

有機強誘電体触覚センサの圧電特性 —基板拘束が圧電特性に及ぼす影響の数値解析—

○竹中慎(香川産技セ) 高嶋一登(九工大・理研) 堀江聡(神戸大)

向井利春(理研) 石田謙司(神戸大) 上田裕清(神戸大)

1. はじめに

有機強誘電体であるポリフッ化ビニリデン(PVDF)や、フッ化ビニリデン(VDF)と三フッ化エチレン(TrFE)のコポリマー(P(VDF/TrFE))は、圧電定数が大きく、軽量・柔軟・広帯域であるなどの利点があり、触覚センサの材料として広く研究されている[1][2]。さらに、我々はこれまでに、PVDFの低分子量体であるVDFオリゴマーに注目し、触覚センサとしての有用性を検討してきた[3][4]。

これまでの研究[3]において、石英基板(厚さ0.5 [mm])上に成膜したVDFオリゴマーの薄膜試料(厚さ200 [nm])を用い、圧電ひずみ定数 d_{33} の測定を行った。この実験では、石英基板を上下ホルダー間の空間内に挟み込み、圧縮空気印可した圧力 σ_3 に対する出力電流値 I を測定し、圧電ひずみ定数を求めた。測定の結果、VDFオリゴマーの圧電ひずみ定数について181 [pC/N]を得た。P(VDF/TrFE)についても同一の実験を行ったところ、圧電ひずみ定数は74 [pC/N]であり、VDFオリゴマーは、P(VDF/TrFE)と比べて大きい圧電ひずみ定数を有することを報告した。

しかしながら、石英基板はPVDF等有機強誘電体の10倍程度のヤング率を持つことや、基板自体も治具に挟み込まれていることなどから、強誘電体膜は、面内方向に強く拘束されていることが考えられる。Barzegarら[5]は、詳細な評価は有限要素法による解析が必要であろうとしつつも、Si基板上のPZT薄膜について理論式より考察し、基板の拘束が圧電特性の測定に及ぼす影響が大きいことを示した。

そこで本研究では、有機強誘電体薄膜の圧電特性について、基板の拘束状況がどのように影響を及ぼすかを数値解析により検討した。またさらに、解析結果をふまえた上で、センサの出力を大きくするための基板およびその下部の構成を提案する。

2. 圧電基本式からの検討

圧電効果の基本式は d 形式について、式(1)で表される。

$$\xi_i = s_{ij}^p \sigma_j + d_{mi} E_m \quad (1)$$

$$D_n = d_{nj} \sigma_j + \epsilon_{nm} E_m$$

式(1)の各記号は圧電体についての、 ξ : ひずみ、 s^p : 弾性コンプライアンス、 σ : 応力、 d : 圧電ひずみ定数、 E : 電界、 D : 電気変位、 ϵ : 誘電率を表す($m, n=1 \sim 3$, $i, j=1 \sim 6$: テンソル表示)。また、厚み方向および極方向を3、膜の面内方向を1および2とする。

これまでの報告[3]は、厚み方向の応力と圧電ひずみ定数のみを用いて、式(1)より導出される次式(2)の両辺を時間微分したものから d_{33} を求めていた。

$$Q = A d_{33} \dot{\sigma}_3 \quad (2)$$

ここで、 A は強誘電体膜を挟む電極面積である。しかし、式(2)では、基板による拘束状態は考慮されていないため、本報告では、以下に示していくように、基板の拘束が膜の面内方向の応力状態へ与える影響も含めて検討を行うこととする。

本報告では簡単のため、圧電体を等方弾性体と仮定し、 s^p は、圧電体のヤング率 Y_p 、ポアソン比 ν_p を用いて次のように表す。

$$s_{11}^p = 1/Y_p \quad s_{12}^p = s_{13}^p = -\nu_p/Y_p \quad (3)$$

また本報告では、面内方向の圧電ひずみ定数が等方であると仮定すると、以下の式(4)が成り立つ。

$$d_{31} = d_{32} \quad (4)$$

過去に行った実験[3]のように圧電効果を電流値により計測をする場合は、圧電体内の電場は0と見なせ、次の式(5)が成り立つ。

$$E_m = 0 \quad (5)$$

次に、基板による拘束が大きいと、面内方向には変形できず、ひずみについて以下の式が成り立つ。

$$\xi_1 = \xi_2 = 0 \quad (6)$$

式(1)、(3)~(6)を用いると、圧電体の面内方向応力は、式(7)となる。

$$\sigma_1 = \sigma_2 = \frac{\nu_p}{1-\nu_p} \sigma_3 \quad (7)$$

この式より示されるように、圧電体を厚み方向に圧縮(σ_3 : 負値)する場合、面内方向応力も負値、つまり圧縮応力となる。厚み方向の圧縮により、圧電体はポアソン効果で面内の外方向に押し出されようとするが、基板がこの変形を拘束すれば、圧電体としては圧縮応力を感じるようになるのである。

