

複合振動子法によるセラミックスの弾性率測定 (第1報)

—簡易化と高精度化—

工藤成史・小澤正邦

(株)豊田中央研究所, 480-11 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道 41-1)

Application of Piezoelectric Composite-Bar Method to Elastic Modulus Measurement of Ceramics (Part 1)

—Simplification and Error Minimization—

Seishi KUDO and Masakuni OZAWA

(Toyota Central Research and Development Laboratories, Inc., Nagakute, Aichi-gun, Aichi 480-11)

The piezoelectric composite-bar method was applied to elastic modulus measurement of ceramics (zirconia, alumina, silicon nitride and silicon carbide). The procedure of measurement was simplified by using quartz vibrators with various resonant frequencies and grease as the adhesive. The resonant frequency f_s of the specimen was observed to depend on the resonant frequency f_q of the vibrator. The value of f_s was maximum at $f_s = f_q$. The most probable value of f_s (f_{s0}) is obtained at $f_s = f_q$, and was determined by plotting f_s against f_q . The experimental error in f_s was evaluated by the plot of f_s vs. f_q (f_s/f_{s0} vs. f_q/f_{s0}) and was smaller than 0.1%, when the difference between f_q and f_{s0} was 10%. The value of Q^{-1} was observed to be minimum at $f_q/f_{s0} = 1$.

[Received April 13, 1989; Accepted April 13, 1990]

Key-words : Piezoelectric resonance method, Young's modulus, Internal friction, Composite-bar method, Quartz

1. 緒言

弾性率や内部摩擦は、セラミックスの物性研究や開発に不可欠な物性値である^{1,2)}。弾性率の測定方法としては、超音波パルス法³⁾や共振法³⁾⁻⁵⁾がよく用いられている。また、小片試料の測定には直方体共振法⁶⁾も報告されている。

圧電複合振動子法^{7,8)}(以下、複合振動子法と略す)は、小さい棒状試料の弾性率と内部摩擦の簡易な測定法として相転移の研究などに用いられてきた⁹⁾。JIS規格3点曲げ試験¹⁰⁾では3×4×40 mm程度のセラミック棒状試験片が用いられる。その際、複合振動子法を併用すると、一つ一つの曲げ試験片について弾性率と内部摩擦のデータも簡便に得られ、曲げ強度等との対応を調べることも可能となる。

本研究では、弾性率の測定に複合振動子法を適用するにあたり、従来実験的には十分検討されていなかった試料と圧電振動子の固有振動数の差による測定上の誤差について検討した。そして固有振動数の異なる一連の圧電振動子の使用により弾性率や内部摩擦の測定値を、より正確に求める方法を見いだした。更にこの手法を各種セラミックスの弾性率測定に適用した。

2. 複合振動子法の原理と特徴

複合振動子法は、初めに Quimby¹¹⁾によって考案され、その後 Rose¹²⁾や Zacharias¹³⁾により研究された。本法では、棒状の圧電振動子と棒状の試験片を接着して複合振動子(図1(a))を形成する。この複合振動子の共振

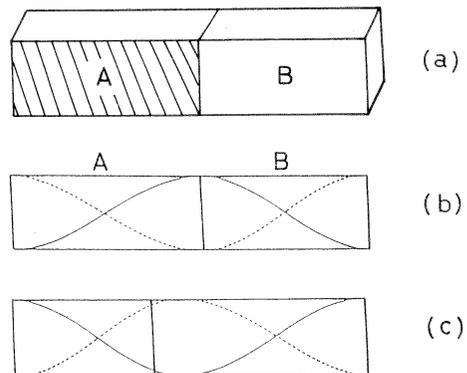


Fig. 1. (a) A composite bar composed of a quartz vibrator (A) and a test specimen (B). (b), (c) Amplitude distribution at the resonance with the same resonant frequency (b) and different resonant frequencies (c) for A and B.

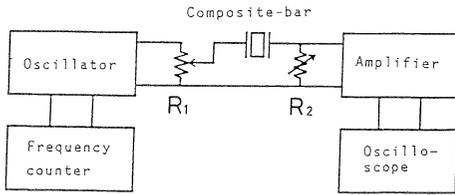


Fig. 2. Schematic set up for the composite-bar method.

