

# Study on Ferroic and Electromechanical Properties of Alkali Niobate Piezoceramics under Harsh Environment

著者(英)	Hiroshi Nishiyama
学位名	博士(工学)
学位授与番号	13903甲第1192号
学位授与年月日	2021-03-31
URL	<a href="http://doi.org/10.20602/00006664">http://doi.org/10.20602/00006664</a>

ニシヤマ ヒロシ

氏 名 西山 拡  
学位の種類 博士（工学）  
学位記番号 博第1192号  
学位授与の日付 2021年3月31日  
学位授与の条件 学位規則第4条第1項該当 課程博士  
学位論文題目 Study on Ferroic and Electromechanical Properties of Alkali Niobate Piezoceramics under Harsh Environment  
(アルカリニオブ酸系圧電セラミックスのフェロイクスと高負荷電気機械物性に関する研究)

論文審査委員 主査 教授 柿本 健一  
教授 前田 浩孝  
准教授 浅香 透  
教授 坂本 渉  
(中部大学)

## 論文内容の要旨

圧電セラミックスは、機械振動を電荷に（正圧電）、また電気信号を機械変位に（逆圧電）相互変換することが可能な機能性セラミックスであり、現在多くの電子デバイスに搭載されている。そして、現在の技術動向は圧電性能の向上から部材の信頼性担保へとシフトしつつある。今後、電子デバイスが利用されるシーンとして、次世代モビリティ、ヘルスケア、ロボット、通信機器、等が挙げられるが、そこでは従来よりも更に過酷な環境（高温・高電界・高負荷荷重、等）において長期間に亘って高い圧電性能を維持することが求められると予想している。上記のような高負荷環境における圧電性能を評価するには、圧電効果がドメイン構造を起源とする強誘電-強弾性の強的秩序（フェロイクス）により整理されることに立ち返り、従来の評価技術を再構築することが必要である。

本論文は、このような状況を鑑み、無鉛圧電セラミックスの代表組成であるアルカリニオブ酸系圧電セラミックス(Li,Na,K)NbO<sub>3</sub>の積層体について、温度、電界強度、または負荷荷重の各種組み合わせ条件下で使用する場合を想定した、高負荷電気機械物性に関する研究成果をまとめたものである。本論文は以下に示す全7章から構成される。

第1章では、現行の鉛系圧電アクチュエータと無鉛圧電セラミックスの市場動向を示し、無鉛圧電セラミックスが今後どのような用途で応用拡大が見込まれているか概説する。

第2章では、本研究において必要となる誘電体、圧電体に関する基礎を提供し、これまで鉛系圧電セラミックスで実施されてきた高負荷電気機械物性に関する各種評価研究について俯瞰する。

第3章では、本研究に用いた各種評価解析手法の詳細について図説する。

第4章では、アルカリニオブ酸系圧電セラミックス(Li,Na,K)NbO<sub>3</sub>の、焼成過程におけるアルカリ成分の揮発現象について調べるために、意図的に焼成温度にて長時間曝した例を示す。そのときの強誘電-強弾性ドメイン応答の推移や化学分析結果から、アルカリ揮発によって生じた欠陥構造との相関について議論する。また、アルカリ揮発現象の深さ依存性についても言及し、(Li,Na,K)NbO<sub>3</sub>積層体に求められる試料形状について明らかにする。

第5章と第6章では、負荷荷重、繰返し使用といった高負荷環境下における無鉛積層圧電アクチュエータの評価例についてそれぞれ述べる。第5章では、高負荷荷重下における(Li,Na,K)NbO<sub>3</sub>積層体の電界誘起ひずみ量を計測した例を示し、逆圧電応答による非180°ドメインの面外配向と、一軸圧縮応力による面内配向との競合関係について述べる。加えて、応力-ひずみ曲線にみられる強弾性挙動から、(Li,Na,K)NbO<sub>3</sub>積層体の高負荷電気機械物性にみられる強誘電-強弾性ドメインの相関について議論する。

