結晶均質化法に基づく微視的圧電弾性挙動の有限要素解析*

上 辻 靖 智^{*1}, 中 村 征 広^{*2}
上 田 整^{*1}, 仲 町 英 治^{*1}Finite Element Analysis of Microscopic Piezo-Electroelastic Behavior
Based on Crystallographic Homogenization MethodYasutomo UETSUJI^{*3}, Yukihiro NAKAMURA,
Sei UEDA and Eiji NAKAMACHI^{*3} Department of Mechanical Engineering, Osaka Institute of Technology,
5-16-1 Omiya, Asahi-ku, Osaka-shi, Osaka, 535-8585 Japan

Property of polycrystalline piezoelectric material is strongly affected by its crystal orientation distribution, because the crystal lattice has a strong anisotropy. In our previous study, a multi-scale finite element analysis code based on crystallographic homogenization method has been proposed to predict macroscopic piezoelectric properties. It can analyze the microscopic behavior in keeping a compatibility with the macroscopic response. In this study, the microscopic behaviors of piezoelectric materials under macroscopic uniform mechanical/electrical loading were analyzed. At first, the microscopic piezo-electroelastic responses of polycrystals are evaluated by employing the statistical procedure. Next, those heterogeneous behaviors were characterized by symmetrized dot pattern (SDP) method. Finally, the availability of these multi-scale characterization methods were confirmed.

Key Words: Crystallographic Homogenization Method, Crystal Orientation Distribution, Finite Element Analysis, Multi-Scale Analysis, Piezoelectric Material, Symmetrized Dot Pattern

1. 結 言

圧電材料はマイクロ・ナノマシンやバイオチップ等のアクチュエータやセンサとしての利用が期待され、中でも多結晶セラミックスが注目されている⁽¹⁾。これらの材料創製においては、支配因子である微視的結晶形態を考慮したマルチスケール解析による特性評価が重要課題となる。そこで著者らは、多結晶体を微視的構造とした均質化法、すなわち結晶均質化法を提案し、圧電弾性有限要素解析手法を開発した。また、圧電多結晶セラミックスを対象とした数値解析を行い、巨視的特性評価法としての有効性を確認するとともに、巨視的電気弾性特性に及ぼす結晶方位分布の影響を明らかにした⁽²⁾。

本報では、圧電材料をアクチュエータあるいはセンサとして利用することを想定し、一様な電界あるいはひずみなどの巨視的外部負荷が作用した場合の不均質な結晶組織における微視的圧電弾性特性を明らかにす

る。すなわち、任意の結晶方位を有する結晶組織に生じるフラクタルな微視的挙動を統計的に評価すると同時に、対称化ドットパターン (SDP: Symmetrized Dot Pattern)⁽³⁾を導入した新たな特性化評価手法を提案し、その有用性を検討する。

2. 結晶均質化法に基づく有限要素解析

圧電多結晶体の巨視的特性および微視的挙動はその圧電材料を構成する結晶形態に強く依存する。提案する結晶均質化法では、図 1 に示す微視結晶構造において周期性を仮定し、多結晶体の巨視的および微視的挙動の連成解析を行う。以下では、圧電弾性問題に対する均質化法定式^{(2),(4)}の要点と巨視的および微視的電気弾性特性の評価式を示す。

巨視的構造および微視的結晶構造における座標をそれぞれ $\mathbf{x} (= (x_1, x_2, x_3)^T)$, $\mathbf{y} (= (y_1, y_2, y_3)^T)$ と表し、両構造間のスケール比 λ を用いて次式のように関係づける。

$$\mathbf{y} = \frac{1}{\lambda} \mathbf{x} \dots\dots\dots (1)$$

3 次元圧電弾性体の挙動は、微視的構造に加えて式 (1) の λ の影響も受けるため、以下では関連する変数に対して上付添字 λ を付記してその依存性を明示する。

* 原稿受付 2002 年 8 月 26 日。

^{*1} 正員, 大阪工業大学工学部 (〒535-8585 大阪市旭区大宮 5-16-1)。^{*2} 大阪工業大学大学院。

E-mail: uetsuji@med.oit.ac.jp

Fig.1 Macro- and microscopic structures of polycrystalline materials.

