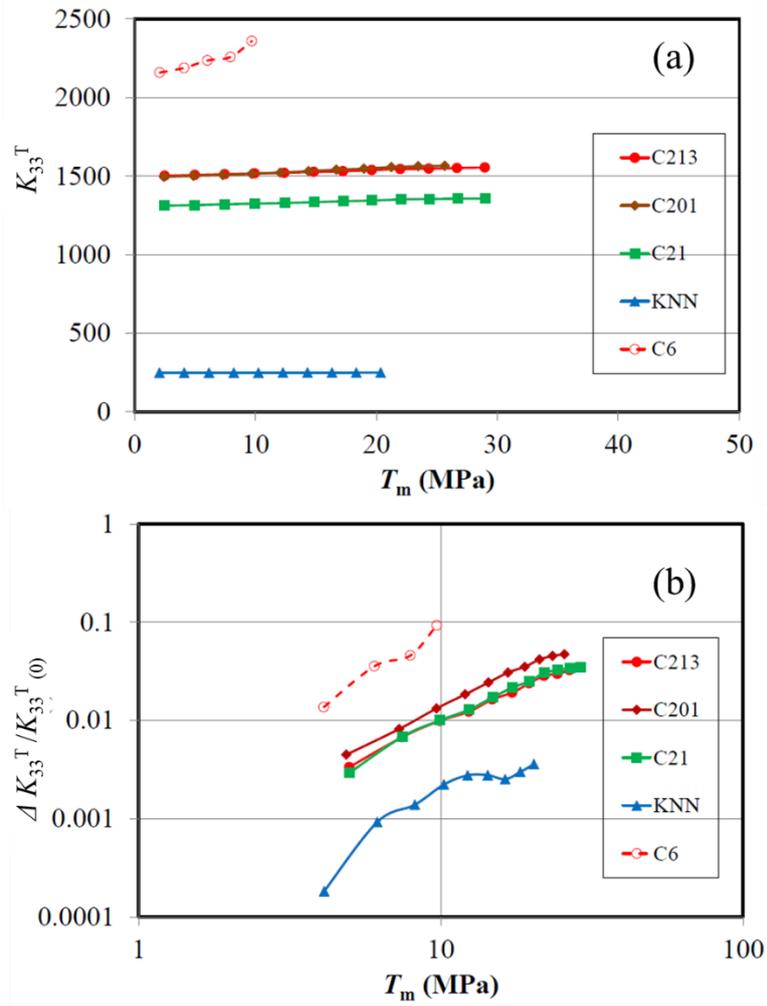


図 6-16 KNN 材料における K_{33}^T の T_m 依存性
 (a) K_{33}^T vs. T_m , (b) $\Delta K_{33}^T / K_{33}^T(0)$ vs. T_m

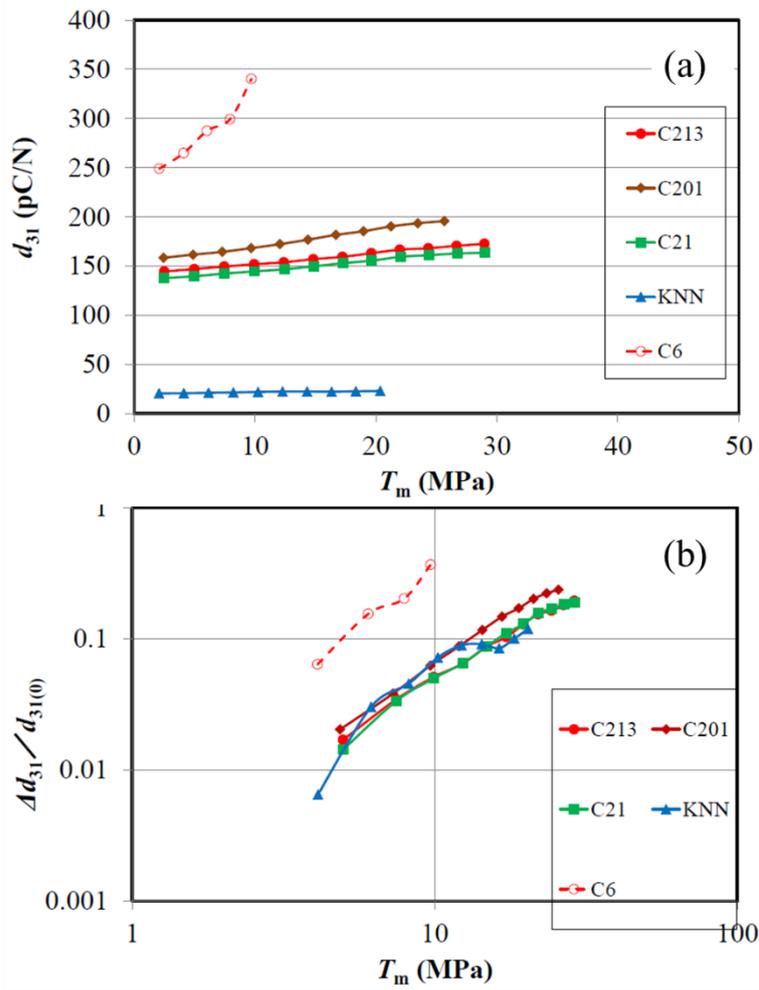


図 6-17 KNN 材料における d_{31} の T_m 依存性
 (a) d_{31} vs. T_m , (b) $\Delta d_{31}/d_{31(0)}$ vs. T_m

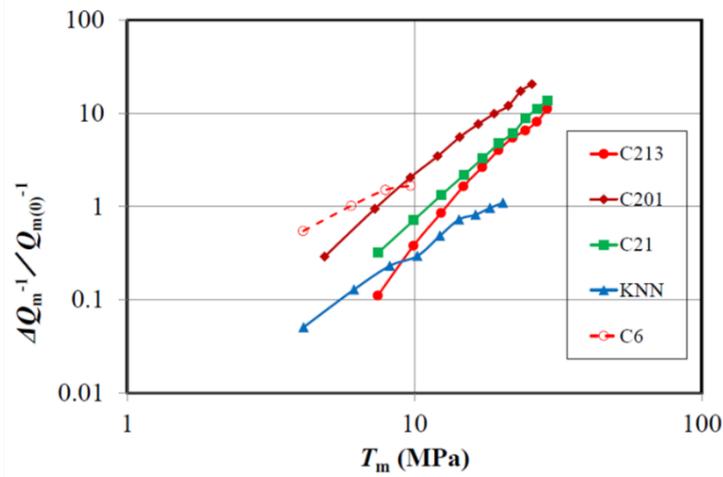
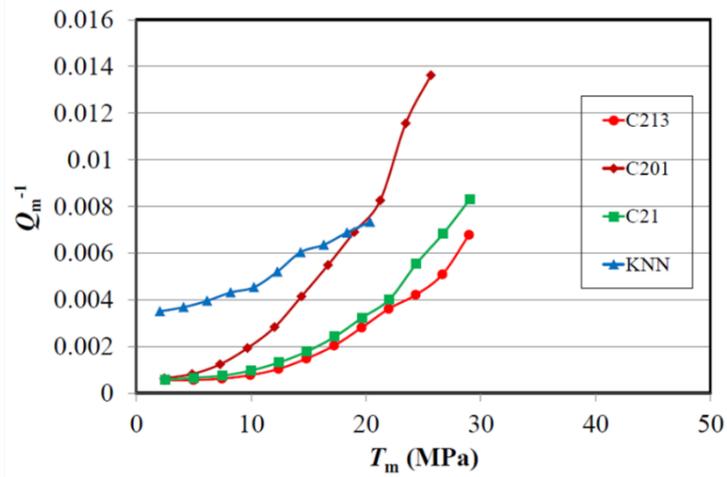


図 6-18 KNN 材料における Q_m^{-1} の T_m 依存性
 (a) Q_m^{-1} vs. T_m , (b) $\Delta Q_m^{-1} / Q_{m(0)}^{-1}$ vs. T_m

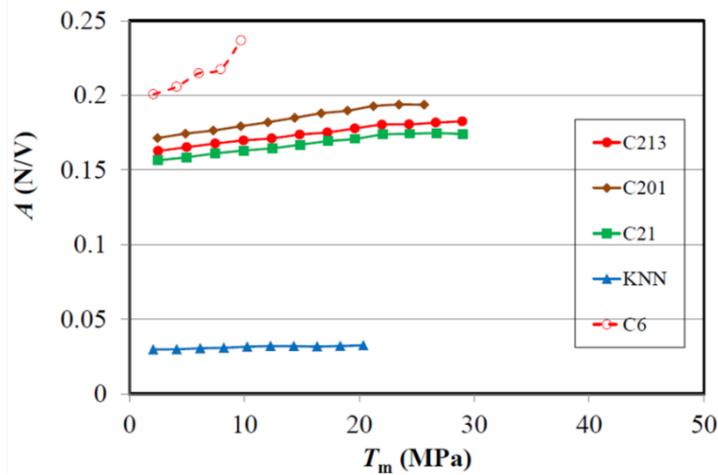


図 6-19 KNN 材料における力係数 A の T_m 依存性

ハイパワー特性の良否判定に重要となる振動損失パワー P の T_m 依存性は図6-20(a), (b)に示されており、(a)では線形表示、(b)では対数表示されている。図から明らかなようにハード系はソフト系と比較して高振動レベルまで振動損失の少ない結果となっており、ハイパワー用途にはハード系がソフト系と比較して優れていることが明らかである。一方KNNはソフト系と比べればハイパワー特性は優れているといえるが、ハード系を凌駕する迄には至らないと言えよう。

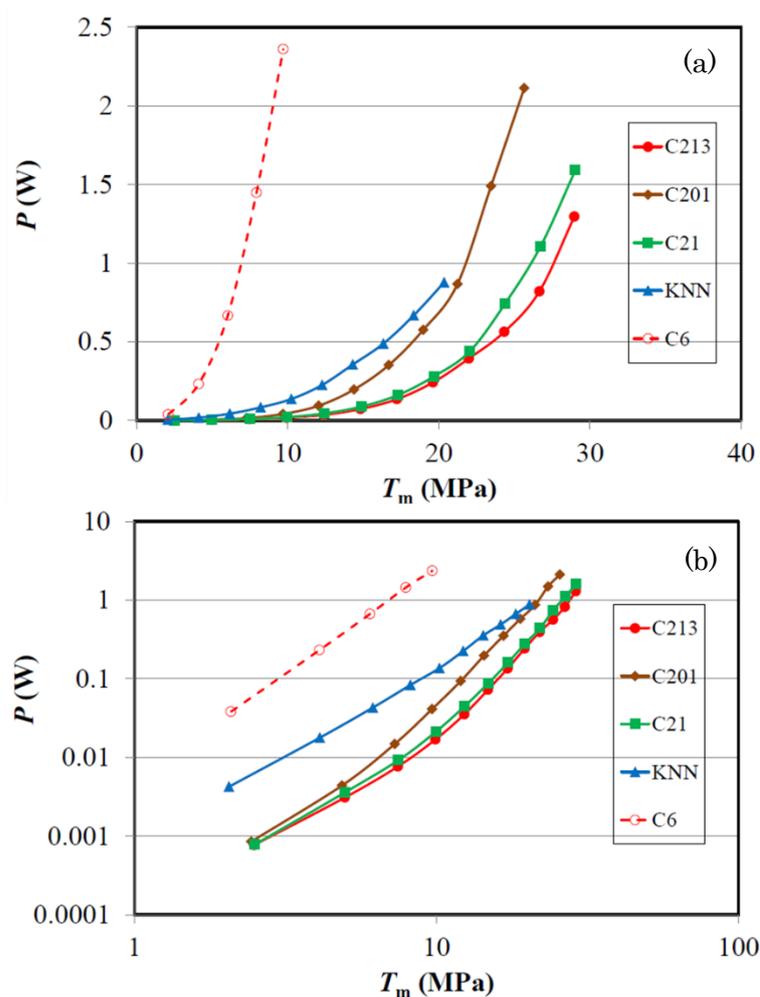


図 6-20 KNN 材料における振動損失パワー P の T_m 依存性
(a)線形表示, (b)対数表示

ハイパワー用途への適否は材料定数からみれば Q_m の大きさに関係している。今回評価に用いたKNNの Q_m は400程度であるが、2000を超える値も報告されていることから、今回の評価結果のみからKNNはハイパワー用途に不適と断定することはできないことを付け加えておく。

6.4 結言

2成分及び3成分系PZT及び非鉛系KNN圧電セラミックスについて、電氣的過渡応答法にて高振動レベルでの圧電特性及びそのハイパワー特性が評価された。特に振動損失パワー密度 P_d について、その結果を表6-1にまとめて示す。C6, C213, KNNの P_d については、図6-20の振動損失パワー P から算出した。振動応力10MPa時の P_d は、ソフト系PZT(C6)が一番大きく、次いでKNN、ハード系PZT(C213, PMS-PZ-PT)の順に小さくなった。中でも0.075PMS-0.47PZ-0.455PTの P_d は 0.05W/m^3 と最も小さく、高振動レベルで最も振動損失の小さい材料でといえる。従って本研究で評価した圧電セラミックス中では0.075PMS-0.47PZ-0.455PTが実用的には一番優れたハイパワー用材料であると言えよう。

表 6-1 各材料の高振動レベル下での振動損失パワー密度 P_d の比較

No.	P_d (kW/m^3)		d_{31} (pC/N)	
	10MPa	20MPa	10MPa	20Ma
1. ソフト系PZT:0.52PZ-0.48PT	3,000	>10,000	-110	<-140
2. ソフト系PZT:C6	8,000	>10,000	-350	-
3. ハード系PZT: 0.075PMS-0.47PZ-0.455PT	50	300	-75	-78
4. ハード系PZT: 0.075PMS-0.45PZ-0.475PT	60	300	-130	-140
5. ハード系PZT:C213	70	1,000	-160	-170
6. 非鉛系KNN	720	6,500	-20	-25

参考文献

- 1) S. Tashiro, K. Ishii and K. Nagata, Jpn. J. Appl. Phys., 42 (2003) 6068.
- 2) 高橋貞行, 固体物理, 34 (1999) 65.
- 3) S. Kawada, H. Ogawa, M. Kimura, K. Shiratsuyu and H. Niimi, Jpn. J. Appl. Phys., 45 (2006) 7455.
- 4) S. Kawada, H. Ogawa, M. Kimura, K. Shiratsuyu and Y. Higuchi, Jpn. J. Appl. Phys., 46 (2007) 7079.
- 5) Y. Hiruma, T. Watanabe, H. Nagata and T. Takenaka, Jpn. J. Appl. Phys., 47 (2008) 7659.
- 6) Y. Nomura, Y. Hiruma, H. Nagata and T. Takenaka, Jpn. J. Appl. Phys., 49, 09MD02