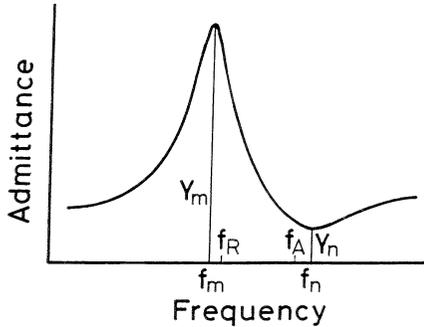


Fig. 3. Resonant curve of a composite-bar. Y_m , Y_n , f_m and f_n denote current amplitudes and frequencies at the maximum and minimum, respectively.

周波数と圧電振動子の共振周波数から、試料のみの共振周波数(固有振動数)を求め、その値から弾性定数と内部摩擦を求める。

図2のような測定系において、発振器の出力を圧電振動子に印加し、圧電振動子に流れる電流を R_2 により電圧として取り出し増幅器を介してオシロスコープで観測する。電圧一定で周波数を変えていくと、図3のような周波数特性が得られる。電流値はアドミッタンスに比例している。実測する値は、アドミッタンスの極大と極小の周波数 f_m , f_n と、そのときのアドミッタンスの比 Y_m/Y_n である。

以下に、弾性測定に必要な式を示す^{7), 8), 13)}。複合振動子の共振周波数 f_R は、 f_m と f_n の間にあり、

$$f_R = f_m + (f_n - f_m) / (Y_m / Y_n + 1) \quad (1)$$

で与えられる。試料のみの共振周波数 f_s と圧電振動子のみの共振周波数 f_a には次の関係がある。

$$m_s f_s \tan(\pi f_R / f_s) + m_a f_a \tan(\pi f_R / f_a) = 0 \quad (2)$$

ここに、 m_s , m_a はそれぞれ試料、圧電振動子の質量である。等方体試料のヤング率は

$$E = \rho (2 f_s l)^2 \quad (3)$$

で与えられる。ここに、 ρ と l はそれぞれ試料の密度と長さである。試料の内部摩擦 Q^{-1} は、内部摩擦が十分小さい水晶振動子を圧電振動子として用いたような場合には、次式で与えられる。

$$Q^{-1} = \{(m_a + m_s) / m_s\} \{2 (f_n - f_m) / f_R\} \cdot \{(Y_n / Y_m)^{1/2} / (Y_n / Y_m + 1)\} \quad (4)$$

(1)~(4) 式の導出に際しては試料と圧電振動子の断面積が等しいという条件を使っていない。そのため、角形断面の圧電振動子と円形断面の試料を接続しての測定も可能である¹³⁾。しかし、純粋な縦振動を起こすためには両者の断面が等しいほうがよいので、複合振動子を実際に形成する際、両者の断面をできるだけ等しくしておくのが望ましい。

複合振動子法の特徴として、(1) 試験片が小片でよい、(2) 共振法に比べ副共振が起きにくい、(3) 測定系が超音波パルス法に比べ安価である、といった長所があるが、一方で次のような問題点があった。(1) 測定上の誤差を小さくするためには試料と圧電振動子の固有振動数ができるだけ近いことが必要であり、試験片の長さを調整し直すため手間がかかっていた。(2) 試料と圧電振動子の接着状態が不相当であると、 Q の低下、副共振の発生、試料の脱落などがおこる。本報では、これらの問題点について実験技術上の改良を検討した。

3. 実験

3.1 測定

図2の測定系では、発振器にNF製FG-163、周波数カウンターにタケダ理研製TR 5822、増幅器にNF製M-170、オシロスコープに菊水製DSS 6520を用いた。発振器の周波数を変化させ振動子に流れる電流をオシロスコープ上で観測しながら、 f_m , f_n の値を周波数カウンターにて、また Y_m/Y_n の値をオシロスコープを介してマルチメーター(アドバンテテスト製TR 6846)にて測定した。周波数カウンターの精度は 1×10^{-5} であった。

圧電振動子として、 Q が高く、温度係数の小さい水晶を用いた。JIS規格3点曲げ試験片(3×4×40 mm)の測定を行えるよう、断面が3×4 mmの振動子を作製した。振動子の方位は、長手方向の伸縮振動を励起できる-18.5° Xカットとした⁸⁾。90~140 kHzの範囲で、約10 kHzおきに共振周波数を有する6本の振動子を用意した。電極として両面に金ペーストを焼き付け、リード線は振動子の中央にリン青銅線をろう付けし、支持体を兼ねさせた。