ひずみ ε_{kl}^λ と電界 E_k^λ の線形結合により、応力 σ_{ij}^λ と電束密度 D_i^λ に関する線形圧電構成式が得られる。

$$\sigma_{ij}^\lambda = C_{ijkl}^{E\lambda} \varepsilon_{kl}^\lambda - e_{kij}^\lambda E_k^\lambda \quad (2)$$

$$D_i^\lambda = e_{ikl}^\lambda \varepsilon_{kl}^\lambda + \varepsilon_{ik}^{S\lambda} E_k^\lambda \quad (3)$$

ここで、 $C_{ijkl}^{E\lambda}$ 、 e_{kij}^λ および $\varepsilon_{ik}^{S\lambda}$ は、それぞれ電界一定時の弾性係数テンソルの成分、圧電定数テンソルの成分、ひずみ一定時の誘電率テンソルの成分である。なお、境界条件に依存する物性に対して、電界およびひずみ一定時を意味する上付添字 E および S を付記する。

全体構造に対する支配方程式は次式となる。

$$\begin{aligned} & \int_{\Omega^\lambda} \left(C_{ijkl}^{E\lambda} \varepsilon_{kl}^\lambda - e_{kij}^\lambda E_k^\lambda \right) \frac{\partial \delta u_i^\lambda}{\partial x_j} d\Omega \\ & + \int_{\Omega^\lambda} \left(e_{ikl}^\lambda \varepsilon_{kl}^\lambda + \varepsilon_{ik}^{S\lambda} E_k^\lambda \right) \frac{\partial \delta \phi^\lambda}{\partial x_i} d\Omega \\ & = \int_{\Gamma_d^\lambda} t_i \delta u_i^\lambda d\Gamma + \int_{\Gamma_e^\lambda} \rho \delta \phi^\lambda d\Gamma \quad \dots (4) \end{aligned}$$

ここで、 t_i は巨視的構造の表面 Γ_d^λ において作用する表面力ベクトルの成分、 ρ は巨視的構造の表面 Γ_e^λ における表面電荷を表し、 u_i^λ および ϕ^λ は全体構造における変位ベクトルの成分、静電ポテンシャルを示す。これらの変位および静電ポテンシャルの摂動法に基づく漸近展開式は次式となる。

$$u_i^\lambda = u_i^0(x) + \lambda u_i^1(x, y) + \dots \quad (5)$$

$$\phi^\lambda = \phi^0(x) + \lambda \phi^1(x, y) + \dots \quad (6)$$

ここで、 $u_i^0(x)$ 、 $\phi^0(x)$ は巨視的構造に対する変位ベクトルの成分および静電ポテンシャルを示し、 $u_i^1(x, y)$ 、 $\phi^1(x, y)$ は微視的構造における変位ベクトルの成分および静電ポテンシャルの摂動を意味する。本解析では 2 階層モデリングとして右辺第 2 項までを考慮する。ここで、 $u_i^1(x, y)$ および $\phi^1(x, y)$ が次式のように変数分離できると仮定する。

$$u_i^1(x, y) = \chi_i^{kl}(x, y) \frac{\partial u_k^0(x)}{\partial x_l} + \phi_i^m(x, y) \frac{\partial \phi^0(x)}{\partial x_m} \quad (7)$$

$$\phi^1(x, y) = \varphi^j(x, y) \frac{\partial u_j^0(x)}{\partial x_j} + R^k(x, y) \frac{\partial \phi^0(x)}{\partial x_k} \quad (8)$$