式(1)、(4)、(5)、(7)より、加圧時の圧電効果による出力電荷 Q は、

$$Q = A \left(d_{33} + d_{31} \frac{2\nu_p}{1-\nu_p} \right) \sigma_3 \quad (8)$$

と表される。すなわち出力電荷には、厚み方向のみの圧電ひずみ定数 d_{33} のみならず、 d_{31} およびポアソ

ン比が寄与することとなる。また、PVDFに代表される圧電体において、 d_{33} と d_{31} は異符号であるため[2][6]、 d_{33} の圧電効果による出力を d_{31} の圧電効果が弱めることを表す。

3. 有限要素法解析 (FEA)

2章で検討した応力状態を確認するため、有限要素法解析 (FEA) を実施した。本解析には、ANSYS Mechanical Ver.12 を用いた。

図1に示すように、過去の実験[3]における試料を模擬し、上電極/VDFオリゴマー/下電極/基板の層状に構成される形状を作成した。ただし、VDFオリゴマーと電極の形状は厚み方向に誇張して表示している。今回は静解析のため、対称性を考慮し、90度分(1/4)のモデルとした。

境界条件として、基板底面は全方向の変位を拘束し、基板、電極およびVDFオリゴマーの上面全体には、過去の実験[3]と同等レベルである200[kPa]の圧縮圧力を加えた。また、上下の各電極内の節点は0[V]の同一電位をとるように設定し、電極の電気的な拘束に対する反力を求めることで、電荷量 Q を求めることができる。

解析に用いた各種の材料定数を、表1、2に示す。本報告では、圧電ひずみ定数の符号について、 $d_{33} < 0$ 、 d_{31} および $d_{32} > 0$ として[2][6]、表すこととする。また、PVDFの d_{33} 、 d_{31} の絶対値は近いが[2]、これは一軸延伸され面内方向に異方性を有したものであるため、本報告では、 d_{31} 、 d_{32} に等分することとして、 $d_{31} = d_{32} = -d_{33}/2$ とした。

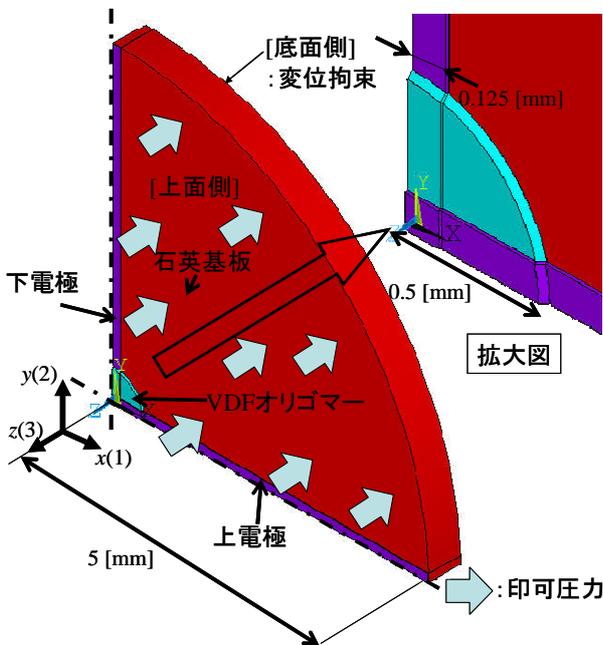


図1 解析モデル

表1 解析に用いた物性値

VDF オリゴマー	厚さ [nm]	200
	ヤング率(Y_p) [GPa]	3.0
	ポアソン比(ν_p) [-]	0.35
電極 (Al)	厚さ [nm]	60
	ヤング率 [GPa]	70
	ポアソン比 [-]	0.345
基板 (石英)	厚さ [μ m]	500
	ヤング率 [GPa]	72
	ポアソン比 [-]	0.17

表2 解析に用いた圧電特性

圧電ひずみ定数	d_{33} [pC/N]	-181
	d_{31} [pC/N]	90
	d_{32} [pC/N]	90
比誘電率	[-]	7

4. 結果および考察

4.1 FEA 結果

図2に基板、電極およびVDFオリゴマーの上面における半径方向のひずみ量を示す(円筒座標系表示である)。基板の境界より十分遠いVDFオリゴマー部では、半径方向ひずみは0とみなせることが分かる。