- (2010).
- 7) Y. Nomura, Y. Hiruma, H. Nagata and T. Takenaka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **50**, 07HB06 (2011).
 - 8) H. Shimizu, Y. Doshida, Y. Mizuno, S. Tanaka, K. Uematsu and H. Tamura, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **51**, 09LD02 (2012).
 - 9) 大野留治, 坪内啓夫, 高橋政雄, 松尾泰幸、明石雅夫, *Tech. Rep. IEICE Jpn.* US71-37(1972) 1.
 - 10) 早野修二, 梅田幹雄, 高橋貞行, *日本音響学会誌*, **72** (2016) 315.
 - 11) 塩崎忠 著: 「圧電材料とその応用」 (シーエムシー出版、東京、2002 年) .
 - 12) Y. Sasaki, S. Takahashi and S. Hirose, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36** (1997) 6058.
 - 13) D. Damjanovic, *J. Appl. Phys.*, **82** (1997) 1788.
 - 14) D. V. Kug, and L. E. Cross, *J. Appl. Phys.*, **84** (1998) 2815.
 - 15) B. K. Mukherjee, W. Ren, S. F. Lui, A. Masys and G. Yang, *Proc. SPIE* (2001) 41.
 - 16) S. Takahashi, *Ferroelectrics*, **41** (1982) 143.
 - 17) S. Takahashi and S. Hirose, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31** (1992) 3055.
 - 18) S. Takahashi and S. Hirose, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32** (1993) 2422.
 - 19) 沢口悦郎 著, 田中哲郎, 岡崎清, 一ノ瀬昇 共編: 「圧電セラミック材料」 第 3 章 (学献社, 東京, 1978 年)

第7章 圧電結晶のハイパワー特性

7.1 緒言

本章ではニオブ酸リチウム LiNbO_3 (LN)単結晶と、マグネシウム・ニオブ酸鉛 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ (PMN) とチタン酸鉛 PbTiO_3 (PT) との2成分固溶体結晶 (PMN-PT) を採りあげ、PZT系セラミックス (C213材、C6材; 表1-3) との比較してそのハイパワー特性を論じる。

LNは三方晶系の強誘電体結晶で、その圧電性は水晶よりは大きいがPZTセラミックスと比較すれば小さい。物理的、化学的に安定であり、また径150mm程度の結晶がチョクラルスキー法で比較的容易に作製可能なことから高速光変調器などの光デバイスや携帯電話などのSAWフィルタに実用されている¹⁾。そして最近になってキュリー温度が1210°Cと高い (PZT系セラミックスは120~400°C)、高電界を印加しても室温では分極反転しない、大振幅で駆動しても機械的品質係数 Q_m が高い値を保持するなどの性質を利用した高温用強力超音波トランスデューサ²⁾ や圧電トランス³⁾、圧電アクチュエータ⁴⁾ などのハイパワー圧電デバイスも注目されている。ハイパワー特性の評価も行われているが、自己発熱による試料温度の上昇を伴う定電流法が用いられているため、正確なハイパワー特性の評価が行われているとは言い難い⁵⁾。またハイパワー材料評価には必要不可欠な弾性定数、誘電定数、圧電定数及び振動損失パワー密度に関するハイパワー特性は報告されていないようである。このような背景でLNのハイパワー特性の評価を行う。

30年以上前からジルコン酸鉛 PbZrO_3 (PZ) とチタン酸鉛 PbTiO_3 (PT) との2成分固溶体PZTの単結晶作製研究はなされてきたが、未だに2mm角を超える大型結晶育成の成功例はない。この理由はPZTが高温で分解し易いPZを含むためとされている。一方、PZを含まない $\text{Pb}(\text{Sc}, \text{Nb})\text{O}_3$ 、 $\text{Pb}(\text{In}, \text{Nb})\text{O}_3$ 、 $\text{Pb}(\text{Zn}, \text{Nb})\text{O}_3$ などのペロブスカイト構造の緩和型強誘電体と正常強誘電体であるPTとの2成分固溶体は比較的容易にブリッジマン法などで大型結晶 (径>50mm) が得られるようになってきた。そして最近になってこれら2成分固溶体結晶がPZTを遥かに凌ぐ大きな圧電性を示すことが明らかとなって注目されるようになり⁶⁾、医用診断装置用の超音波プローブなどへの応用も始まっている。また、PMN-PT単結晶はナノメートルサイズの極めて微細な強誘電性非180°分域構造を有し、かつその分域壁が外部電界の印加に対して可逆的運動を瞬時に進行する性質を有することが「その場透過型電子顕微鏡観法」により明らかにされている⁷⁾。この事実はPMN-PT単結晶が必ずしもハイパワー用途に適する材料ではないことを示唆している一方、本材料で構成された圧電トランスがハード系PZTを凌ぐ優れたハイパワー特性を示すと言う報告もある⁸⁾。このような背景でPMN-PT単結晶を採り上げ、電氣的過渡応答法を用いて本材料のハイパワー特性を測定評価す

る。そして強誘電性非180°分域壁運動とハイパワー特性との関係を明らかにする。また、ソフト系PZT，ハード系PZT，LN 単結晶との比較でPMN-PT 単結晶のハイパワー材料としての位置付けを明確にする。

7.2 LiNbO₃ (LN)及び Pb(Mg_{1/3},Nb_{2/3})O₃- PbTiO₃(PMN-PT)系単結晶

のハイパワー特性

7.2.1 低振動レベル特性

LN 単結晶振動子には圧電 d_{23} 定数が比較的大きい 128°回転 Y 板 ((株)山寿セラミックス製) の長さ方向縦振動子を用いた。各部の寸法は長さ $l=43\text{mm}$, 幅 $b=7\text{mm}$, 厚さ $t=0.5\text{mm}$ で表裏面全面にわたり金電極膜が形成されている。PMN-PT 単結晶振動子には組成が $0.7\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-0.3\text{PbTiO}_3$ で表される菱面体晶の(100) 板(JFE ミネラル(株)製)を用いた。振動子寸法は長さ $l=35\text{mm}$, 幅 $w=4\text{mm}$, 厚み $d=0.5\text{mm}$, 電極材料は NiCr/Au である。これら単結晶振動子の定電圧法で測定された低振動レベル ($T_m < 1.5\text{MPa}$) での諸特性を表 7-1 に示す。

7.2.2 周波数スペクトル

LN 振動子の定電圧法で測定された低振動レベルでのアドミッタンス $|Y|$ の周波数特性を図 7-1 に示す。周波数 $f=f_{r1}=64.904\text{kHz}$ のピークは第 1 次固有振動、ま

表 7-1 本検討の単結晶材料の圧電特性

特性	LN	PMN-PT
弾性コンプライアンス $s (\times 10^{-12}\text{m}^2/\text{N})$	6.89 (s_{23}^E)	56.8 (s_{11}^E)
比誘電率 (-)	54.7 (K_{22}^T)	5940 (K_{33}^T)
圧電d定数 (pC/N)		
d_{31}	-25.6 (d_{23})	-858
d_{33}	-	1850
機械的品質係数 Q_m	20,300	141
電気機械結合係数 (-)		
k_{31}	0.44 (k_{23})	0.48
密度 $\rho (\text{kg}/\text{m}^3)$	4.05	8.03

た $f=f_{r3}=3f_{r1}=193.710\text{kHz}$ 及び $f=f_{r5}=5f_{r1}=314.529\text{kHz}$ のピークはそれぞれ第 3 次と第 5 次の固有振動に対応している。なお、振動子の表裏面には全面にわたり電極膜が形成されているため、偶数次数の固有振動は励振されない。図 7-2 に

は電氣的過渡応答法で測定された振動速度 v の周波数スペクトルが示されている。 $f=f_{h1}=64.926\text{kHz}$ 以外にもその整数倍の周波数成分 $f=f_{h2}=2f_{h1}=129.867\text{kHz}$, $f=f_{h3}=3f_{h1}=194.793\text{kHz}$ の含まれることが明白であり、これらは弾性的非線形効果で生じた第2及び第3高調波である。なお、 $f=110.412\text{kHz}$, 175.354kHz にも小さなスプリアスが存在するがその原因は明らかではない。

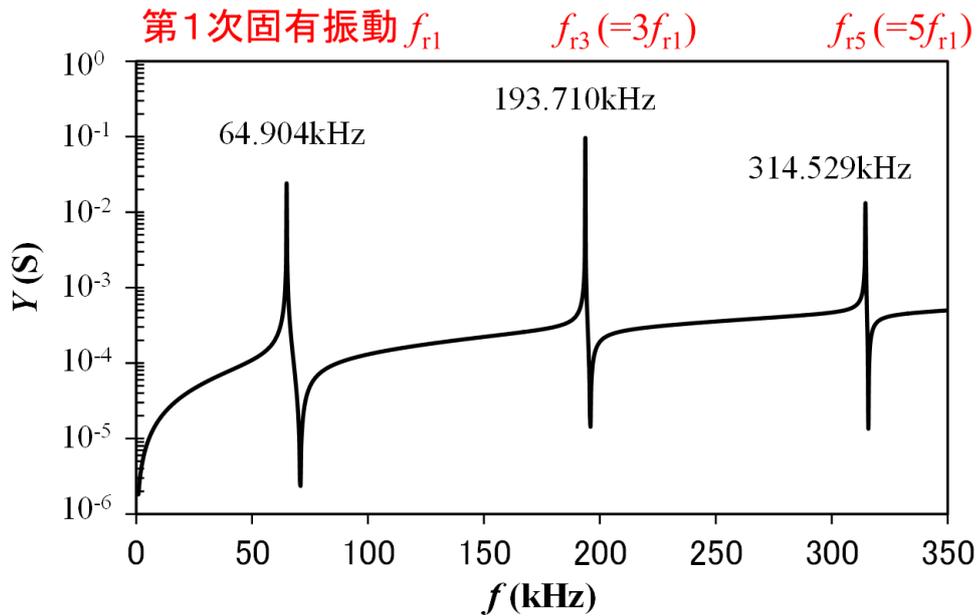


図 7-1 LiNbO₃ 結晶のアドミッタンス Y の周波数特性

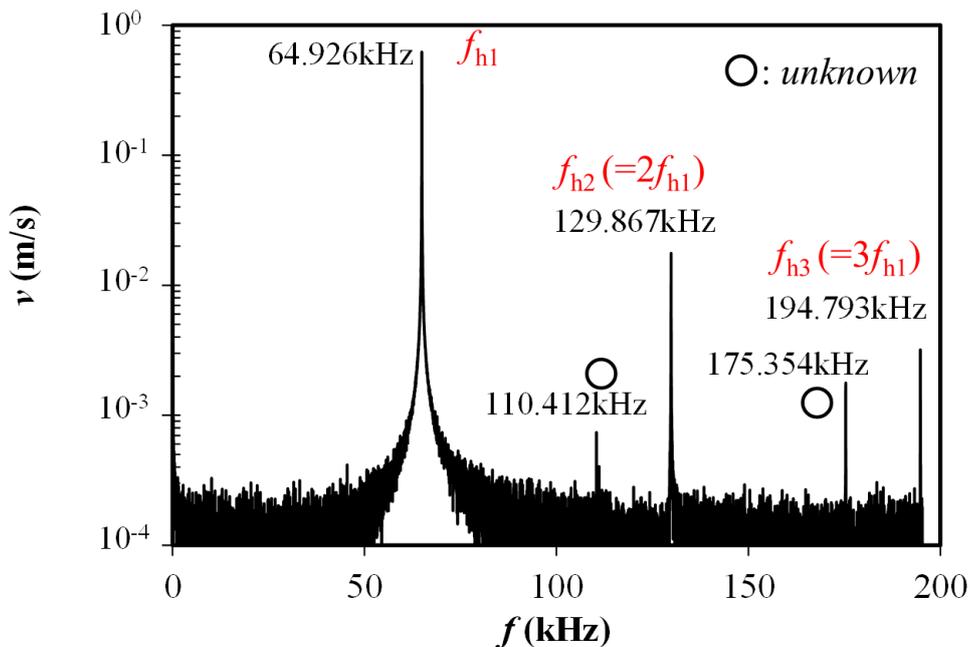


図 7-2 LiNbO₃ 結晶の振動速度 v の周波数スペクトル

PMN-PT 振動子の低振動レベルにおけるアドミッタンス $|Y|$ の周波数特性は図 7-3 に示す。周波数 $f=f_{r1}=21.190\text{ kHz}$ のピークは長さ方向縦振動の基本固有振動、 $f=f_{r3}=3f_{r1}=63.506\text{ kHz}$ 、 $f=f_{r5}\cong 5f_{r1}=103.66\text{ kHz}$ はそれぞれ第3次、第5次固有振動に対応している。振動子の対向する表裏面全面にわたり金属電極膜が施されているためこれも偶数次数の固有振動は励振されない。なお、第5次固有振動周波数が基本固有振動周波数の整数倍から少しずれる理由は幅方向振動との結合振動の影響を受けるためである^{9,10)}。図 7-4、7-5、7-6 にはそれぞれ PMN-PT 振動子の v, i 、電圧 e の周波数スペクトルの解析結果を示す。 v と i に関しては $f=f_{h1}=19.53\text{ kHz}$ を基本波としてその整数倍の周波数成分、 $f=f_{h2}=2f_{h1}=38.94\text{ kHz}$ 、 $f=f_{h3}=3f_{h1}=58.47\text{ kHz}$ 、 $f=f_{h4}=4f_{h1}=78.00\text{ kHz}$ 、 $f=f_{h5}=5f_{h1}=97.53\text{ kHz}$ が観測される。なお、 e には基本調波 f_{h1} 以外の周波数成分が含まれないことから $f_{h2}, f_{h3}, f_{h4}, f_{h5}$ は電氣的に励振された振動ではなく、弾性的非線形効果で生じた高調波としてよい^{9,10)}。また、 f_{h1} が f_{r1} と比較して多少低い値を示す理由は f_{r1} が振動速度 $v_m\sim 0.05\text{ m/s}$ の低振動レベルでの測定値であるのに対して f_{h1} が $v_m\sim 0.9\text{ m/s}$ の比較的高振動レベルでの測定値であることによる¹⁰⁾。