ここで、 $\chi_i^{kl}(x, y)$ は特性変位関数テンソルの成分、 $R^k(x, y)$ は特性静電ポテンシャル関数テンソルの成分、 $\varphi^j(x, y)$ および $\phi_i^m(x, y)$ は特性連成関数テンソルの成分である。式 (4) に平均化定理および式 (5)～(8) を適用することにより微視的構造および巨視的構造に対する支配方程式が得られる。式 (7)、(8) 中の特性関数テンソルは、微視的支配方程式の解となる。

巨視的な変位 $u_i^{\text{macro}}(x)$ および静電ポテンシャル $\phi^{\text{macro}}(x)$ 、微視的な変位 $u_i^{\text{micro}}(x, y)$ および静電ポテンシャル $\phi^{\text{micro}}(x, y)$ は次式により評価する。

$$u_i^{\text{macro}}(x) = u_i^0(x) \quad (9)$$

$$\phi^{\text{macro}}(x) = \phi^0(x) \quad (10)$$

$$u_i^{\text{micro}}(x, y) = y_j \frac{\partial u_i^0(x)}{\partial x_j} + u_i^1(x, y) \quad (11)$$

$$\phi^{\text{micro}}(x, y) = y_i \frac{\partial \phi^0(x)}{\partial x_i} + \phi^1(x, y) \quad (12)$$

式 (9)～(12) より巨視的なひずみ $\varepsilon_{ij}^{\text{macro}}(x)$ および電界 $E_i^{\text{macro}}(x)$ と微視的なひずみ $\varepsilon_{ij}^{\text{micro}}(x, y)$ および電界 $E_i^{\text{micro}}(x, y)$ は次式となる。

$$\varepsilon_{ij}^{\text{macro}}(x) = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i^{\text{macro}}(x)}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j^{\text{macro}}(x)}{\partial x_i} \right) \quad (13)$$

$$E_i^{\text{macro}}(x) = - \frac{\partial \phi^{\text{macro}}(x)}{\partial x_i} \quad (14)$$

$$\varepsilon_{ij}^{\text{micro}}(x, y) = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i^{\text{micro}}(x, y)}{\partial y_j} + \frac{\partial u_j^{\text{micro}}(x, y)}{\partial y_i} \right) \quad (15)$$

$$E_i^{\text{micro}}(x, y) = - \frac{\partial \phi^{\text{micro}}(x, y)}{\partial y_i} \quad (16)$$

3. 結晶形態の有限要素モデルと微視的評価手法

3.1 微視的有限要素モデル

多結晶モデルの生成においては、影響度の大きい結晶粒内分域方向（以下、結晶方位とよぶ）のみを反映させる。結晶方位の分布は、X 線回折により得られた極点図から決定できるが、本報では一例として正規分布を仮定し、結晶粒形状の不均質性は考慮せず結晶方位を各積分点に独立に割り振る。図 2 に微視的モデルに想定した方位頻度分布を示す。本図では結晶方位とその頻度の関係を明確にするため、任意の位置ベクトルによりこれらを表現する。すなわち、ベクトルの方角 θ 、 φ により結晶方位、ノルム F によりその方位を向く結晶の頻度を示す。本報では、外部分極電界が微視的構造座標 y_3 軸と一致する場合を想定し、結晶方位がランダムな状態 ($P^r/P^s = 0$ [%]) からすべての結晶方位を y_3 軸と一致させた状態 ($P^r/P^s = 100$ [%]) までの方位分布をもつ微視的有限要素モデルを用いる。ここで、

P' は巨視的な残留分極, P^s は単分域結晶体の自発分極を意味し, 両者の比 (以下, 分極比とよぶ) は方位分布から算出する⁽²⁾.

微視的有限要素モデルのサイズは $20 \times 20 \times 20 \text{ } [\mu\text{m}^3]$ とし, 8 節点アイソパラメトリック線形要素を用いた図 3 に示す $8 \times 8 \times 8$ 分割 (512 要素, 729 節点, 4096 積分点) の規則分割メッシュモデルを採用した.