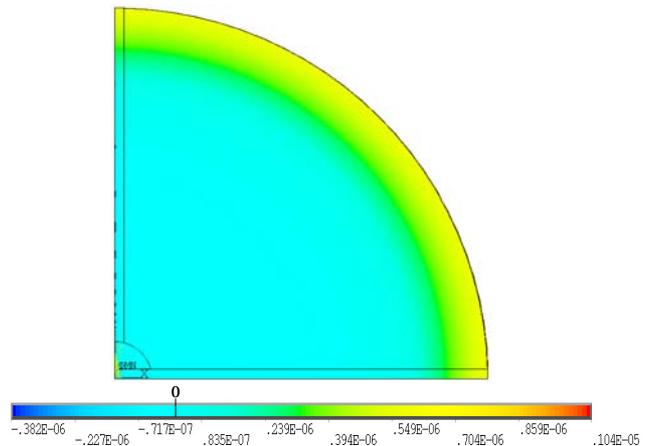


図2 試料上面の半径方向ひずみ 単位なし

図3および4にVDFオリゴマー部分のみを抽出し、上面側の応力図を示す(円筒座標系表示である)。厚み方向応力 σ_3 は、加圧力と同じで概ね200[kPa]の圧縮応力をとった。一方、半径方向応力は、電極に挟まれた領域において、約108[kPa]の圧縮応力となっていた。また、図としては割愛するが、周方向応力も同様の応力状態となった。式(7)は、円筒座標系として置き換えても同等であり、式(7)に各物性値を入力した値は-108[kPa]と、FEA結果に一致した。

解析の結果、圧力の負荷時に電極で出力される電荷量 Q は、0.268[pC]であった。一方、式(8)により算出される電荷量は、0.263[pC]であり、その違いは2%程度とFEAの結果とほぼ一致した。このことより、

基板上面が拘束されない自由境界であることや、電極形状および電極の剛性が、式(8)に対してあまり影響しないことが分かる。

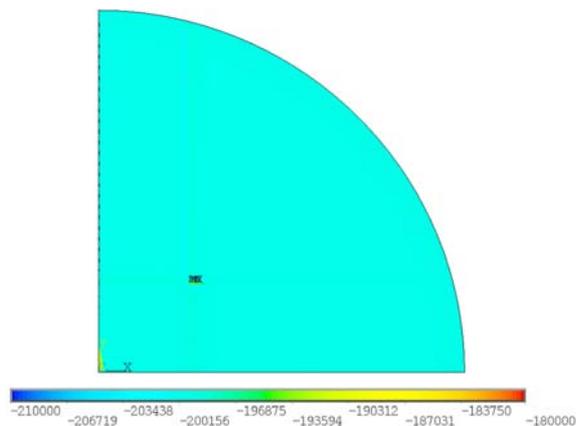


図3 VDFオリゴマーの厚み方向応力 単位:[Pa]

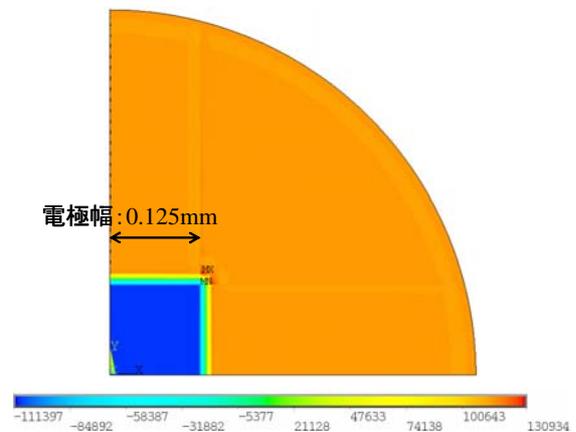


図4 VDFオリゴマーの半径方向応力 単位:[Pa]

4.2 圧電ひずみ定数の推定

これまでの空気加圧実験による測定で、VDFオリゴマーの $|d_{33}|$ 定数は、181 [pC/N]、P(VDF/TrFE)は74 [pC/N]であると報告した[3]。しかし、この測定は、剛性の高い石英基板上の圧電体について、治具により挟みこんだ上で空気加圧を行っているため、上記結果のように面内方向のひずみが拘束された状態での結果であると言える。