試験片と圧電振動子の接着には、種々検討した結果、測定値のばらつきを最も小さくできる、真空グリース(アピエゾングリース)を用いることにした。従来使用されている蜜蝋、有機系接着剤、金属ペーストなども試みたが、試料の脱着の容易さ、とくに測定値の再現性の点でアピエゾングリースが最も良好であった。これは、グリースの層が薄く接着層でのエネルギー損失が小さいためと考えられる。

すべての測定値 f_s は、(2) 式で $f_R \approx f_s \approx f_a$ であるとき得られる近似式(5)の解を初期解として、逐次近似法を適用し、(2) 式を満たす解が相対誤差 10^{-5} とな

Table 1. Properties of ceramics used in this work.

material	density (g/cm ³)	Young's modulus (GPa)	internal friction	grain size (μm)	phase	additives
Al ₂ O ₃	3.83 ₁	368.3±0.7	5×10 ⁻⁴	20	α (100%)	SiO ₂ (tr.)
ZrO ₂	6.04 ₃	211.6±0.5	5×10 ⁻⁴	1-0.2	tetragonal (90%) cubic (5%) monoclinic (5%)	Y ₂ O ₃ (2 mol%) SiO ₂ (tr.)
SiC	2.99 ₃	347.8±0.9	1×10 ⁻⁴	5	SiC (mainly β), Si	Si (12 wt%)
Si ₃ N ₄	2.24 ₃	282.6±0.5	2×10 ⁻⁴	5	α (2%), β (98%)	MgO-Al ₂ O ₃ (5 wt%)

るまで計算して求めた。

$$f_s = f_R - (m_a/m_s)(f_a - f_R) \quad (5)$$

3.2 試料

測定精度の検討のために用いた試料の物性値を表1に示す。これらを3点曲げ試験用に3×4×40 mmに切りだし試験片とした。ジルコニアについては3×4×27 mmの試料を用いた。

4. 結果と考察

4.1 誤差の原因

複合振動子法において測定誤差を生ずる原因について検討する。2章で述べた式の誘導の際の仮定は、(1) f_s が f_R に近いこと、及び(2) 試料と圧電振動子との接着面での応力と変位の連続、である。測定誤差の主要原因は、複合振動子法の共振状態が上記の仮定を実験的に満たさないことに起因している。

理想的な共振状態における弾性的定在波の振幅分布を図1(b)に示した。これは試料の共振周波数 f_s と圧電振動子の共振周波数 f_a とが一致している時の複合振動子の振幅分布である。この時、 $f_s = f_a = f_R$ が成り立ち、振動の腹が接着面上にある。接着面での歪(変位の空間微分)、応力(弾性定数と歪の積)ともゼロになっており、応力連続の仮定が成り立つ^{7),8)}。図1(c)は、 f_s と f_a が一致しない場合を示している。この場合は、接着面での歪が(一般に試料と圧電振動子で異なる)有限値となり、更に試料と圧電振動子の弾性定数が異なるのが普通であるため、応力連続の仮定は成立しない。

従来、 f_s と f_a との不一致が測定値 f_s と Q^{-1} に及ぼす影響について実験的に詳しく検討されていなかった。以下においては、使用する圧電振動子の f_a の変化に対する f_s と Q^{-1} の変化について検討する。また、測定再現性についても合わせて検討する。

4.2 固有振動数 f_s と内部摩擦 Q^{-1} の測定値に及ぼす圧電振動子の共振周波数の影響

表1に記載した各試料一個ずつにつき、水晶振動子6本(共振周波数90~140 kHz)を用いて、 f_s と Q^{-1} の測定を行った。同じ条件で試料と水晶振動子の脱着をくりかえし10回測定したデータから平均値と標準偏差 σ を求めた。

アルミナと窒化ケイ素について得られた f_s の測定値

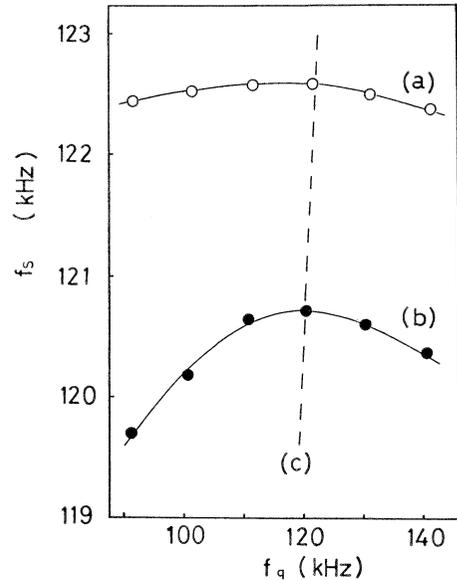


Fig. 4. Resonant frequency of specimen (f_s) versus resonant frequency of quartz (f_a) for (a) Al₂O₃-ceramics and (b) SiC-ceramics. The broken line (c) stands for $f_s = f_a$.