3.2 微視的評価手法

任意の結晶方位分布でのフラクタルな微視的特性を視覚的に把握するため SDP を導入する. SDP の図示法を図 4 に示す. ある 2 つのデータ群を A, B とすると, 図 4 (a) に示す極座標で $(A, B) = (r, \theta)$ となるように描く. すなわち, 半径方向の分布はデータ A の特性, 円周方向の分布はデータ B の特性を意味する. また, 図 4 (b) に示す 6 軸対称図形とするため, 60° ごとに同じパターンを複製する.

Fig.2 Crystal orientations and its frequency.

Fig.3 Microscopic FE model for polycrystalline structure.

Fig. 4 Schematic diagram of SDP.

4. 結晶方位分布の影響

圧電多結晶体の巨視的特性は, 微視的結晶方位分布の影響を強く受け, 両者の関係は前報⁽²⁾で明らかにした. 一方, その微視的挙動はアクチュエータやセンサのような巨視的境界条件に強く依存する. そこで, 巨視的外部電界およびひずみを負荷した場合の微視的挙動を調査した. 解析対象はチタン酸バリウム (BaTiO_3) 多結晶体とし, 解析に用いた単分域結晶体の物性⁽⁵⁾を表 1 に示す.

4.1 巨視的電気弾性特性

巨視的電気弾性特性は, 分極比 P'/P^s が 0 [%] のとき等方性を示し, 分極比の増加に伴い徐々に異方性が現れ, 分極比が 100 [%] の場合, 単分域結晶体の特性と一致することを確認した⁽²⁾. 一例として, 巨視的圧電定数の予測結果を図 5 に示す. 特に, 圧電定数 d_{31}^H , d_{33}^H は分極比が 90 [%] で単分域結晶体を上回る極大値を示した. これは, 単分域結晶体の圧電定数 d_{31} および d_{33} が結晶格子の対角方向において最大値を示し,

Table 1 Material properties of single domain BaTiO_3

Relative dielectric constants	$\epsilon_{11}^T / \epsilon_0, \epsilon_{22}^T / \epsilon_0$	3125
	$\epsilon_{33}^T / \epsilon_0$	201.4
Piezoelectric constants ($\times 10^{-11} \text{ C/N}$)	d_{31}, d_{32}	-3.80
	d_{33}	11.0
	d_{15}, d_{24}	40.7
Elastic compliance constants ($\times 10^{-12} / \text{Pa}$)	s_{11}^E, s_{22}^E	8.20
	s_{33}^E	16.2
	s_{12}^E	-2.46
	s_{23}^E, s_{13}^E	-5.66
	s_{44}^E, s_{55}^E	15.4
	s_{66}^E	9.32

単分域結晶体の圧電定数が最大となる結晶方位の頻度が分極比 90 [%]において高くなることに起因する。

4.2 巨視的有限要素モデル

アクチュエータおよびセンサへの適用を想定して、図 6 に示す巨視的有限要素モデルに対して 1/8 対称の拘束条件下で x_3 軸方向に 0.10 [V/mm] の一様電界および 0.01 [%] の一様圧縮ひずみを与えた。巨視的有限要素モデルにも微視的有限要素モデルと同様に 8 節点アイソパラメトリック線形要素を適用し、そのサイズを $20 \times 20 \times 20$ [mm³]とした。また、一様な変位および電界場であることから、1 要素モデル(1 要素, 8 節点, 8 積分点)を採用した。さらに、巨視的有限要素モデルの各積分点には、同一の結晶方位分布を有する図 3 の微視的有限要素モデルを割り当てた。なお、巨視的構造と微視的構造の各座標軸は互いに平行であり、巨視的構造の外部負荷方向 x_3 軸は微視的構造の y_3 軸に対応するものとした。

Fig. 5 Macroscopic piezoelectric constants versus remanent polarization.

Fig. 6 Macroscopic FE model for polycrystalline structure.