加えて、空気加圧による測定は圧縮・膨張を繰り返すため、温度変化による焦電効果も電気的な出力値に含まれると考えられる。実際、P(VDF/TrFE)の圧電ひずみ定数は、 $|d_{33}|=38$ [pC/N]との報告があり[7]、基板拘束による影響を無視しても、空気加圧実験による測定値は2倍程度に見積もられていることから、焦電効果が大きく影響しているものと考えられる。

以下に、基板拘束と焦電効果による影響を考慮した上で、本来の圧電ひずみ定数の推定を試みる。焦電効果で出力される電荷量 Q_P は、温度変化を dT とすると以下に表される。

$$Q_P = pA \cdot dT \quad (9)$$

ここで、 p は焦電係数であり、VDFオリゴマーおよびP(VDF/TrFE)で、それぞれ68 [$\mu\text{C}/\text{m}^2\text{K}$](37°C)[8]、41 [$\mu\text{C}/\text{m}^2\text{K}$](室内温度)[9]と報告されている。ただし、圧力を加えたときと温度が上昇したときの出力電荷の生じる方向は同じである[10]。

空気加圧実験により測定した d_{33} を d^* と記号を書き直し、この d^* を式(8)と(9)を用いて、基板拘束による影響と焦電効果による影響を考慮した上で定式化すると次のようにできる。

$$d^* = \left(d_{33} + d_{31} \frac{2\nu_p}{1-\nu_p} \right) + p \frac{dT}{d\sigma_3} \quad (10)$$

ここで、P(VDF/TrFE)とVDFオリゴマーともに、FEAで用いたように $d_{31} = -d_{33}/2$ とポアソン比が0.35であると仮定すると式(10)は式(11)となる。

$$d^* = 0.462d_{33} + p \frac{dT}{d\sigma_3} \quad (11)$$

式(11)に、P(VDF/TrFE)に関する実験値および文献値を代入すると、

$$\frac{dT}{d\sigma_3} = -1.38 \text{ } [\mu\text{K}/\text{Pa}] \quad (12)$$

が求まる。空気加圧を行った実験系はVDFオリゴマーとP(VDF/TrFE)で同一であるので、式(12)の値は共通の値と考える。この値と式(11)を用いて、VDFオリゴマーについて計算し直すと、 $d_{33} = -189$ [pC/N]が得られた。この値は、実験結果により得られた値と同等以上の値であり、P(VDF/TrFE)の値と比較して大きな圧電ひずみ定数となることに相違はなかった。しかしながら、上記の考察は種々に仮定した物性値のもとでの条件であり、その値に大きく左右される。従って今後、 d_{31} やポアソン比等の値を求められる他の実験を行いつつ検証していく必要がある。

5. 面内方向の伸長効果の利用

5.1 解析条件

上記の検討では、石英基板上に成膜したサンプルを用いて評価した。このため、基板によるVDFオリゴマーの拘束は強く、式(8)で表されるように、 d_{33} と d_{31} が打ち消し合い、圧電効果を十分活かした形とはなっていない。一方、圧電ポリマーをエラストマーのような柔らかい材質のものに貼り付けたりして、膜を伸長させて出力電荷を大きくしようとする研究もある[2]。このように、膜の伸長を陽に活かすためには、圧電体を柔軟な基板状に成膜する必要があると考えられる。これまでの報告のとおり[4]、VDFオリゴマーは、薄く(25 [μm])柔軟なポリエチレンナフタレート(PEN)上にも成膜可能である。

ここで、石英およびPENの各基板の下にシリコンゴムフィルムのようなエラストマーを敷いたモデルについて検討する。伸長効果を得るためには、基板下の物体は厚み方向の力に対して容易に広がる方

がよく、柔らかく、かつポアソン比が大きいことが有利であると予想される。

解析モデルを図5に示す。VDFオリゴマーと各電極形状は、図1の解析と同じであり、基板部分のみサイズを小さくした。エラストマーの底面について全方向変位拘束を行い、基板およびVDFオリゴマー上面に200 [kPa]の圧力を加えた。PENフィルム基板およびエラストマーの物性値には、表3の値を用いた。その他の値は、表1,2と同じである。