を測定に用いた水晶振動子の共振周波数 f_a の関数として図4に示す。 f_s は f_a に対し極大値をもつような依存性を示した。図中の直線(c)は $f_s = f_a$ を表している。 $f_s = f_a$ は理想的な共振条件に対応するから、 f_s の測定値を結んで得られた曲線(a)又は(b)と、(c)の交点は、最も確からしい f_s の値(以下 f_{s0} と表す)を与える。この交点は曲線(a)と(b)の極大値とほぼ一致しており、共振周波数の不一致によって観測値 f_s が見掛け上、小さくなることが分かる。

図5に、表1の4種の試料につき上記操作によって求めた f_{s0} で規格化した f_s と f_a の関係、 f_s/f_{s0} 対 f_a/f_{s0} を示す。 f_s/f_{s0} の1からのずれは、各測定値(平均値)の理想的な条件($f_s = f_a$)での測定値からのずれ(誤差)を表している。図から分かるように、 f_s/f_{s0} の1からのずれの量は材料によっていくらか異なっている。最もずれ量の大きいSiCについて見ると、 f_s と f_a との差が10%のとき、 f_s の誤差は0.1%であった。

表1の4種の試料につき求めた内部摩擦 Q^{-1} の f_a/f_{s0} 依存性を図6に示す。 $f_a/f_{s0} = 1$ での Q^{-1} の値は、

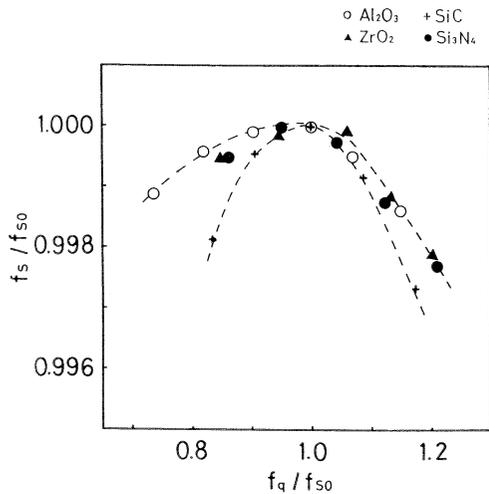


Fig. 5. Relation between f_s/f_{s0} and f_q/f_{s0} , where f_{s0} is the resonant frequency of the test specimen at $f_s=f_q$.

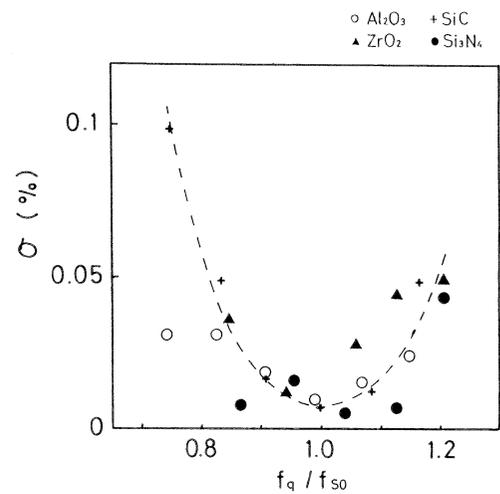


Fig. 7. Standard deviation (σ) of f_s as a function of f_q/f_{s0} .

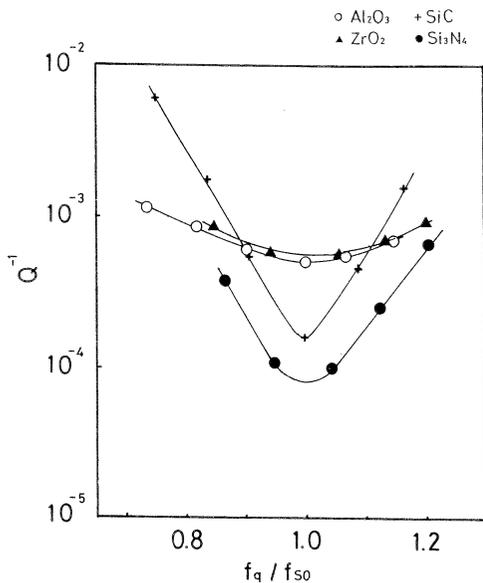


Fig. 6. Internal friction Q^{-1} as a function of f_q/f_{s0} .