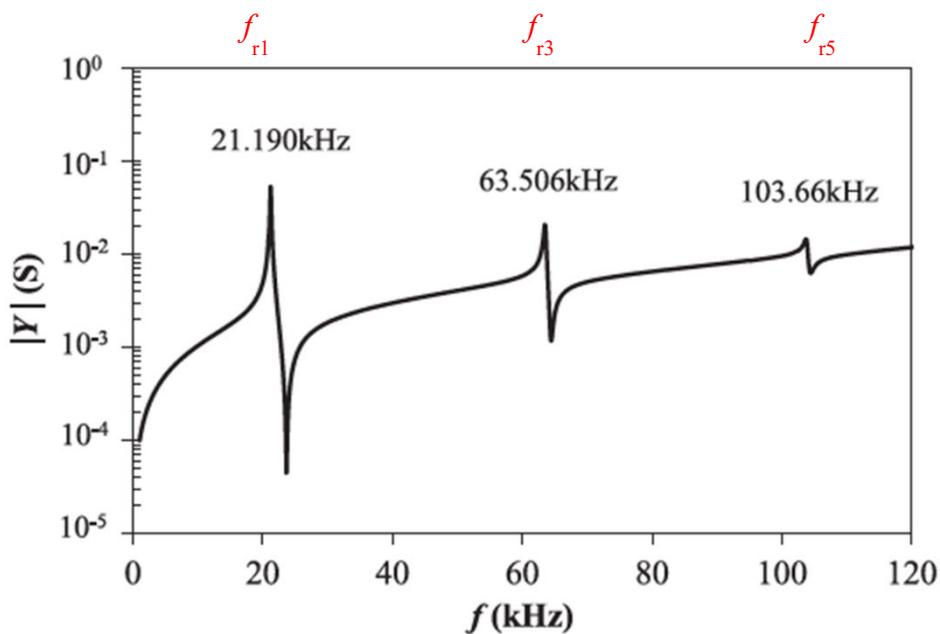


図 7-3 PMN-PT 結晶のアドミッタンス $|Y|$ の周波数特性

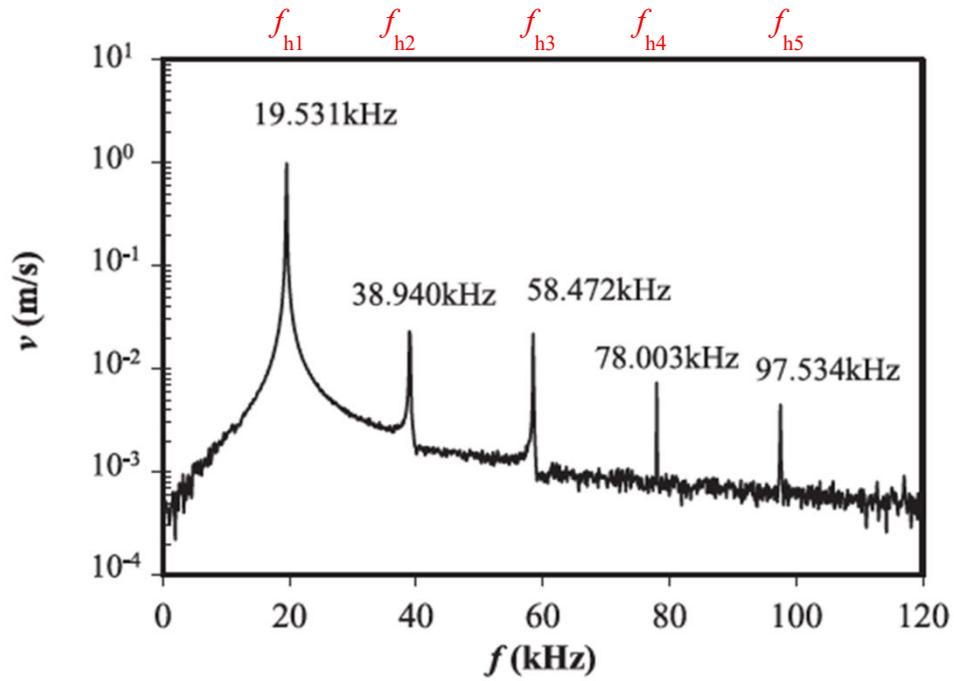


図 7-4 PMN-PT 結晶の振動速度 v の周波数スペクトル

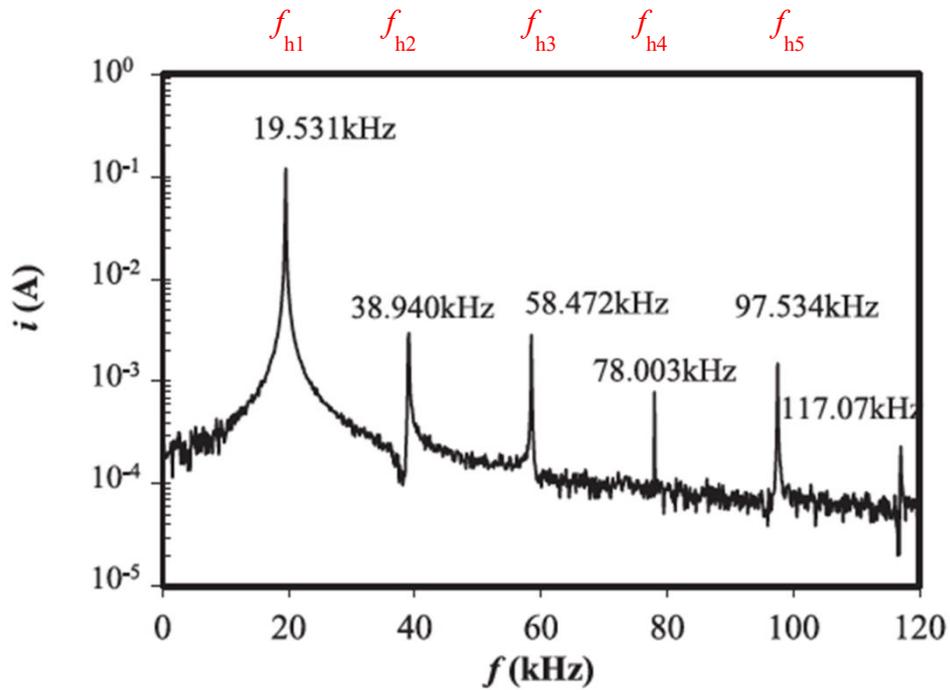


図 7-5 PMN-PT 結晶の電流 i の周波数スペクトル

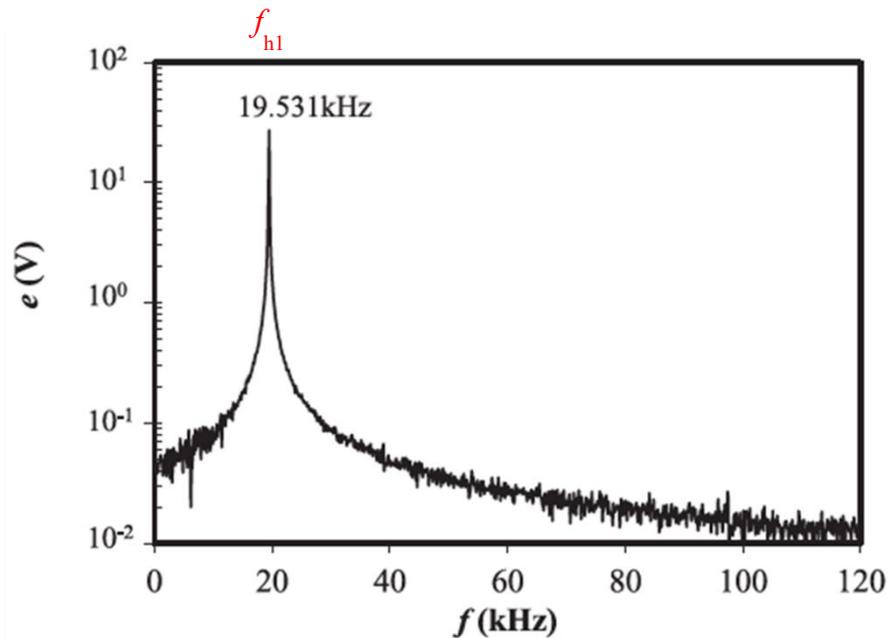


図 7-6 PMN-PT 結晶の駆動用印加電圧の周波数スペクトル

7.2.3 ハイパワー特性（振動レベル特性）

測定された v と i の減衰振動にバンドパスフィルタ処理を施して基本調波成分を抽出し、これを用いて諸定数の振動レベル特性を算出した。図7-7, 7-8, 7-9, 7-10にはLN及びPMN-PTの弾性コンプライアンス $s_{11}^E(s_{23}^E)$, 比誘電率 $K_{33}^T(K_{22}^T)$, 圧電定数 $d_{31}(d_{23})$, 機械的損失 Q_m^{-1} の振動レベル特性をそれぞれ示す。なお、比較のためソフト系PZT(C6), ハード系PZT(C213)の振動レベル特性も同時に示す。まず $s_{11}^E(s_{23}^E)$, $K_{33}^T(K_{22}^T)$, $d_{31}(d_{23})$ の絶対値を比較するとPMN-PT > ソフト系PZT > ハード系PZT > LN の順に大きい。 Q_m^{-1} に関してはソフト系PZTとPMN-PTとの間で大きな差はない。次にこれらの定数が増大を始める振動レベルを比較すると、 $K_{33}^T(K_{22}^T)$ に関しては変化率が小さいため明白ではないが、絶対値が大きい程低振動レベルからその値が増大する傾向にあることが分かる。一般に強誘電性圧電材料の諸特性は結晶構造に由来する本質的寄与分と強誘電性非180°分域壁運動や結晶相変態などに由来する外因的寄与分とから構成されることが知られている¹¹⁾。そしてPMN-PTでは電界印加に対して非180°分域壁が瞬時、かつ容易に可逆的な運動を行う性質を有することが実験的に確認されている⁷⁾。この結晶はPZTと同様に強誘電・強弾性体であることから、応力による分域壁の可逆運動の可能性は論じるまでもない。従ってPMN-PTにおけるこの性質が上記の実験結果に反映されているものと理解される。ソフト系PZTとハード系PZTに対する実験結果の差は、ハード系PZTの

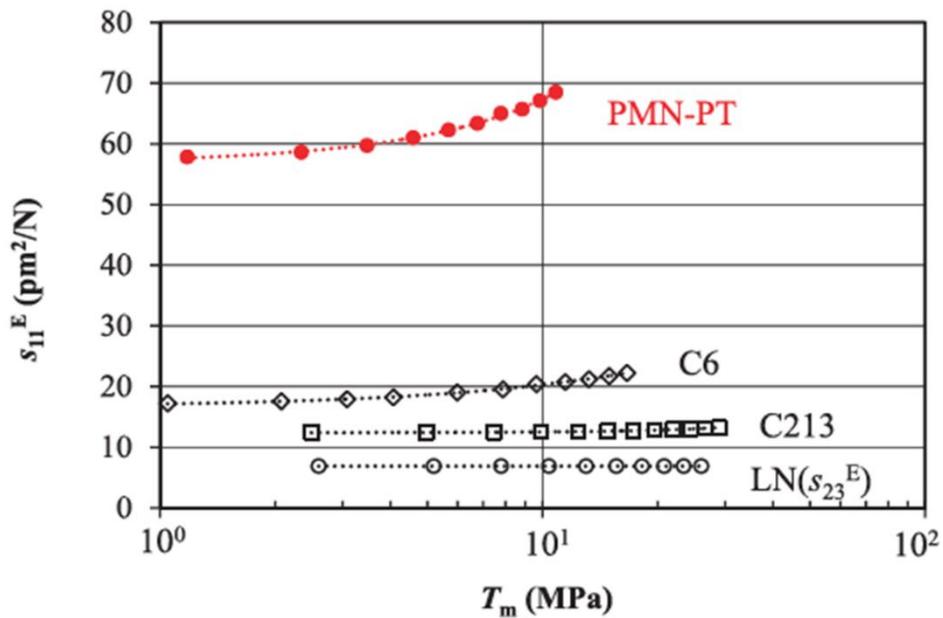


図 7-7 LN と PMN-PT, ハード系 PZT(C213), ソフト系 PZT(C6)の弾性コンプライアンス s_{11}^E の振動応力 T_m 特性比較