第6章では、繰返し電界負荷試験を行った(Li,Na,K)NbO<sub>3</sub>積層体の圧電諸物性を示す。分極履歴曲線にみられた強誘電性ドメインの疲労現象について更に調べるため、キュリー点近傍(400~500°C)において交流インピーダンス分光法による評価解析を実施した例を示し、インピーダンススペクトル変化とドメイン壁ピン止め効果との相関について議論する。

最後に、第7章では、本研究で得られた主要な結果を総括すると共に、高負荷耐性に優れた無鉛積層圧電セラミックスの材料設計指針を含めた今後の展望を述べる。

## 論文審査結果の要旨

本論文は環境調和性に優れるアルカリニオブ酸系無鉛圧電セラミックスの電気機械物性に関する研究成果をまとめており、高電界や高温など高負荷環境下における強誘電-強弾性の強的秩序（フェロイクス）について、新たな評価技術の可能性にも言及する観点から詳細に論じたものである。

昨今の電子デバイスの小型化・高性能化の流れの中で、今後利用されるシーンとして、次世代モビリティ、ヘルスケア、ロボット、通信機器、等が挙げられるが、そこでは従来よりも更に過酷な環境（高温・高電界・高負荷荷重、等）のもと長期間に渡って、高い圧電性能を維持することが求められることが予想され、耐久性に優れた材料とその性能評価手法の研究開発が望まれている。

そこで本論文では、熱力学的に低コストな卑金属内部電極 Ni 等と同時焼成および積層化が可能であり、かつ高キュリー温度をもつアルカリニオブ酸系無鉛圧電セラミックスに着眼し、高負荷環境下での電気機械物性やこれに及ぼす材料中のドメイン構造、欠陥構造、等の役割について明らかにした。特筆すべきは、圧電効果がドメイン構造を起源とする強誘電-強弾性の強的秩序（フェロイクス）により整理されることに立ち還り、評価技術の再構築も試みたことが挙げられる。

本論文の各章の概要は以下の通りである。第1章では、現行の鉛系圧電アクチュエータが抱える課題と、無鉛圧電セラミックスの市場動向について述べた。第2章では、関連する基礎学理の提供と、圧電体の各種評価研究について俯瞰した。第3章では、単板および積層体試料の概要および解析評価手法について概説した。第4章から第6章では各種の高負荷環境下におけるアルカリニオブ酸系無鉛圧電セラミックスの電気機械物性について試験結果の議論を行った。第4章では、 $(\text{Li,Na,K})\text{NbO}_3$  単板セラミックスを用いて、焼成過程におけるアルカリ成分の揮発現象について調べ、その化学組成分析結果から予測される欠陥構造と強誘電-強弾性ドメイン応答の相関について議論した。第5章では、高負荷荷重下における $(\text{Li,Na,K})\text{NbO}_3$  積層体セラミックスの電界誘起ひずみ量を精密評価し、逆圧電応答による非  $180^\circ$  ドメインの面外配向と、一軸圧縮応力による面内配向との競合関係が物性に及ぼす影響を明らかにした。加えて、応力-ひずみ曲線にみられる強弾性挙動から、強誘電-強弾性ドメインとの関連についても議論した。第6章では、繰返し電界負荷試験を行った $(\text{Li,Na,K})\text{NbO}_3$  積層体セラミックスの分極履歴曲線にみられた強誘電性ドメインの疲労現象について、キュリー点前後の温度域で計測された交流インピーダンス分光分析の比較から、ドメイン壁ピン止め効果の兆候をスペクトル上で新たに見出した。第7章では、本研究で得られた主要な結果を総括すると共に、電気機械物性と高負荷耐性に優れる無鉛圧電セラミックスの材料設計指針も含めた今後の展望を述べた。

以上、本論文は産業要請が強い圧電材料の無鉛化および高負荷耐性化に向けて、高負荷環境下での圧電諸物性における疲労特性やこれに及ぼすフェロイクスの役割について解明し、環境調和性を有する高性能無鉛圧電体の材料設計指針を得るなど重要な知見を得ており、学術的に極めて高い価値を有している。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として十分に価値があるものと認められる。