4.3 微視的挙動の統計的評価

図 7, 8 にアクチュエータを想定した一様電界およびセンサを想定した一様ひずみを作用させた場合の微視的結晶方位と巨視的外部負荷方向の微視的応力 $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ の関係を示す。横軸の方位は巨視的外部負荷方向と結晶方位のなす角を示す。両図とも分極比の増加に伴い応力のばらつきが減少する様子が分かる。図 7 に示す一様電界を作用させた場合の応力分布では、 $\pm 55^\circ$ および $\pm 125^\circ$ に極値が見られる。これはチタン酸バリウム単分域結晶体の圧電特性が外部電界に対して自発分極方位が上記の角度を有する場合に最大になることに起因する。図 8 に示す一様ひずみを作用させた場合の応力分布では、いずれの分極比でも 0° , $\pm 90^\circ$ および $\pm 180^\circ$ に極値が見られる。これは、単分域結晶体の弾性定数が直交異方性を示すことに起因する。

図 9 に一様電界を作用させた場合の微視的結晶組織に発生したひずみおよび応力の平均値を示す。ひずみ $\varepsilon_{11}^{\text{micro}}$, $\varepsilon_{33}^{\text{micro}}$ は、図 5 の巨視的圧電定数 d_{31}^H , d_{33}^H の挙動と一致し、分極比が 90 [%]で最大値を示した。一方、応力 $\sigma_{11}^{\text{micro}}$ は分極比が 76 [%], $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ は分極比が 54 [%]で最大値を示した。この現象を特徴的な方位の結晶粒に着目して考察する。分極比が 54~76 [%]では、外部電界方向となす角が 0° である結晶粒の頻度が高く、 90° の結晶粒の頻度が低い。表 1 に示す単分域結晶体の物性値から分かるように、 y_3 方向の外部電界により 0° の結晶粒は y_3 方向に伸び y_1 方向に縮む。一方、 90° の結晶粒は外部電界によりせん断変形を生じる。このため、隣接する結晶粒の相互作用によって 90° の結晶粒には y_1 および y_3 方向に引張応力 $\sigma_{11}^{\text{micro}}$ および $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ が発生し、 0° の結晶粒には y_3 方向に圧縮応力 $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ と y_1 方向に引張応力 $\sigma_{11}^{\text{micro}}$ が発生する。応力値は頻度の低い 90° の結晶粒で高く、頻度の高い 0° の結晶粒で低くなる。分極比がさらに増加すると、 90° の結晶粒の頻度が低下するため、これら応力の平均値は減少する。応力 $\sigma_{11}^{\text{micro}}$ は 0° および 90° の結晶粒で引張となるため、その平均値は比較的高い分極比 76 [%]で最大値を示す。一方、応力 $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ は 0° の結晶粒で圧縮、 90° の結晶粒で引張であるため、その平均値は 0° の結晶粒の頻度が比較的低い状態、すなわち $\sigma_{11}^{\text{micro}}$ に比べ低い分極比 54 [%]において最大値を示す。一様電界を作用させた場合の微視的ひずみおよび応力の標準偏差を図 10 に示す。各成分とも分極比の増加に伴いおおむね減少した。特に、応力 $\sigma_{11}^{\text{micro}}$ および $\sigma_{12}^{\text{micro}}$ は、分極比がおおよそ 80 [%]付近から急激に減少した。

図 11 に一様ひずみを作用させた際の微視的組織に発生した電界および応力の平均値を示す。電界 E_3^{micro}

は分極比が 0.0 [%] のとき圧電効果を示さないが、分極比の増加に伴い飛躍的な特性の向上がみられた。応力 $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ は分極比が 92 [%] 付近でばらつきの減少に起因する応力緩和の傾向が得られた。これらの標準偏差を図 12 に示す。電界の標準偏差は分極比に伴い増加し、分極比が 97 [%] で極大値を示した後、結晶方位が

完全に一致する 100 [%] で一様電界となった。この極大値は、結晶方位が揃うことで巨視的圧電効果が向上し微視的電界の絶対値が急増すること、さらに結晶方位の均一化により微視的電界のばらつきが消滅することに起因して現れるものと考えられる。一方、応力は分極比の増加に伴い減少する結果が得られた。

Fig. 7 Relation between microscopic stress $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ and crystal orientation under macroscopic uniform electric field.