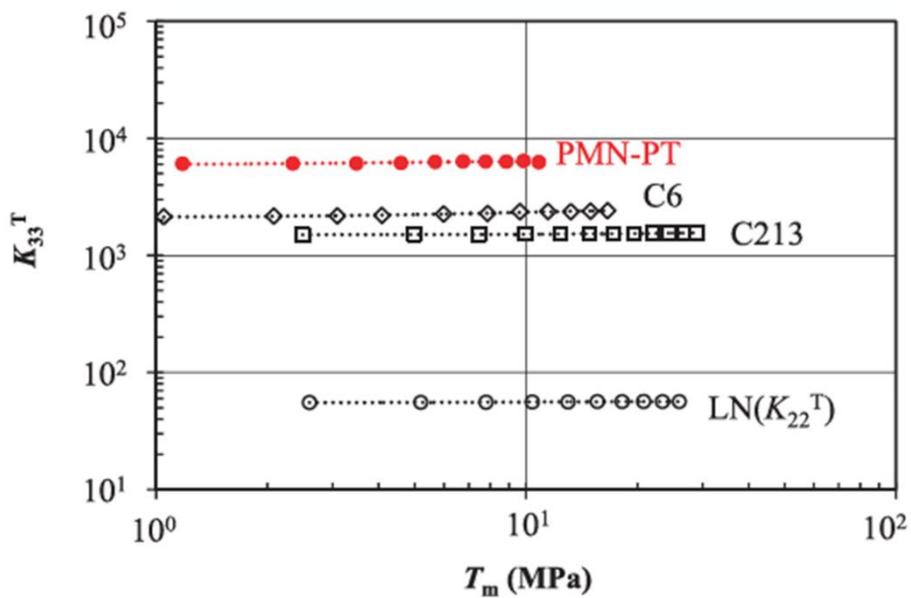


図 7-8 LN と PMN-PT, ハード系 PZT(C213), ソフト系 PZT(C6)の比誘電率 K_{33}^T の振動応力 T_m 特性比較

結晶中に存在するアクセプタ欠陥が分域壁運動を阻害することで生じたものであろう¹¹⁻¹³⁾。また、LN は非180° 分域を含まない単分域構造結晶であるため分

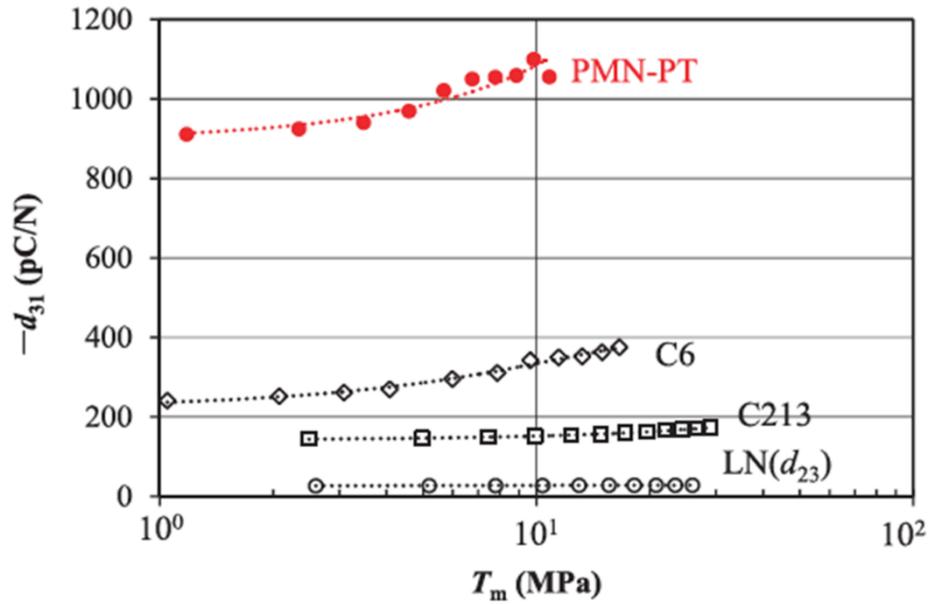


図 7-9 LNとPMN-PT, ハード系PZT(C213), ソフト系PZT(C6)の圧電定数 d_{31} の振動応力 T_m 特性比較

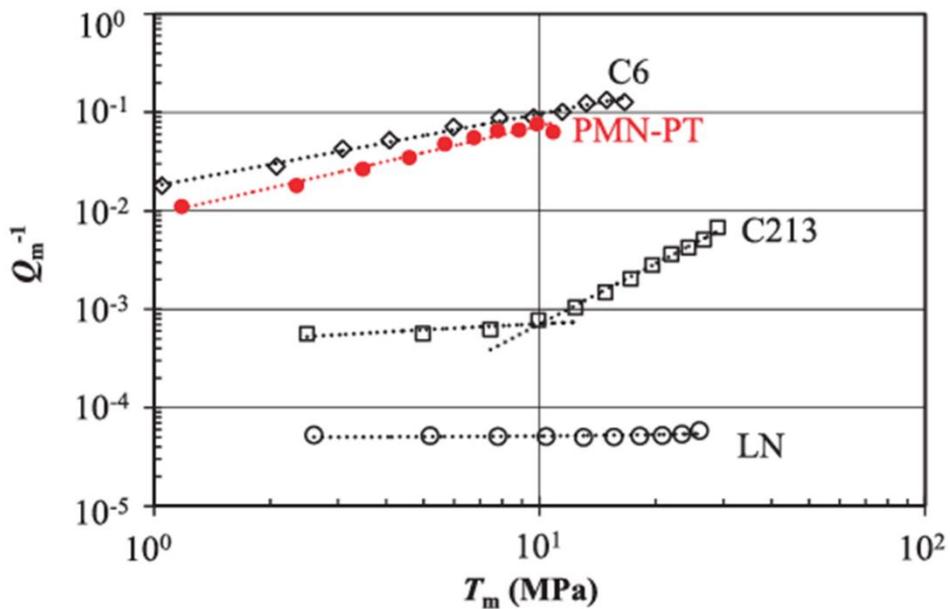


図 7-10 LNとPMN-PT, ハード系PZT(C213), ソフト系PZT(C6)の機械的損失 Q_m^{-1} の振動応力 T_m 特性比較

域壁が存在しない。従ってPZTと比較して分域構造が極めて安定であるため、振動レベル依存性も小さいと考えられる。LNでは Q_m が高く、かつ高振動レベ

ルまで高 Q_m 値が保持されるが、この理由はこの分域構造の安定性が他の材料と比較して極めて高いためと推定される¹⁴⁾。また、PMN-PT はソフト系PZT との比較で s_{11}^E , K_{33}^T , d_{31} に関しては両者の間でかなり大きな相違が見られるが、 Q_m^{-1} に関しては両者の差は小さい。この原因については現時点では不明であり、今後の検討課題としたい。

なお、ここでは振動レベルを表示するパラメータとして応力 T_m を使用したが、デバイス設計などの局面では振動速度 v_m が多用されている。そして振動子の密度を ρ とすれば両者の間には次式の関係が成立する。参考までに図7-11 にその関係を図示しておく。

$$T_m = \sqrt{\frac{\rho}{s_{11}^E}} v_m \quad (7.1)$$

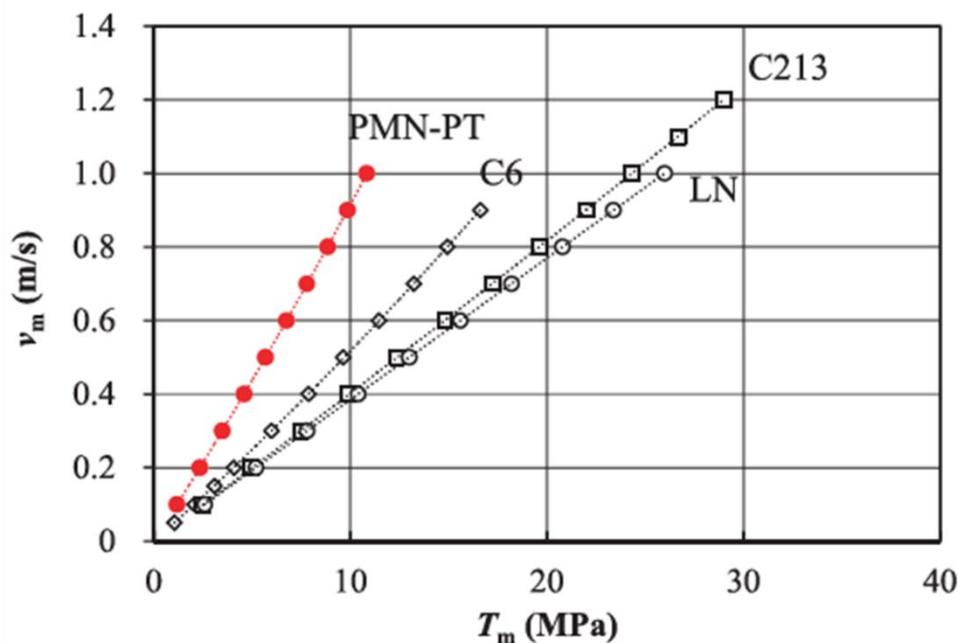


図 7-11 LNとPMN-PT, ハード系 PZT(C213), ソフト系 PZT(C6)に対する振動応力 T_m と振動速度 v_m との関係

7.2.4 振動損失パワー密度

振動損失パワー密度 P_d は振動子の効率を表す指標であり、同時に自己発熱量を表す指標でもある。 P_d が大きくなると振動子の効率が低下し、振動子温度も上昇して特性が不安定化する¹⁵⁻¹⁷⁾。従って圧電材料のハイパワー特性の優劣や実用的振動レベルの上限値は(6.2.4)項で定義された振動損失パワー密度 P_d の大きさに定まることになる。

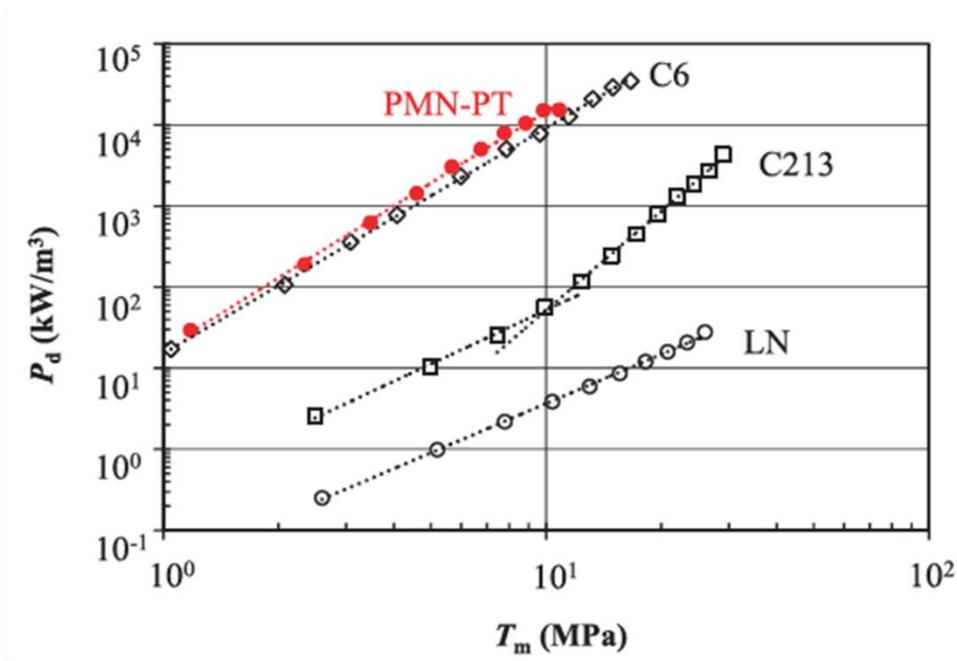


図 7-12 LNとPMN-PT, ハード系 PZT(C213), ソフト系 PZT(C6)の振動損失パワー密度 P_d と振動応力 T_m の関係

図7-12 にはLNとPMN-PT に対する P_d の振動レベル特性がソフト系PZT(C6), ハード系PZT(C213)との比較で示されている。式(6.2) の関係からも明らかのように P_d vs T_m は Q_m^{-1} vs T_m の関係と類似しており, T_m を一定値に固定すると P_d は $LN < \text{ハードPZT(C213)} < \text{ソフトPZT(C6)} \approx \text{PMN-PT}$ の関係が存在する。即ち Q_m^{-1} の小さい材料ほど P_d も小さくハイパワー特性に優れた材料と言える。

図 7-13 には LN と PMN-PT の蓄積機械パワー密度 P_m が P_d に対して表示されている。各材料の P_d を $P_m =$ 一定の断面で比較すると $LN < \text{ハードPZT(C213)} < \text{PMN-PT} \approx \text{ソフト PZT(C6)}$ の順に小さい。この図から材料のハイパワー用途への適否がより一層明確になる。即ち P_d は振動子を電氣的に連続駆動した場合の消費電力に相当する量であることから、一定の蓄積機械パワー密度を得るために必要とされる消費電力が分かる。例えば $1 \times 10^4 \text{ kW/m}^3$ の蓄積機械パワー密度を得る場合を想定すると、LN では約 0.5 kW/m^3 , C213 では約 5 kW/m^3 そして PMN-PT で約 200 kW/m^3 , C6 で約 300 kW/m^3 の電力を消費することになる。この結果は材料のハイパワー用途への適性の順序が LN, C213, PMN-PT, C6 であることを示すものである。またこの図はデバイスの小型化への適性をも示すものであり、一定の振動損失パワー密度に対する蓄積機械パワー密度の高い材料ほど小型化が可能であることを表す。

この結果、PMN-PT の消費電力はソフト系 PZT 並みであり、LN と比較して

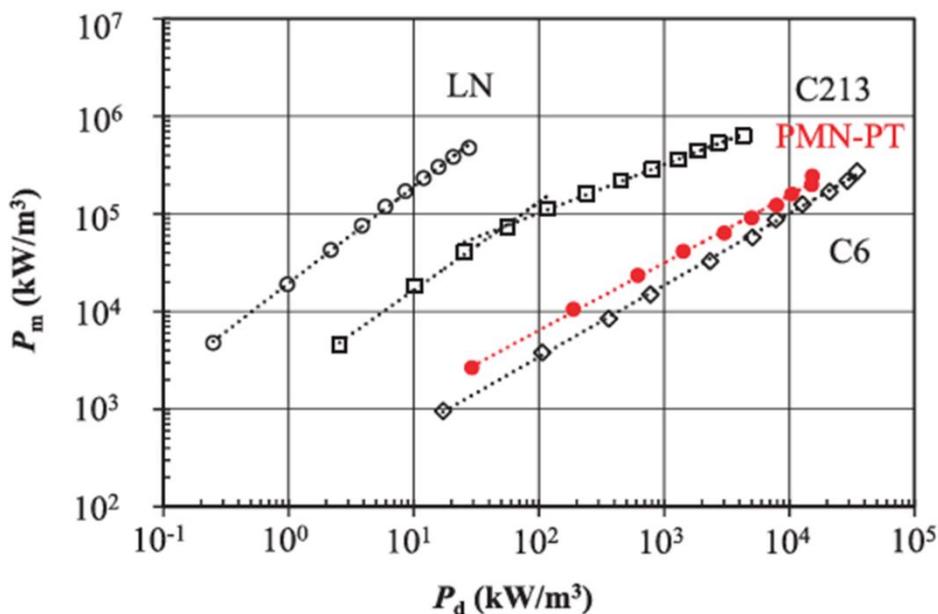


図 7-13 LN と PMN-PT, ハード系 PZT(C213), ソフト系 PZT(C6)の蓄積機械パワー密度 P_m と振動損失パワー密度 P_d との関係

3桁程度大きい。以上の結果から PMN-PT は PZT を凌ぐ極めて大きな圧電性を有する材料ではあるが、そのハイパワー特性はソフト系 PZT 並みであり、LN には遥かに及ばない材料であることが明白である。

第 6 章で論じたようにハード系 PZT (C213) ではアクセプタと酸素空孔とが欠陥双極子を形成し、これが強誘電性自発分極 P_s に配向して分域壁のピン止め効果を発揮し分域構造を安定化させる^{13,18)}。一方ソフト系 PZT (C6) ではドナーがアクセプタ欠陥を補償するように作用して分域構造は不安定になる。この分域構造の安定性の差が諸特性の振動レベル依存性に影響するものと理解される。