極小値をとることが分かる。

図7と図8に、 f_s と Q^{-1} の測定値の標準偏差 σ (平均値に対する%表示)を、 f_q/f_{s0} に対してプロットしたものを示す。図7から、 f_s については、 $f_q/f_{s0}=1$ において σ が最小値の0.01%程度となり、この条件で測定の再現性が最も高いことが分かる。すなわち、 $f_s=f_q$ の条件が満足されていれば、試料の脱着に伴う接着層の状態変化の影響が最小になることが実験的に示されている。 Q^{-1} については、 σ が30%程度と大きくまた明確な f_q/f_{s0} 依存性はみられなかった。

以上の検討結果は、周波数の異なる複数の圧電振動子を用意し、同一の試料について複合振動子法による測定

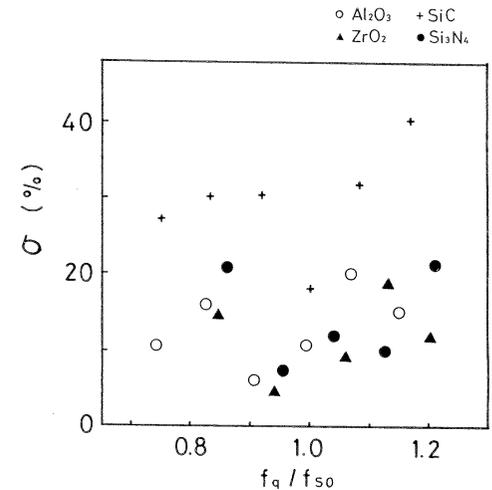


Fig. 8. Standard deviation (σ) of Q^{-1} as a function of f_q/f_{s0} .

を行うと、共振周波数と内部摩擦の測定精度を上げることができることを示している。また、図5によって、圧電振動子と試料との共振周波数の差による測定誤差を知ることができる。これにより、実用的には f_s と f_{s0} の差が10%以内の条件で測定すれば、十分な精度(誤差0.1%以下)が得られることが分かる。

5. まとめ

複合振動子法をセラミック材料に適用し、ヤング率と内部摩擦の測定誤差について検討した。本研究で得られた結果をまとめると次のようである。

(1) 共振周波数と内部摩擦は、圧電振動子と試料の共振周波数(f_q と f_s)の差に依存し、 $f_s=f_q$ において最大値(共振周波数)と最小値(内部摩擦)を与える。

(2) 測定値を精度よく求めるには、図4又は図5(共振周波数)及び図6(内部摩擦)のプロットで、 $f_s=f_q$ での値を決めるのが良い。

(3) f_s と f_q の差が10%以内のとき、測定値(f_s)と真の共振周波数(f_{s0})との差は0.1%以内であった。実用上0.1%という誤差は十分小さいので、共振周波数の異なる複数の圧電振動子を用意し f_s と f_q の差が10%以内の振動子を選んで測定すれば、多くの試料のヤング率を簡単に測定できる。

(4) 試料の脱着の容易性と測定の再現性からみて、接着剤に真空グリースを用いることが適当である。

文 献

- 1) A. G. Evans and E. A. Charles, *J. Am. Ceram. Soc.*, **59**, 371-72 (1976).
- 2) K. Niihara, R. Morena and D. P. H. Hasselman, *J. Mater. Sci. Lett.*, **1**, 13-16 (1982).
- 3) JIS規格 R1602 (1986).
- 4) ASTM C848-78 (1978).
- 5) 坂口修司, 若井史博, 松野外男, 窯協, **95**, 476-79 (1987).
- 6) 後藤隆泰, 曾我直弘, 窯協, **91**, 24-31 (1983).
- 7) 能本乙彦, 池田拓郎, 日本音響学会誌, **9**, 83-122 (1953).
- 8) 池田拓郎, 圧電材料学の基礎, オーム社 (1984).
- 9) S. Kudo and T. Ikeda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **19**, L45-47 (1980).
- 10) JIS規格 R1601 (1986).
- 11) S. L. Quimby, *Phys. Rev.*, **25**, 558-73 (1925).
- 12) F. C. Rose, *Phys. Rev.*, **49**, 50-54 (1936).
- 13) J. Zacharias, *Phys. Rev.*, **44**, 116-22 (1933).