Fig. 8 Relation between microscopic stress $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ and crystal orientation under macroscopic uniform strain field.

Fig. 9 Average of microscopic strain and stress under macroscopic uniform electric field.

Fig. 10 Standard deviation of microscopic strain and stress under macroscopic uniform electric field.

Fig. 11 Average of microscopic electric field and stress under macroscopic uniform strain field.

Fig. 12 Standard deviation of microscopic electric field and stress under macroscopic uniform strain field.

Fig. 13 SDP diagrams of microscopic strain $\epsilon_{33}^{\text{micro}}$ and stress $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ under macroscopic uniform electric field. ($r: \epsilon_{33}^{\text{micro}}, \theta: \sigma_{33}^{\text{micro}}$)

4.4 SDP を用いた微視的挙動の特性化

一様電界を作用させた場合の微視的挙動に対して、半径方向をひずみ $\epsilon_{33}^{\text{micro}}$ 、円周方向を応力 $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ とした SDP を図 13 に示す。分極比が増加すると、ひずみは増加し、分極比が 76 [%] 以上になるとひずみと応力の局在化が顕著になった。また、分極比が 90 [%] で平均的なひずみが最大となる様子が分かる。

一様ひずみを作用させた場合の微視的挙動に対して、半径方向を電界 E_3^{micro} 、円周方向を応力 $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ とした SDP を図 14 に示す。分極比が増加すると、電界は増加し、分極比が 76 [%] 以上で電界の増加と応力の局在化が顕著になった。両図から SDP の導入により結晶形態に起因するフラクタルな微視的挙動の特性化が可能となり、分極比による差異が明確になった。

5. 結 言

結晶形態を微視的構造として記述する結晶均質化法により巨視的境界条件が異なる微視的電気弾性挙動を明らかにした。チタン酸バリウムを対象に数値解析を行い、任意の結晶方位分布での微視的挙動に対して、統計学に基づく定量的評価と SDP を導入した定性的

Fig. 14 SDP diagrams of microscopic electric field E_3^{micro} and stress $\sigma_{33}^{\text{micro}}$ under macroscopic uniform strain field. ($r: E_3^{\text{micro}}, \theta: \sigma_{33}^{\text{micro}}$)

評価を実施した。その結果、巨視的圧電特性が最大を示す $P'/P^s = 80$ [%] 以上で微視的挙動の急激な向上が期待できることを明らかにした。さらに、SDP を導入することにより不均質結晶構造のフラクタルな微視的挙動を特性化することができた。このことから、従来の統計学に基づく定量的評価と提案する SDP による視覚的評価の併用は、結晶方位制御による圧電デバイス材料創製に有効であると考えられる。なお、本研究の一部は、平成 14 年度文部科学省「バイオベンチャー研究開発拠点整備事業」の援助を得て遂行した。

文 献

- (1) 中 重治・早川 茂, “電子材料セラミックス”, オーム社, (1986), 13-34.
- (2) 上辻靖智・中村征広・上田 整・仲町英治, 機論, 69-679, A (2003) 501-508.
- (3) Chifford A. Pickover, *J. Acoust. Soc. Am.*, **80-3** (1986), 955-960.
- (4) E. C. Silva, J. S. O. Fonseca, F. M. Espinosa, A. T. Crumm, G. A. Brady, J. W. Halloran and N. Kikuchi, *Archives Comput. Methods Eng.*, **6** (1999), 117-182.
- (5) J. A. Pertsev, A. G. Zembilgotov and R. Waser, *J. Appl. Phys.*, **84** (1998), 1524-1529.