一方、LN は PZT と比較して格段に高い振動レベルまで P_d の増大が抑圧されることから、非常に優れたハイパワー用圧電材料と判断される。LN は単分域構造結晶であるため分域壁が存在しない。また室温では外部電界を印加しても分極反転が起こらない性質を有している。即ち LN は物理的に非常に安定であり、これが PZT を凌ぐハイパワー特性を示す理由であろう。

7.3 結言

電氣的過渡応答法を用いて LN 単結晶と PMN-PT 単結晶の圧電的諸特性の振動レベル依存性が測定され、そのハイパワー特性が主に振動損失パワー密度の側面からソフト系及びハード系 PZT セラミックスとの比較で論じられた。そしてハイパワー特性は LN > ハード系 PZT > PMN-PT > ソフト系 PZT の順になる。

LN のハイパワー特性が優れる理由としては、単分域構造の単結晶であることから、多成分固溶体で多分域構造の PZT と比較して結晶構造や分域壁の不安定性に起因する振動損失が少ないことが挙げられる。

非 180° 分域壁の可逆的運動が瞬時かつ容易に起こることが実験的に確認されているリラクサ系強誘電体 PMN-PT 単結晶を用いてハイパワー特性を評価することで、強誘電性圧電材料における応力による非 180° 分域壁の可逆的運動は圧電特性に対してはポジティブに、そしてハイパワー特性に対してはネガティブに影響することが明確となった。PMN-PT 単結晶は PZT 系セラミックスを凌駕する極めて大きな圧電性を示す優れた圧電材料ではあるが、ハイパワー特性の側面からはソフト系 PZT 並みであり、ハード系 PZT, LN 単結晶には遠く及ばない。

これらの結果は今後のハイパワー材料の探索研究及び新材料開発研究に確かで大きな指針を与えるものであろう。

参考文献

- 1) 若月昇, 電子情報通信学会論文誌 **J87-C** (2004) 216.
- 2) 森田剛, 五十嵐学, Proc. 2012 JSME (2012) 27.
- 3) 中村僖良, 安達善徳, 電子情報通信学会論文誌 **J80-A** (1997)1694.
- 4) 川俣昭人, 保坂寛, 森田剛, 精密工学会春季大会講演論文集 (2006) 877.
- 5) 広瀬精二, 高橋貞行, 電子情報通信学会論文誌 **J80-A** (1997) 1621.
- 6) 細野靖晴, 山下洋八, 東芝レビュー **59** (2004) 39.
- 7) Y. Sato, T. Hirayama and Y. Ikuhara, *Phys. Rev. Lett.*, **107** (2011) 187601.
- 8) Y. Zhuang, S. O. Ural, R. Gosain, S. Tuncdemir, A. Amin and K. Uchino, *Appl. Phys. Express*, **2**, 121402 (2009).
- 9) 梅田幹雄, 早野修二, 高橋貞行, 音響学会誌, **72** (2016) 228.
- 10) 梅田幹雄, 早野修二, 高橋貞行, 音響学会誌, **72** (2016) 678.
- 11) L. E. Cross, Edts. N. Setter and E. L. Colla, “Ferroelectric Ceramics” (Birkhauser Verlag, Basel/ Boston/ Berlin, 1993)
- 12) S. Takahashi, *Ferroelectrics*, **41** (1982) 143.
- 13) 高橋貞行, 超音波テクノ誌, **27** (2015. 3-4) 97.
- 14) 早野修二, 梅田幹雄, 高橋貞行, 音響学会誌, **72** (2016) 456.
- 15) S. Takahashi and S. Hirose, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31** (1992) 3055.
- 16) M. Umeda, S. Takahashi, Y. Sasaki, K. Nakamura and S. Ueha, *Electron. Commun. Jpn.*, Part 2, **83** (2000) 1.
- 17) 広瀬誠二, 高橋貞行, 信学論 A, **J80-A** (1997) 1621.
- 18) S. Takahashi, *Ferroelectrics*, **41** (1982) 143.

第8章 電歪セラミックスのハイパワー特性

8.1 緒言

斜方晶系の緩和型強誘電体であるマグネシウム・ニオブ酸鉛 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ (PMN)と正方晶系の正常強誘電体であるチタン酸鉛 PbTiO_3 (PT)との2成分固溶体結晶 $x\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-(1-x)\text{PbTiO}_3$ ($x\text{PMN}-(1-x)\text{PT}$)は前章でも論じたように結晶相境界 MPB ($x \sim 0.32$) 付近の組成領域で極めて大きな圧電性を示す。しかし $x > 0.95$ ではキュリー温度が室温以下となり、室温では常誘電的に振る舞う。従って室温では圧電効果は示さないが、大きな電歪効果を示す材料であることが知られている。そして、この電歪効果を利用した電気機械振動子が極めて高い機械的品質係数 Q_m ($\sim 10,000$)を有することから¹⁾、優れたハイパワー用材料になることが期待される。

上記の視点に立ち、本章では市販の PZT 系圧電セラミックス N8, N81, N10 と比較しながら $x\text{PMN}-(1-x)\text{PT}$ 電歪セラミックスのハイパワー特性を論じる。

8.2 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbTiO_3 セラミックスの電歪効果

図 8-1 には $x\text{PMN}-(1-x)\text{PT}$ 電歪セラミックスの 1kHz の周波数で測定された比誘電率 ϵ_r の温度特性が示されている²⁾。PMN/100, PMN/95, PMN/90 はそれぞれ PMN のモル分率 x が $x=1.00$, $x=0.95$, $x=0.90$ の組成セラミックスであること

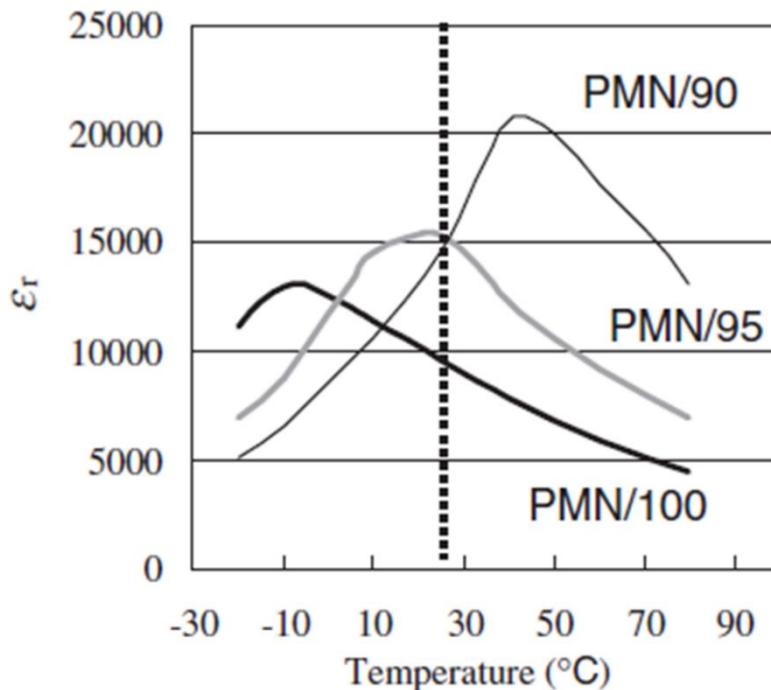


図 8-1 $x\text{PMN}-(1-x)\text{PT}$ 材の比誘電率 ϵ_r の温度特性

を示している。PMN/100 では、 -9°C 付近の温度で ϵ_r はピークを示すが、そのピークは正常強誘電体と比べてブロードであり、この性質は緩和型強誘電体の特徴の一つとされている。従って、PMN/100 は室温付近では常誘電体である。PT のモル分率が増すとピーク温度が高温側にシフトし、同時にピークはシャープになる。PMN/95 の ϵ_r のピークは室温付近にあるが、PMN/90 ではそのピークは 45°C 付近まで上昇するため、PMN/90 は室温では強誘電性を呈する可能性が高い。

図 8-2 には 1Hz の交流電界を印加して測定された室温における P-E ヒステリシスループが示されている。PMN/100 は非常にスリムな形状をしていることから常誘電体と見なせる。しかし、PMN/90 では $7.1\mu\text{C}/\text{cm}^2$ の残留分極を有する強誘電体特有のヒステリシスを示すことからこの組成は強誘電体と見なされる。一方 PMN/95 のヒステリシスの形状は PMN/100 と PMN/90 との間中間的な形状であり、常誘電体状態と強誘電体状態との中間的な状態にあると推定される。そしてこの結果は誘電率の温度特性の結果と符合している。

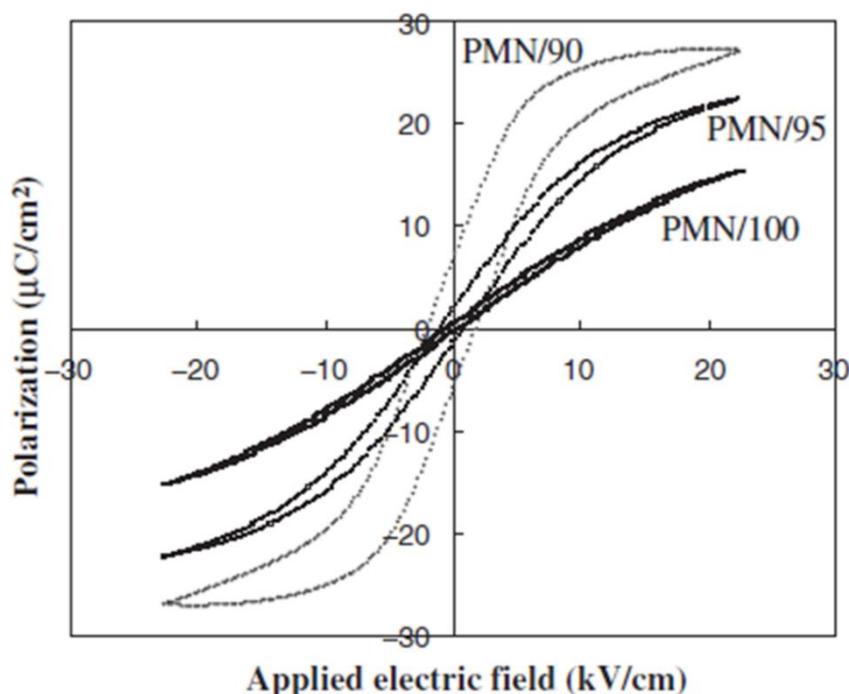


図 8-2 $x\text{PMN}-(1-x)\text{PT}$ 材の P-E ヒステリシスループ

圧電ひずみは印加電界の符号を変えると発生ひずみの符号も変わる。一方電歪は印加電界の符号とは無関係であり、電界と平行方向には常に伸びひずみが、垂直方向には常に縮みひずみを生じる。そして圧電ひずみは電界に比例するが、電歪は電界の 2 乗に比例する。

図 8-3 には $1/120\text{Hz}$ の交流電界を印加して室温中で測定された PMN/100, PMN/95, PMN/90 のひずみ S_1 -電界 E ヒステリシスが示されている。測定用試料

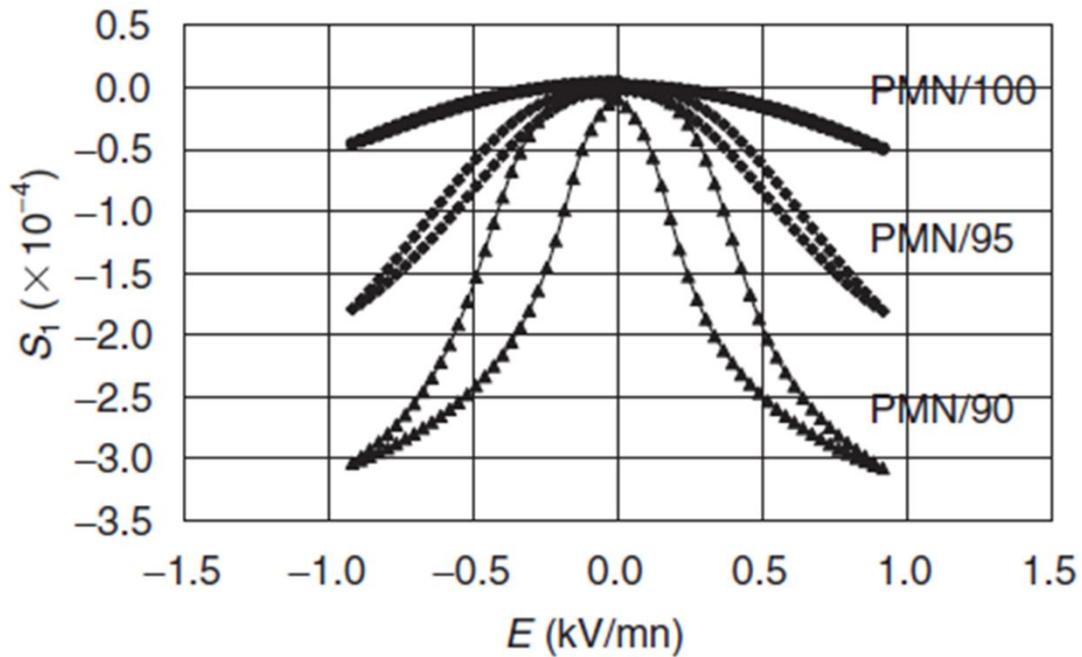


図 8-3 x PMN-(1- x)PT 材の歪み S_1 -電界 E ヒステリシス

は長さ $l=30\text{mm}$ 、幅 $b=4.6\text{mm}$ 、厚さ $t=1\text{mm}$ の矩形板状の電歪振動子が用いられた。上下面には全面にわたり銀電極膜が施されている。電界は厚さ方向に印加され、長さ方向の縮みひずみ S_1 が測定された。PMN/100 は履歴の極めて小さい典型的な電歪効果による電界の 2 乗に比例したひずみを発生している。PT のモル分率が増すと履歴が大きくなりひずみも増大する。ただ残留ひずみ ($E=0$ のひずみ) は極めて小さいことから、圧電材料と同様の方法で微小な交流電界を印加して大振幅振動を発生させることは困難である。しかしながら微小交流電界の重畳された直流バイアス電界 E_b を印加すれば、圧電ひずみと同様に大振幅振動の励振が期待される。

図 8-4 では S_1 - E ヒステリシスの勾配から算出した電界上昇時のひずみ係数 S_1/E を圧電ひずみ定数 d_{31} と見立て、これを直流バイアス E_b の関数で示している。PMN/100 では d_{31} は E_b の増大に伴って大きくなる。PMN/95 と PMN/90 では各々 $E_b=0.6\text{kV/mm}$ 及び 0.4kV/mm 辺りでピーク値をとり、その後減少に転じる。そしてピーク値はハード系 PZT と同程度の値を示す。

