

アレクサンダー マーティン

氏名	ALEXANDER MARTIN
学位の種類	博士（工学）
学位記番号	博第1016号
学位授与の日付	平成28年3月23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	Electromechanical Fatigue Process of Lead-Free Alkali Niobate Piezoceramics (アルカリニオブ酸系無鉛圧電セラミックスの電気機械的な疲労過程)
論文審査委員	主査 教授 柿本 健一 教授 五味 學 准教授 浅香 透

論文内容の要旨

小型高性能なメカニカル部品の需要拡大に伴い、圧電セラミックス材料は一般家電だけでなく、自動車、航空宇宙、エネルギー、情報通信の各分野の高負荷環境下で使用範囲の拡大が検討されている。そこでは過酷な温度、電界強度、負荷荷重、動作速度、等の要求性能が一層厳しくなることが予想される。さらに圧電セラミックスの無鉛化に向けた材料研究も一段と加速化している。これらに対応する材料設計の共通課題と基本原則は、圧電諸特性の起源である「分域（ドメイン）構造」解明と制御にある。しかし、特に無鉛圧電セラミックスに関して、上記の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ドメイン構造の役割について、本質的な理解が未着手のままである。

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ニオブ系セラミックス（LNKN）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、繰り返し使用する場合を想定した疲労現象を解明する研究成果をまとめたものであり、以下に示す全8章から構成される。

第 1 章では、今後の高温電子デバイス等に用いられる圧電体に対する要求事項について述べる。更に、環境調和性に優れた無鉛材料アルカリニオブ系酸化物を挙げ、この特性について概説すると共に、抱える課題について述べる。

第 2 章では、本研究において必要となる誘電体、疲労現象、破壊力学に関する基礎の提供と、これまで実施されてきた圧電体の各種評価研究について俯瞰する。

第 3 章では、本研究で用いた試料作成手法および解析評価手法について概説する。

第 4 章から第 7 章では各種条件下でのアルカリニオブ酸系無鉛圧電セラミックスの疲労特性について試験結果の議論を行う。第 4 章では、直流電界下での分極挙動およびドメイン構造の変化を調べ、ドメインスイッチングが無鉛圧電セラミックスの機械特性を向上させるとの仮説を導く。

第 5 章では、交流ユニポーラ駆動における電気機械的な疲労過程を評価し、無鉛セラミックス LNKN-typeA は $8 \text{ kV/mm} \times 10^5$ サイクル、さらに LNKN-typeB は $10 \text{ kV/mm} \times 10^6$ サイクルまで破壊挙動が認められず、ニオブ系無鉛圧電セラミックスの優れた繰り返し電界耐久性を示す。

第 6 章では、斜方晶と正方晶からなる試料の試験結果に基づき、疲労過程における欠陥形成に及ぼす結晶構造の役割を議論する。

第 7 章では、交流バイポーラ駆動における電気機械的な疲労過程を評価し、特に疲労過程の温度依存性を計測し、セラミックス中の欠陥双極子の形成および空間電荷キャリアによるドメイン壁のピン留め効果による影響を議論する。

最後に、第 8 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高負荷耐性に関する研究成果をまとめており、材料中の結晶構造やドメイン構造が高電界および高温環境下の電気機械的な疲労過程に及ぼす影響について、新素材設計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、小型高性能なメカニカル部品の需要拡大が予測され、圧電セラミックス材料は、自動車、航空宇宙、エネルギー、情報通信の各分野の高負荷環境下で使用範囲の拡大が検討されている。ここでは過酷な温度、電界強度、負荷荷重、動作速度、等の要求性能が一層厳しくなることが予想され、耐久性に優れた材料開発が望まれている。

そこで、熱力学的に低コストな卑金属内部電極Ni等と同時焼成が可能であり、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、高負荷環境下での圧電諸物性における疲労特性やこれに及ぼす材料中の欠陥構造、結晶構造およびドメイン構造の役割について明らかにした。特筆すべきは、実験的に困難な温度・電界・圧力の同時負荷によるマルチ負荷特性を詳細かつ定量的に調べたことで、産業応用に準じた使用環境下で優れた知見を得たことが挙げられる。また、高電界下で起こるドメインスイッチングが圧電セラミックスの電気機械的な疲労過程を支配しており、さらに副次的にセラミックス中の欠陥双極子の形成および空間電荷キャリアによるドメイン壁のピン留め効果が高負荷耐性に影響することを明らかにし、これらの知見をもとに材料組成を変性させた新規材料において疲労特性が向上できることを検証した。

本論文の各章の概要は以下の通りである。第1章では、圧電セラミックス抱える課題について述べた。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、試料作成手法および解析評価手法について概説した。第4章から第7章では各種条件下でのアルカリニオブ酸系無鉛圧電セラミックスの疲労特性について試験結果の議論を行った。第4章では、直流電界下での分極挙動およびドメイン構造の変化を調べ、ドメインスイッチングが無鉛圧電セラミックスの機械特性を向上させるとの仮説を導いた。第5章では、交流ユニポーラ駆動における電気機械的な疲労過程を評価し、ニオブ系無鉛圧電セラミックスの優れた繰り返し電界耐久性を示した。第6章では、疲労過程における欠陥形成に及ぼす結晶構造の役割を議論した。第7章では、交流バイポーラ駆動における電気機械的な疲労過程を評価し、セラミックス中の欠陥双極子の形成および空間電荷キャリアによるドメイン壁のピン留め効果による影響を議論した。最後に、第8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ドメイン構造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。