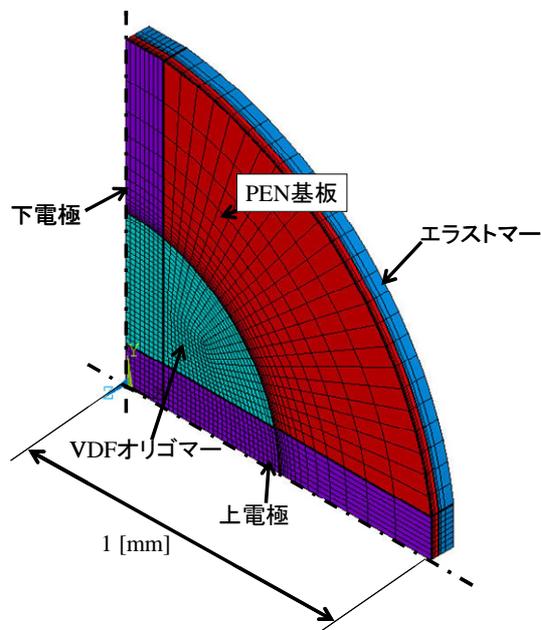


図5 エラストマー上の圧電体/基板の解析モデル

表3 解析に用いた物性値

基板 (PEN)	厚さ [μm]	25
	ヤング率 [GPa]	2.35
	ポアソン比 [-]	0.40
エラストマー	厚さ [μm]	50
	ヤング率 [GPa]	0.01
	ポアソン比 [-]	0.49

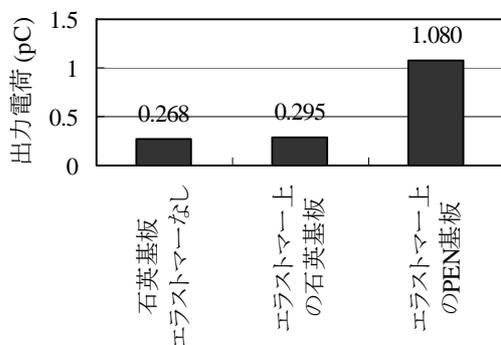


図6 出力電荷量

5.2 結果

解析の結果得られる出力電荷量を図6に示す。石

英基板を用いた場合、エラストマーの存在により出力増加が認められたものの、その程度は大きくない。一方、PENフィルム基板の場合、その4倍程度の値となった。このように、膜面内方向の伸長効果を得ようとする場合は、薄く柔軟なフィルム基板を用いた方が、出力の増加に有利であることが分かった。ただし、今回の解析においては、基板の外周側面が拘束されていないことで、基板は上に凸となるような変形状態をとっており、曲げ変形による面内方向の引張応力の増大も出力に影響を及ぼすことが考えられる。

6. まとめ

本研究では、基板上に成膜された有機強誘電体薄膜の圧電特性について、基板の拘束が与える影響を検討した。

まず、基板による拘束が強ければ、厚み方向の圧力に対する電気的出力として、 d_{33} 定数だけではなく、 d_{31} 定数や強誘電体薄膜のポアソン比が寄与することを、圧電基本式と有限要素法解析を用いて示した。このとき、 d_{33} による出力を d_{31} の圧電効果が弱める方向にある。

また、基板拘束による影響および焦電効果による影響を考慮した上で、過去の実験値と文献値を用いて圧電ひずみ定数 d_{33} の算出を試みた。結果、VDFオリゴマーは実験結果と同程度以上の圧電ひずみ定数となり、P(VDF/TrFE)と比較して大きな圧電ひずみ定数を有することを確かめた。

さらに、基板の下面にエラストマーを配置して、膜面内方向の伸長効果を得ようとする場合についても、有限要素法解析を用いて検討した。結果、薄く柔軟なフィルム基板を用いた方が電気的出力の増大に有利であることを示した。

参考文献

- [1] 田中由浩ほか, 日本機械学会論文集(C編), vol.73, no.3, pp.817-824, 2007.
- [2] J. Dargahi, Sens. Actuator A, vol.80, pp. 23-30, 2000.
- [3] 高嶋一登ほか, 日本ロボット学会誌, vol.22, no.6, pp.806-814, 2008.
- [4] 高嶋一登ほか, 第28回日本ロボット学会学術講演論文集, RSJ2010AC3N1-2, 2010.
- [5] A. Barzegar et al., J. Appl.Phys, vol.93, no.8, pp.4756-4760, 2003.
- [6] P. Dario et al., Ferroelectrics, vol.60, pp.199-214, 1984.
- [7] K. Omote et al., J. Appl.Phys, vol.81, no.6, pp.2760-2769, 1997.
- [8] K. Noda et al., Jpn. J. Appl. Phys. vol.42, L1334-L1336, 2003.
- [9] L. Jinhua et al., Sens. Actuators A, vol.100, pp.231-235, 2002.
- [10] J. Dargahi, Sens. Actuator A, vol.71, pp.89-97, 1998.