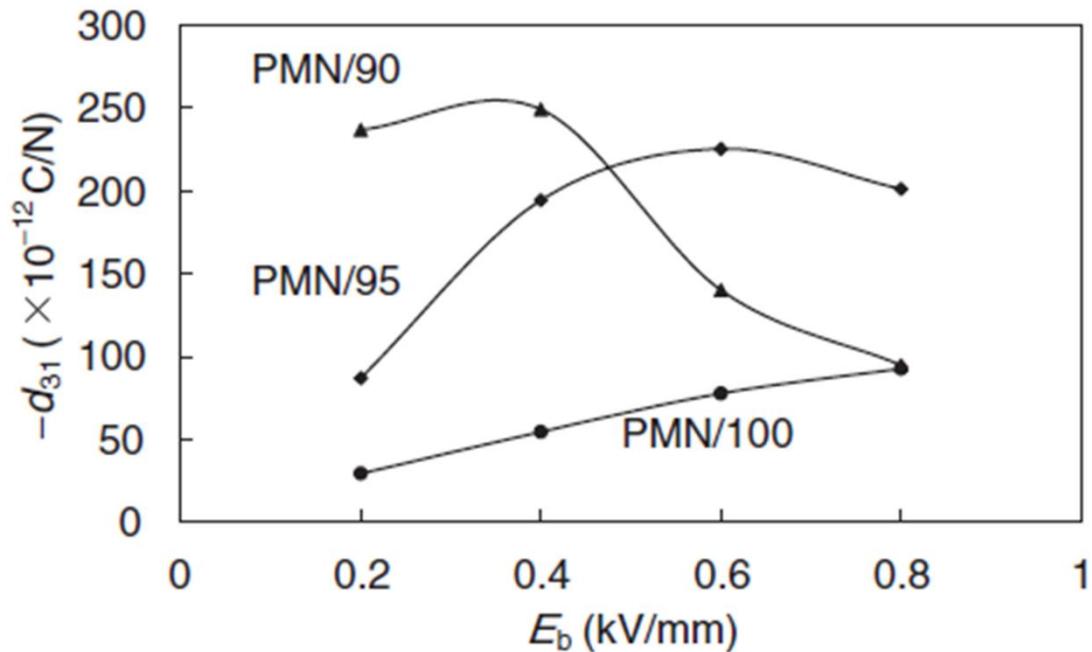


図 8-4 x PMN-(1- x)PT 材における圧電歪定数 d_{31} に与える直流バイアス E_b の影響

8.3 ハイパワー特性

8.3.1 低振動レベル特性

直流バイアス電界 $E_b=0.2\text{kV/mm}$ を印加して PMN/100, PMN/95, PMN/90 の低振動レベル ($T_m < 3\text{MPa}$) における諸特性が測定された。その結果を表 8-1 に示す。(株) トーキン製ハード系 PZT である N8 材及びソフト系 PZT である N10 材(表 1-4) と比較すると PMN-PT 系電歪セラミックスは弾性コンプライアンス s_{11}^E が小さ

表 8-1 低振動レベルで測定した電歪材料の諸特性

	PMN/100	PMN/95	PMN/90
弾性コンプライアンス s_{11}^E ($\times 10^{-12}\text{m}^2/\text{N}$)	8.3	9.4	10.3
比誘電率 K_{33}^T	9,500	15,100	14,800
圧電 d_{31} 定数($\times 10^{-12}\text{C/N}$)	-25	-55	-110
機械的品質係数 Q_m	12,000	360	90

* 直流バイアス電界 $E_b=0.2\text{kV/mm}$ を印加して測定

い。即ち弾性的に硬いと言える。一方誘電率は桁違いに大きく電気的には軟かい。圧電 d_{31} 定数はハード系 PZT 並みかそれ以下である。そして特徴的なことは PMN/100 の Q_m が 12,000 という極めて高い値を示すことである。しかし PMN/95, PMN/90 の Q_m は数百以下でソフト系 PZT に近い。

8.3.2 ハイパワー特性

前項で論じた材料に N81 材 ((株)トーキン製ハード系 PZT) を加えハイパワー特性が測定された。図 8-5、8-6 には s_{11}^E , d_{31} の T_m 依存性が示されている。ソフト系 PZT である N10 材は低振動レベルから振動レベルの上昇とともに増大するが電歪セラミックスでは振動レベル依存性はかなり小さいことが分かる。図 8-7 には、 Q_m の T_m 依存性が示されている。ここでも N10 は低振動レベルからの低下が認められる。また、N8 も振動レベルと共に低下することが認められるが、N81 はかなり高い振動レベルまで 1000 以上の値が保持されている。一方 PMN/100 では、 T_m が 30MPa を超える高振動レベルにおいてもなお極めて高い値が保持されることが明らかである。

振動子の発熱の原因そのものである振動損失パワー密度 P_d に対する振動レベル依存性を図 8-8 に示す。N10 では極めて低い振動レベルから P_d は急激に立ち上がる。PMN/90、PMN/95 もかなり低い振動レベルから立ち上がっている。これは Q_m の初期値が数百以下と低いためであろう。一方 PMN/100 はハード系 PZT N81、N8 と比較しても高振動レベルまで P_d の値が低く抑えられている。このことは、PMN/100 が非常に大きな Q_m を持ちその値が高振動レベルまで保持れることに対応している。

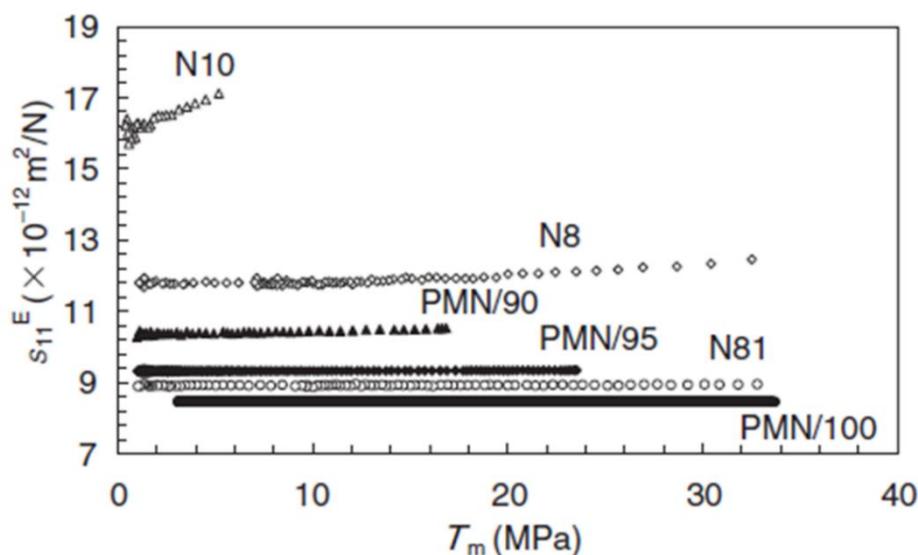


図 8-5 x PMN-(1- x)PT 振動子の弾性コンプライアンス s_{11}^E に与える振動応力 T_m 依存性

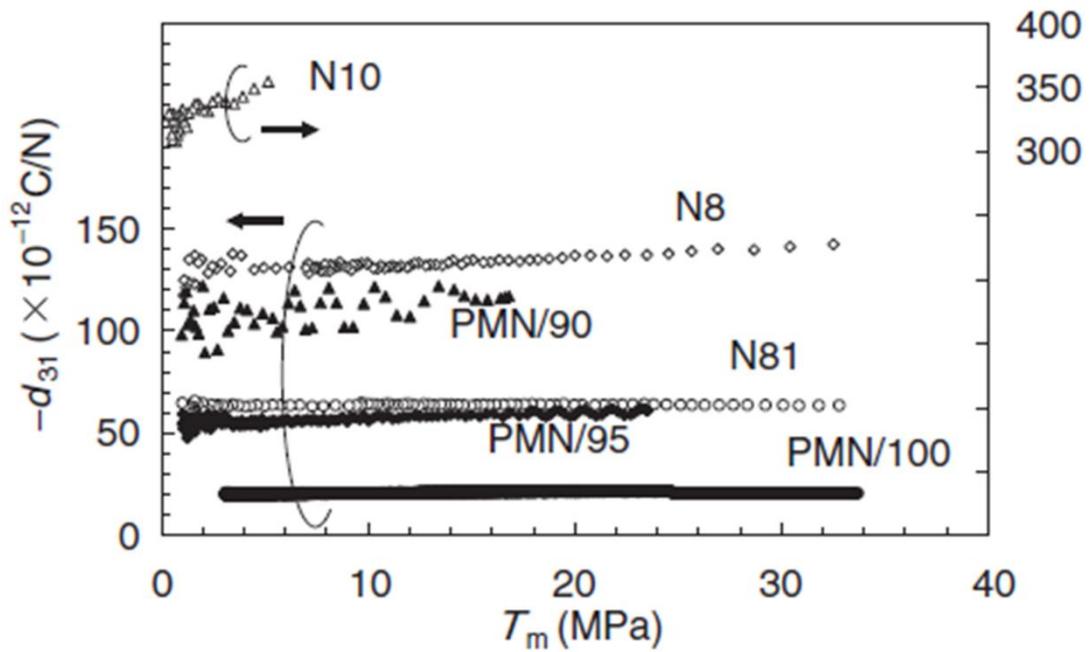


図 8-6 $x\text{PMN}-(1-x)\text{PT}$ 振動子の圧電歪定数 d_{31} に与える振動応力 T_m 依存性

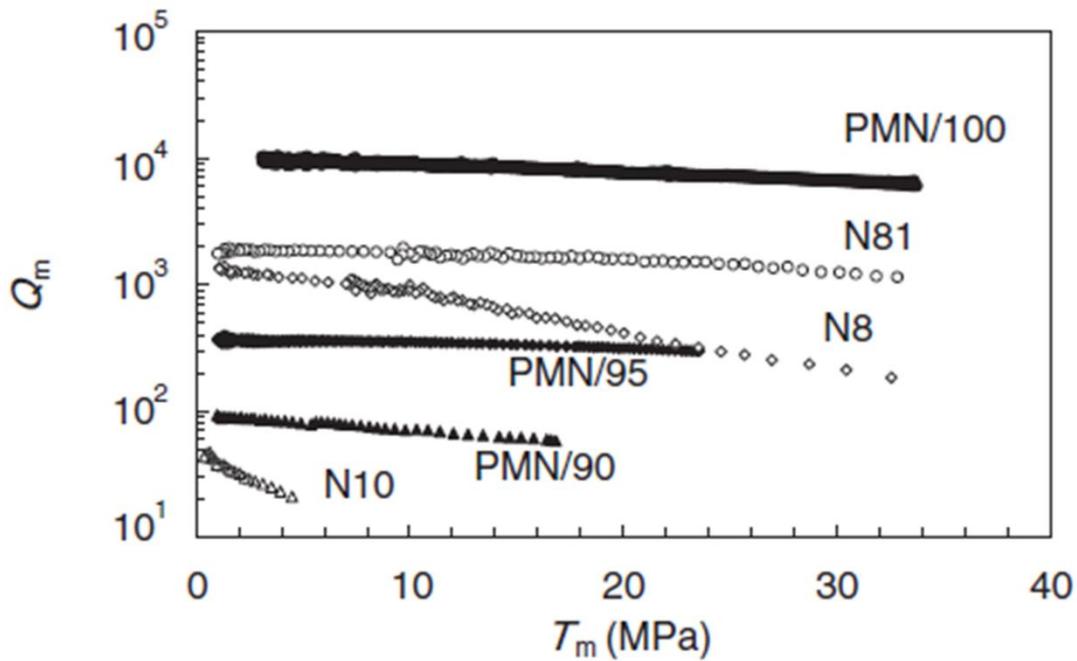


図 8-7 $x\text{PMN}-(1-x)\text{PT}$ 振動子の機械的品質係数 Q_m に与える振動応力 T_m 依存性

PMN/100 のハイパワー特性が印加直流バイアス電界の値を変えて測定された。図 8-9、8-10 には d_{31} と Q_m に対する結果が示されている。 d_{31} は E_b に比例して直線的に増大する。そして $E_b=0.7\text{kV/mm}$, $T_m=25\text{MPa}$ の場合には $d_{31}\approx 82\text{pC/N}$ となり

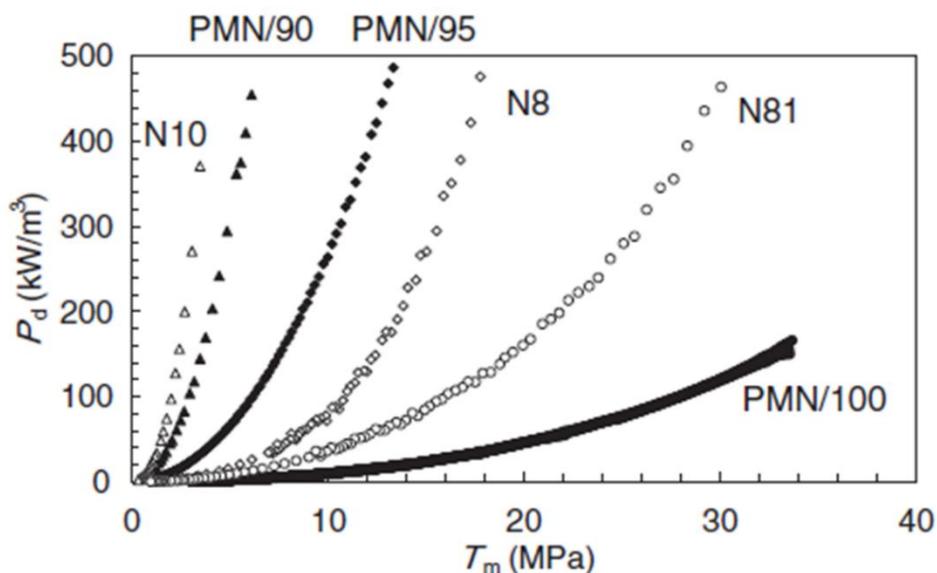


図 8-8 $x\text{PMN}-(1-x)\text{PT}$ 振動子の振動損失パワー密度 P_d の振動応力 T_m 依存性

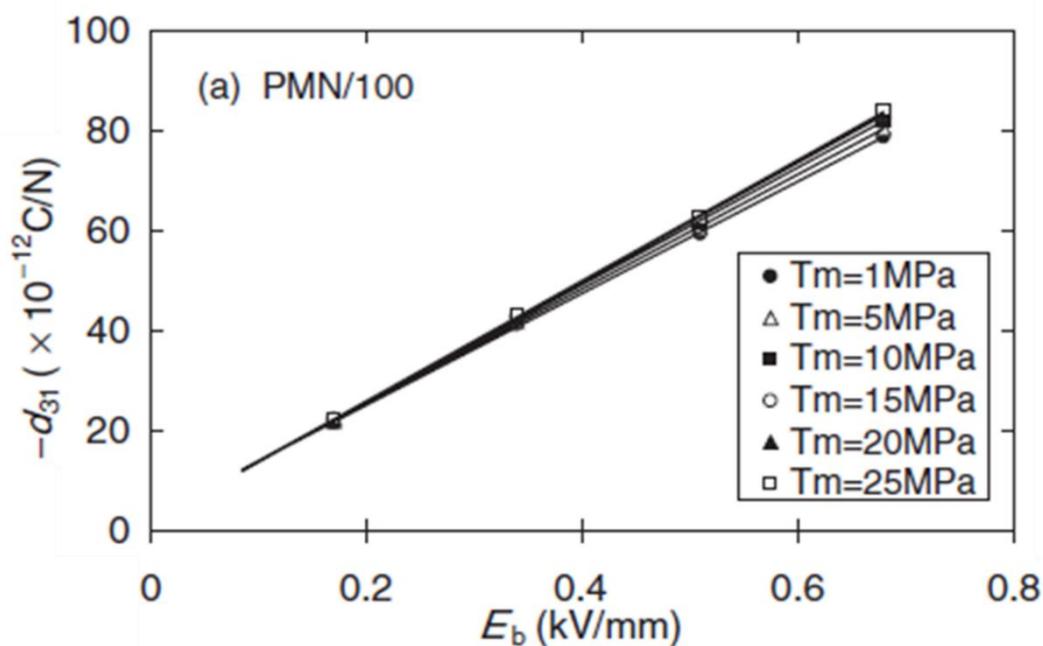


図 8-9 PMN/100 振動子の圧電歪定数 d_{31} に与える直流バイアス E_b の影響

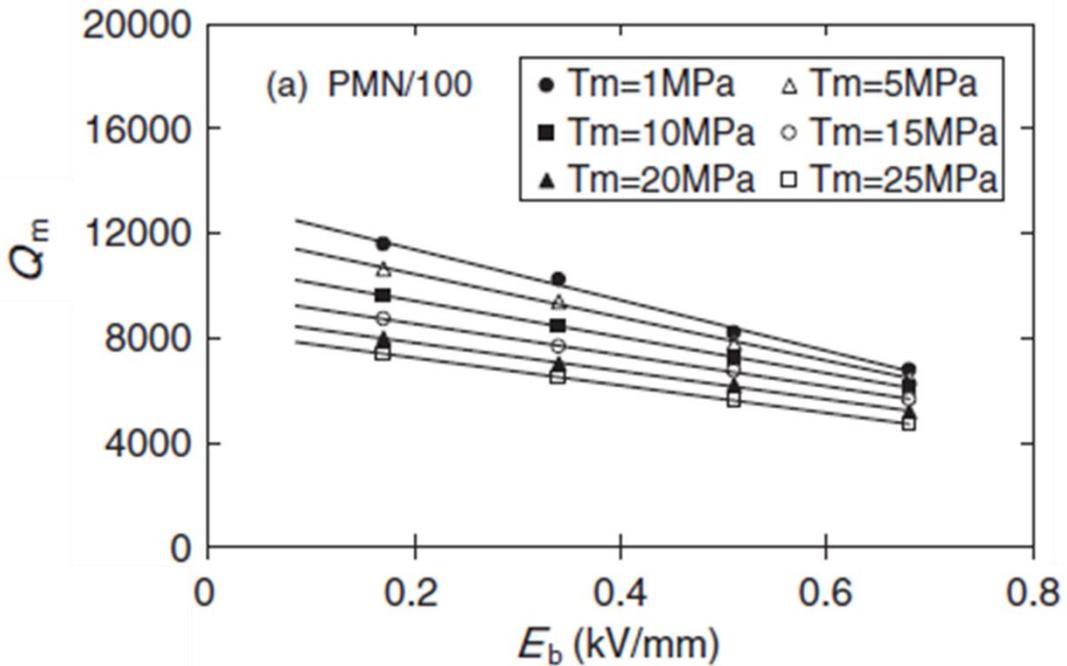


図 8-10 PMN/100 振動子の機械的品質係数 Q_m に与える直流バイアス E_b の影響

ハード系 PZT にせまる値を示した。また Q_m に関しては E_b が大きくなるに従い低下するが、 $E_b=0.7\text{kV/mm}$ 、 $T_m=25\text{MPa}$ の場合、高振動レベルでもなお Q_m は 5,000 を超す高い値を維持しており、ハード系 PZT の値を大きく上回った。従って、本セラミックスがエネルギー損失の著しく少ない材料であることが改めて確認される。

上記結果より、蓄積される振動エネルギーを求めた。蓄積機械エネルギー密度 U は、(8.1) 式で定義される³⁾。

$$U = \frac{1}{\rho} \left[\frac{2Q_m d_{31} e}{\omega_r s_{11}^E X} \right]^2 \quad (8.1)$$

Q_m : 機械的品質係数 d_{31} : 圧電定数 e : 駆動電圧 ω_r : 角共振周波数
 s_{11}^E : 弾性コンプライアンス X : 素子長さ ρ : 密度

図 8-11 には、PMN/100 に対する蓄積機械エネルギー密度 U が直流バイアス E_b の関数で示されている。駆動電圧 e が 0.1 V/mm ($T_m=1\text{ MPa}$) の低振動レベルでは、 E_b の U に対する影響は小さい。しかし、 $e=0.6\text{ V/mm}$ ($T_m=25\text{ MPa}$) の振動レベルに達すると、 E_b に応じて U が増大することが判明した。これは本材料がある程度の振動レベル下では、印加直流バイアスに比例する形で機械エネルギーが

蓄積されることを意味する。

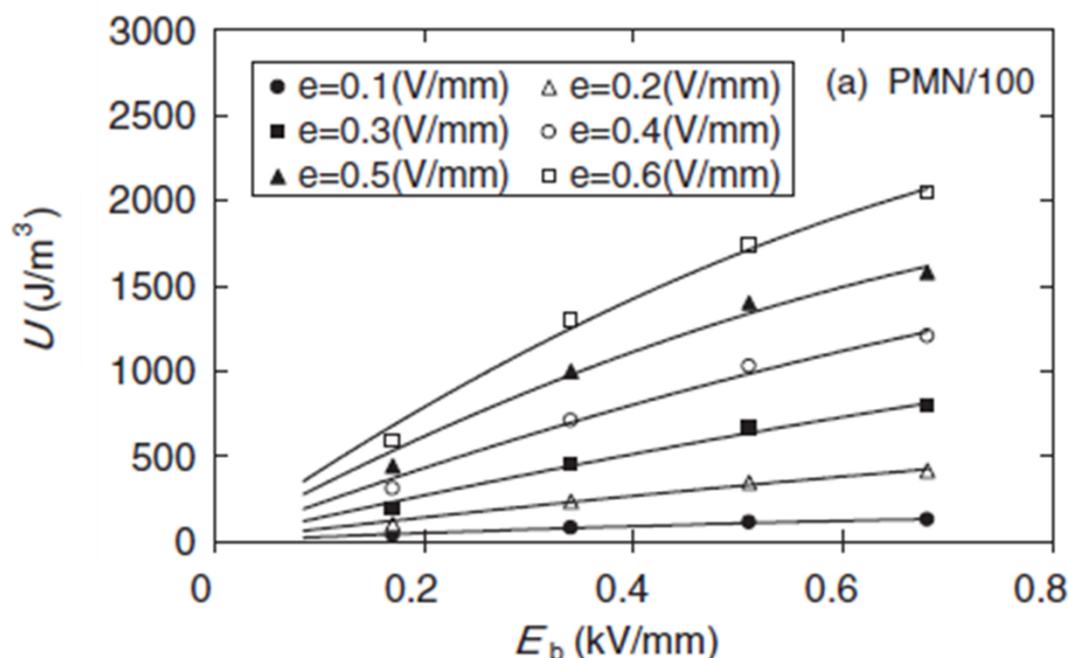


図 8-11 PMN/100 材に蓄積機械エネルギー U に与える直流バイアス E_b の影響

8.4 結言

PMN-PT系電歪セラミックスの直流バイアス下における振動レベル依存性が評価された。PMN/100では $T_m=25$ MPaのかなり高振動レベルで駆動された場合でも、 Q_m は従来のハード系PZTの値と比較してはるかに大きな5,000以上の値を示した。さらに d_{31} も82 pC/Nと高い値が得られた。このことは2000 J/m³を超える機械エネルギーが蓄積されることを意味する。従ってPMN-PT系電歪セラミックスは、大振幅振動が励振されても発熱が抑えられた状態で大きな機械的エネルギーの蓄積が可能であり、ハイパワー用途に適した材料と言えよう。

参考文献

- 1) Y. Tsuchiya, K. Uchino, and S. Nomura, Jpn. J. Appl. Phys., **20** (1981) 1841.
- 2) S. Hayano, S. Takahashi, M. Umeda and T. Wada, Jpn. J. Appl. Phys., **44** (2005) 7024.
- 3) S. Hayano, M. Umeda, S. Takahashi and T. Wada, Jpn. J. Appl. Phys., **46** (2007) 4454.

第9章 各種圧電・電歪材料のハイパワー特性比較

9.1 緒言

本研究では、圧電・電歪振動子として高い振動レベルでも振動子自体からの発熱が少なく、高い振動エネルギーの蓄積を可能とするハイパワー用材料を探索することを大きな目的としている。

また、ハイパワー用材料を物性論的観点から論じることにも目的の一つである。圧電体に電界、応力を加えたときに発生する歪は、本質的な部分 (Intrinsic) と外因性部分 (Extrinsic) に分かれる (表 9-1)。特にこの外因性部分における強誘電性結晶の非 180°ドメイン壁や固溶体の相境界の運動が振動損失に大きな影響を与えるものと推定されることから、ドメイン壁の動きが異なる材料を研究用試料として選定を行っている (表 9-2)。

表 9-1 ハイパワー特性に与える圧電応答の影響¹⁾

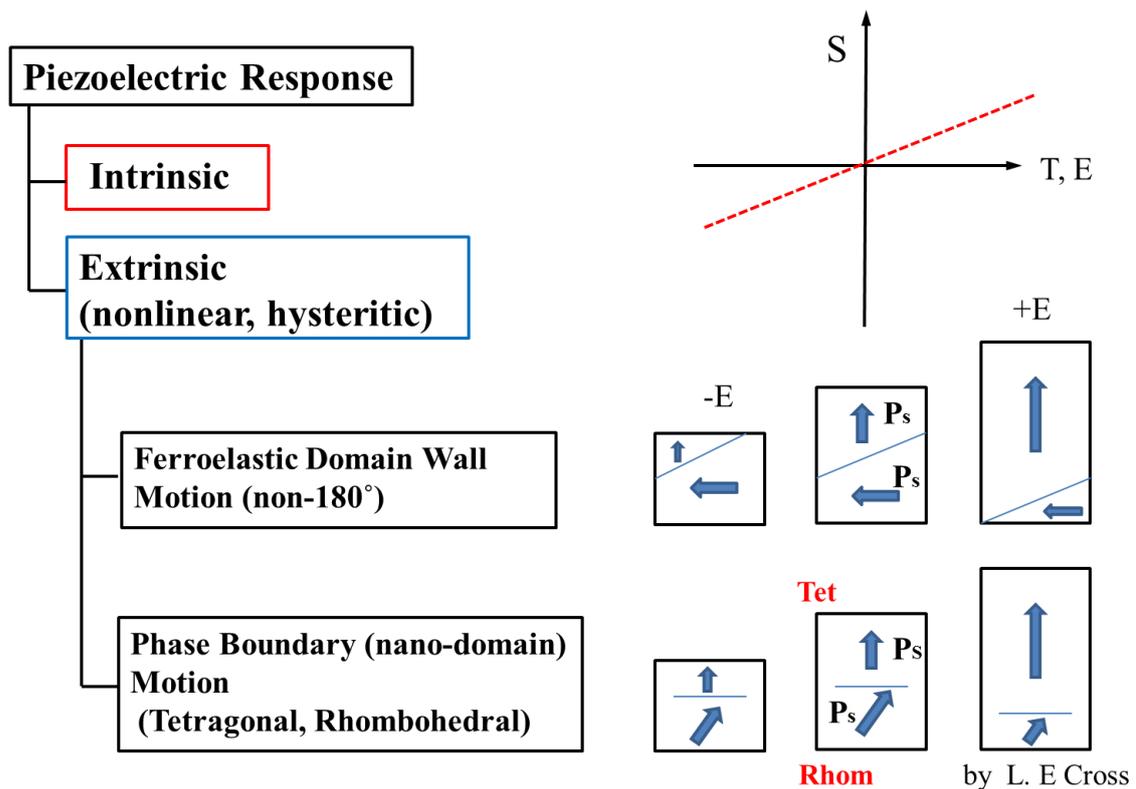


表 9-2 各圧電材料における圧電応答について

Material	Contribution	Intrinsic	Extrinsic	
			Non-180° Wall Motion	Phase Boundary Motion(Nano Domain)
LiNbO ₃ Single crystal		○		
Pb(Mg, Nb)O ₃ -PbTiO ₃ Single crystal		○	○	
Hard PZT Ceramics		○	△ (pinning)	○
Soft PZT Ceramics		○	○	○
Pb(Mg, Nb)O ₃ Ceramics		○		

ハード系 PZT に対してはアクセプタ元素によるドメイン壁のピン止め効果を期待して、Pb(Mn, Sb)O₃ を第 3 成分とする PZT 系セラミックスが選定された。LN 単結晶は非 180°ドメイン構造を持たない単分域構造結晶である理由で選定された。また非 180°ドメイン壁の可逆的運動が瞬時かつ容易に起こることが知られている材料として PMN-PT 単結晶が選定された。PMN 系電歪セラミックスは室温近傍では常誘電体であり強誘電性ドメイン構造をもたないことが選定理由となっている。KNN は最近注目されている非鉛系圧電セラミックス中において実用化の期待されているセラミックスであることが選定理由である。

本章では選定され材料について、電氣的過渡応答法を利用して測定されたハイパワー特性、特に振動損失パワー密度 P_d の測定結果からハイパワー用材料としての適否を論じる。

9.2 各材料のハイパワー特性比較

先に選定され材料について、電氣的過渡応答法を利用して測定されたハイパワー特性（振動損失パワー密度 P_d ）を図 9-1、表 9-3 にまとめて示す。

高振動レベル下（振動応力 $T_m=10\text{MPa}$, 20MPa ）における振動損失パワー密度 P_d は以下の順になる。

LN 単結晶 < PMN 系電歪セラミックス < PMS-PZ-PT(ハード系 PZT)セラミックス < C213(ハード系 PZT) < KNN セラミックス < C6(ソフト系 PZT)セラミックス < PMN-PT 単結晶

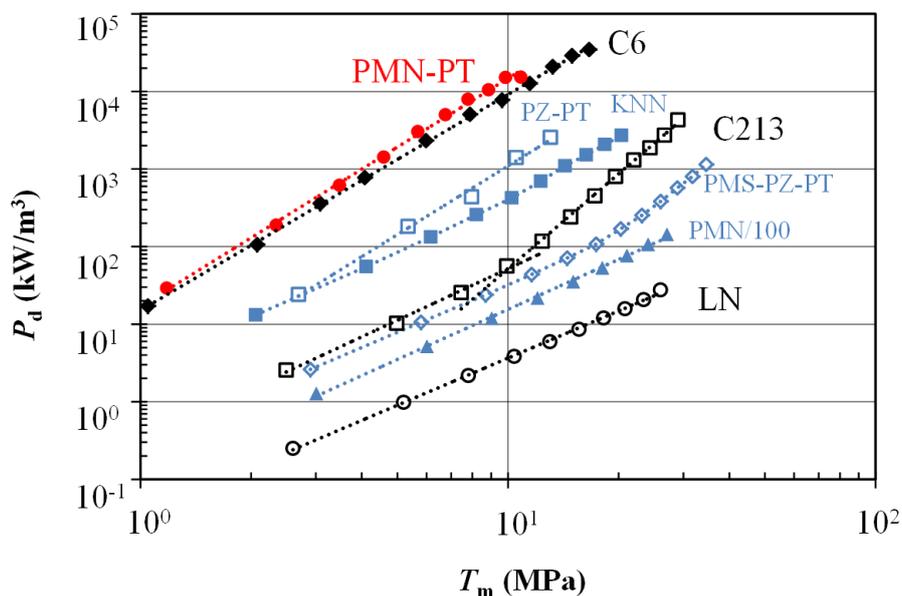


図 9-1 各材料の高振動レベルにおける振動損失パワー密度(P_d)の比較

表 9-3 高振動レベルで計測した圧電特性を含むハイパワー特性

	No.	P_d (kW/m ³)		d_{31} (pC/N)	
		10MPa	20MPa	10MPa	20MPa
多結晶	C6 (soft-PZT)	8,000	>10,000	-350	-
	C213 (hard-PZT)	70	1,000	-160	-170
	0.075PMS- 0.45PZ-0.475PT	60	300	-130	-140
	KNN	720	6,500	-20	-25
単結晶	LiNbO ₃	4.0	13	-20	-20 (d_{23})
	0.7PMN-0.3PT	>10,000	-	-1,100	-
電歪	PMN/100	15	80	-80	-80

* 電歪材の値は、直流バイアスを0.7kV/mm 印加

ここで最も損失の小さい材料はLN単結晶である。LNは損失の主たる原因となる非180°ドメイン壁を含まない単分域構造結晶であり、ドメイン構造の安定性が優れたハイパワー特性を示すもとになっている。一方このドメイン構

造の安定性は、圧電 d 定数が 20pC/N と小さくハード系 PZT のそれと比べてもかなり大きな差がつく原因ともなっている。しかし P_d 自体が小さいため、振動子に投入するパワー（印加電圧）をさらに上げることで、大きな機械的振動エネルギーを得ることが可能となる。このような理由で圧電トランス²⁾、圧電アクチュエータ³⁾、強力超音波振動子⁴⁾などのハイパワーデバイスへの応用研究が活発に行われている。

PMN 系電歪セラミックスが LN 結晶に次ぐハイパワー特性を示す理由は、室温では常誘電体でありドメイン構造が存在しないことが大きく寄与しているものと推定される。この材料は直流バイアス電界を必要とすることが実用上の欠点ではあるが、直流バイアスを 0.7kV/mm 加えることで見かけ上の d_{31} は -80pC/N となり、LN より大きくハード系 PZT に近い値を示す。ドメイン構造を有さない利点の一つは経年的劣化を低く抑える効果のあることであり、特殊な用途に対しては有用なハイパワー材料と言えよう。

またハード系 PZT である PSM-PZ-PT セラミックスのハイパワー特性は、LN 結晶、PMN 系電歪セラミックスの次に位置する。しかしながら LN との比較ではセラミックスであることから大型化、加工性、製造コストの面では圧倒的に優位にある。PMN 電歪セラミックスとの比較では直流バイアス電界の不要なことが大きな利点である。従って現状では PSM-PZ-PT セラミックスは一般に用いるハイパワー材料としては LN 結晶、PMN 系電歪セラミックスより優れた材料と判断される。

PMN-PT 結晶は極めて大きい圧電 d 定数を有する材料ではあるが、強誘電性非 180° ドメイン壁が容易に動く性質があるため、ソフト系 PZT と同様大きな振動損失を示す材料と位置づけられる。従って医療診断用超音波振動子などの比較的低い振動レベル下で使用される超音波トランスデューサなどとしての応用に限定されよう。

KNN セラミックスは非鉛系圧電材料としては注目されるが、ハイパワー材料としての特性は十分ではなく、さらなる研究開発が必要である。

9.3 結言

強誘電性ドメイン構造の視点から各種圧電・電歪材料のハイパワー特性が論じられた。LN 圧電結晶、PMN 系電歪セラミックスについては、ここで評価された材料中では振動損失パワー密度 P_d の最も低い優れたハイパワー用材料であることが示された。3 成分系 PSM-PZ-PT セラミックスはハイパワー特性としては上記材料には劣るが、総合的には一番実用的なハイパワー材料であると判断された。PMN-PT 結晶は振動損失が大きいためハイパワー用材料としては不適と判断された。また、KNN セラミックスのハイパワー特性は実用レベルに達し

ていないと判断された。

参考文献

- 1) L. E. Cross, “Ferroelectric Ceramics: Tailoring Properties for Specific Applications”, Ferroelectric Ceramics Edts. N. Setter and E. L. Colla, Birkhauser Verlag, Basel · Boston · Berlin (1993)1.
- 2) 中村僖良、安達善徳、信学論, J80-A, (1997) 1694.
- 3) 川俣昭人、保坂寛、森田剛,精密工学会春季大会学術講演論文集 (2006)877.
- 4) 森田剛、五十嵐学, Proc. 2012 JSME Conf. Robotics and echatoronics, (2012)27.

第 10 章 結論

メカトロニクス・強力超音波デバイスなど圧電材料のハイパワーデバイス応用分野では、一般には高振動レベル領域の振動が利用される。この場合、振動は圧電材料に高電界の交流信号を印加して励振されるが、励振された振動波形は弾性的非線形効果によりひずみ波（非正弦波）となる。機械的品質係数 Q_m も著しく低下し、その結果振動損失が増大して大きな発熱を伴う。また、高振動レベル領域では、材料の弾性、誘電性、圧電性も変化することが指摘されている。しかし高振動レベルで駆動された場合の諸特性の高精度な測定法が確立されてこなかったこともあり、この分野の研究は未だ十分には行われていない状況にあった。このことから、この分野で使用される材料の適性も明確にはされてこなかった。

本研究では、まず、圧電材料のハイパワー特性の高精度測定法が論じられた。次いで代表的な圧電材料を採り上げ、高振動レベルで駆動した場合の弾性、誘電性、圧電性について高精度な測定が行なわれ、これら材料のハイパワー用途への適性評価が行われた。それとともに、材料物性の視点からハイパワー圧電特性について論じられた。測定法とハイパワー特性とに分離して、本研究で得られた主要な成果を以下にまとめて示す。

測定法

- (1) 理論と実験の両面から高振動レベルでの振動がひずみ波となるのは弾性的非線形効果によって生じた高調波成分が基本波に重畳されるためであると結論された。
- (2) ハイパワー特性の測定法として電氣的過渡応答法を採用したが、振動速度及び電流の測定データに周波数フィルタ処理を施して基本波成分（正弦波）を抽出し、これを用いることで電氣的過渡応答法の高精度化が達成された。

ハイパワー特性

- (1) ハイパワー用圧電材料の適否は主に高振動レベルにおける振動損失パワー密度の大きさで決まる。この損失パワー密度が低い材料ほどハイパワー用材料として適する。本研究で測定評価された材料中では最も振動損失パワー密度が小さかったのは、 LiNbO_3 (LN) 圧電単結晶で、続いて $\text{Pb}(\text{Mg}, \text{Nb})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT) 系電歪セラミックス、 $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbZrO}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMS-PZ-PT) 系圧電セラミックス、 $(\text{Na}_{0.5}, \text{K}_{0.5})\text{NbO}_3$ 圧電セラミックス、 $0.7\text{Pb}(\text{Mg}, \text{Nb})\text{O}_3\text{-}0.3\text{PbTiO}_3$ 圧電単結晶の順であった。
- (2) LN 単結晶のハイパワー特性が優れる理由としては、単分域構造の単結晶であることから、他成分固溶体で多分域構造の PZT などと比較して結晶構造や分域壁の不安定性に起因する振動損失がすくないことが挙げられる。

- (3) LN 単結晶は、材料が硬く振動損失が少ないため、超音波トランスデューサ、弾性表面波 (SAW) デバイス等に広く応用されている。本研究により、ハイパワー特性が優れていることも明らかにされたので、新たな分野への応用も期待できる。
- (4) PMN-PT 系電歪セラミックスは、靱性が高く、電気光学係数が大きいことから、光シャッターとしてとして光ファイバーの減衰器 (VOA) 等に利用されつつある。電歪セラミックスは直流バイアス電界の印加が必須であること、使用温度範囲が狭いことが問題となるが、ハイパワー分野への応用も期待できる。
- (5) KNN はソフト系 PZT と比べればハイパワー特性は優れているといえるが、ハード系 PZT を凌駕する迄には至らない。しかし、今回作製した KNN の Q_m は 400 程度であるが、2000 を超える値も報告されていることから、ハイパワー材料としての可能性を有している。また、圧電定数は PZT に及ばないも、比誘電率が小さいことから、圧電出力係数 (g) が比較的高いため、圧力センサー等への応用展開が期待できる。
- (6) PMN-PT 結晶では、繰り返し応力による非 180° 分域壁の可逆的運動が振動損失を増大させ、これがハイパワー特性を低下させる原因と判断された。逆に、低電界・低周波域で利用する上では、損失は小さく、他の材料と比べて大きな圧電定数を有しているため、特に医療機器分野における超音波診断装置の端子素子として利用されている。
- (7) PMS-PZ-PT 系圧電セラミックスでは、通常の使用 (低振動レベル用) に対しては圧電性が最大となる結晶相境界付近の組成が選ばれている。しかし本研究によりハイパワー用途に対しては相境界から少し離れた組成 ($0.075\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Sb}_{2/3})\text{O}_3-0.45\text{PbZrO}_3-0.475\text{PbTiO}_3$) がよりハイパワー特性に優れることが明らかにされた。
- (8) PMS-PZ-PT(ハード系 PZT)セラミックスは、現状では最も汎用性の高いハイパワー用圧電材料と判断される。

謝辞

本論文は、元 NEC (株)、元早稲田大学 高橋貞行 教授の御懇篤なご指導と御鞭撻によって達成されたものであり、ここに厚く感謝の意を表す次第であります。

また、本論文の内容については、綿密なご検討 ならびにご指導を頂きました長岡工業高等専門学校 電子制御工学科 梅田幹雄 教授 ならびに 龍谷大学 物質化学科 和田隆博 教授に深く感謝申し上げます。

研究業績

論文

- 1*. S. Hayano, S. Takahashi, M. Umeda and T. Wada: “Vibration-Stress Dependence of Electromechanical Characteristics for Electrostrictive $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ -Based Ceramics”, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, No.9B (2005) 7024

 - 2*. S. Hayano, M. Umeda, S. Takahashi and T. Wada: “DC Bias Field Dependence on High-Power Characteristics of PbTiO_3 - $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ Electrostrictive Ceramics”, Jpn. J. Appl. Phys. **46**, No.7B (2007) 4454

 3. H. Ochiai, S. Hayano, K. Shoji, O. Kimura. and H. Maiwa: “High-Curie-Temperature $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ Ceramic Actuator Cofired with Pure Silver Internal Electrodes”, Jpn. J. Appl. Physics. **47**, No.7 (2008) 5534

 4. S. Hayano, R. Shike, K. Shoji, H. Ochiai, O. Kimura. and H. Maiwa:”Low-Temperature Sintering of $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbZrO_3 - PbTiO_3 Ceramic via Single-Step Calcination Process without Sintering Additives”, Jpn. J. Appl. Physics. **49**, No.9 (2010) 09MC08

 - 5*. 梅田幹雄, 早野修二, 高橋貞行: “圧電セラミック振動子の非線形振動”, 日本音響学会誌, 72 巻, 5 号 (2016) 228.

 - 6*. 早野修二, 梅田幹雄, 高橋貞行: “ $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}, \text{Sb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbZrO_3 - PbTiO_3 セラミックスのハイパワー圧電特性”, 日本音響学会誌, 72 巻, 6 号 (2016) 315.

 - 7*. 早野修二, 梅田幹雄, 高橋貞行: “ LiNbO_3 結晶のハイパワー圧電特性”, 日本音響学会誌, 72 巻, 8 号 (2016) 456.

 - 8*. 梅田幹雄, 早野修二, 高橋貞行: “圧電セラミックス振動子の弾性的非線計効果による高調波”, 日本音響学会誌, 72 巻, 11 号 (2016) 678.

 - 9*. 早野修二, 梅田幹雄, 高橋貞行: “ $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}, \text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 系結晶のハイパワー圧電特性”, 日本音響学会誌, 74 巻, 1 号 (2018) 8
- *博士論文の対象論文(7 論文)

以上