

УДК 539.3, 537.226.4

МИКРОМЕХАНИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКОГО СЕГНЕТОЭЛЕКТРОУПРУГОГО МАТЕРИАЛА С УЧЕТОМ ДЕФЕКТОВ

А. С. Семенов

Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
195251 Санкт-Петербург, Россия
E-mail: semenov.artem@googlemail.com

Предложены определяющие уравнения, описывающие нелинейное поведение поликристаллического сегнетоэлектродупругого материала и учитывающие диссипативный характер движения доменных стенок, наличие точечных (нуль-мерных) дефектов и их влияние на процессы переключения в диапазоне температур, в котором отсутствуют фазовые переходы. Для описания поведения поликристаллического сегнетоэлектродупругого материала на макроуровне используется метод двухуровневой гомогенизации. Показано, что учет наличия дефектов в микромеханической модели сегнетоэлектродупругих материалов позволяет значительно увеличить точность модели при многоосном нагружении. Проведено сравнение результатов расчетов и экспериментальных данных, с использованием которых построены кривые диэлектрического гистерезиса и поверхности переключения при непропорциональном нагружении поликристаллических пьезокерамик PZT-4D, PZT-5H и BaTiO₃. Установлено, что предложенная модель является достаточно точной.

Ключевые слова: поликристаллическая пьезокерамика, точечные дефекты, диссипация, гистерезис, поверхность переключения, непропорциональное нагружение, гомогенизация, моделирование.

DOI: 10.15372/PMTF20190618

ВВЕДЕНИЕ

Сегнетоэлектродупругие материалы (сегнетоэлектрики [1, 2] и сегнетоэластики [2, 3]), характерным примером которых является поликристаллическая пьезокерамика [4], представляют собой перспективные активные [5], а именно многофункциональные [6], интеллектуальные [7], смарт-материалы [8] с уникальными свойствами. Такие материалы используются в качестве рабочих элементов сенсоров и актуаторов (топливные инжекторы, нанопозиционеры, микромоторы, приводы сканирующих туннельных микроскопов, гасители вибраций) [5, 6, 9], пьезотрансформаторов, элементов памяти, датчиков быстропеременных давлений. При изготовлении и (или) эксплуатации элементы из сегнетоэлектродупругих материалов подвергаются значительным электрическим и механическим воз-

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (код проекта 18-19-00413).

действиям, что может приводить к их повреждениям, изменению свойств и даже разрушению. Поэтому актуальны исследования поведения сегнетоэластичных материалов, в которых не происходят структурные фазовые переходы в рабочем диапазоне температур, но происходят процессы поляризации, необратимого деформирования и разрушения. При этом возникает необходимость учета нелинейного электромеханического поведения, что требует разработки уточненных моделей [5, 10–23] и использования методов численного решения нелинейных краевых задач [24, 25].

В настоящее время для описания процессов необратимого деформирования и поляризации сегнетоэластичных материалов при многоосном комбинированном электромеханическом нагружении в диапазоне температур вдали от точки Кюри используются как феноменологические [10–13], так и микромеханические [14–23] модели сплошной среды. Феноменологические модели строятся на основе принципа максимума диссипации, первоначально предложенного в теории пластичности. Микромеханические модели учитывают полидоменную структуру и диссипативный характер движения доменных стенок. В простейших микромеханических моделях [14–17] не учитывается взаимное влияние монокристаллов и проводится осреднение откликов в предположении, что напряжения равны и электрические поля во всех монокристаллах одинаковы (приближение Рейсса). Это влияние упрощенно учитывается при использовании самосогласованных моделей [18, 19]. Детальное описание взаимного влияния отдельных кристаллитов возможно при использовании моделей, основанных на применении методов конечно-элементной гомогенизации представительного объема поликристалла [20–23]. Учет взаимного влияния и возникающих вследствие его наличия микронапряжений важен при анализе поведения материала в случае сложного непропорционального и циклического нагружения. Этот подход используется в данной работе.

В отличие от идеальных (бездефектных) кристаллов в реальных кристаллах на процесс поляризации значительное влияние оказывают точечные дефекты кристаллической решетки (см., например, [2, 26–29]). Многочисленные эксперименты показывают, что дефектная структура кристалла определяет процессы формирования и движения доменных границ, форму гистерезисных кривых, коэрцитивное поле и время переключения [2, 28, 30–33]. При этом наблюдается пиннинг [28, 34–36] — закрепление доменных стенок на дефектах.

Появление одинаково ориентированных полярных дефектов фиксированной ориентации (не изменяющейся под действием внешнего поля) в моно- и поликристаллах приводит к смещению петель гистерезиса [2, 30, 32]. Для упорядоченных в пределах доменов сонаправленных необращаемых полярных дефектов может наблюдаться двойная петля гистерезиса [2]. Возникновение неупорядоченных дефектов, например при введении дефектов в параэлектрической фазе, приводит к увеличению коэрцитивного поля без смещения и изменения формы петли [2, 33].

Перечисленные выше микромеханические теории непосредственно не учитывают наличие дефектов. Одной из целей данной работы является учет этого влияния путем введения дополнительной внутренней переменной состояния, характеризующей поляризацию, вызванную наличием дефектов.

В литературе приведены результаты экспериментальных исследований электромеханического поведения сегнетоэластичных материалов при монотонном и циклическом воздействии, которые, как правило, проводились при одноосном нагружении. Исключение составляют работы [15, 37, 38], в которых описываются испытания сегнетоэластичных материалов в условиях многоосного непропорционального электромеханического воздействия. Построение модели эволюции формы поверхности переключений [37] при многоосном нагружении является сложной задачей. Целью данной работы является создание мик-

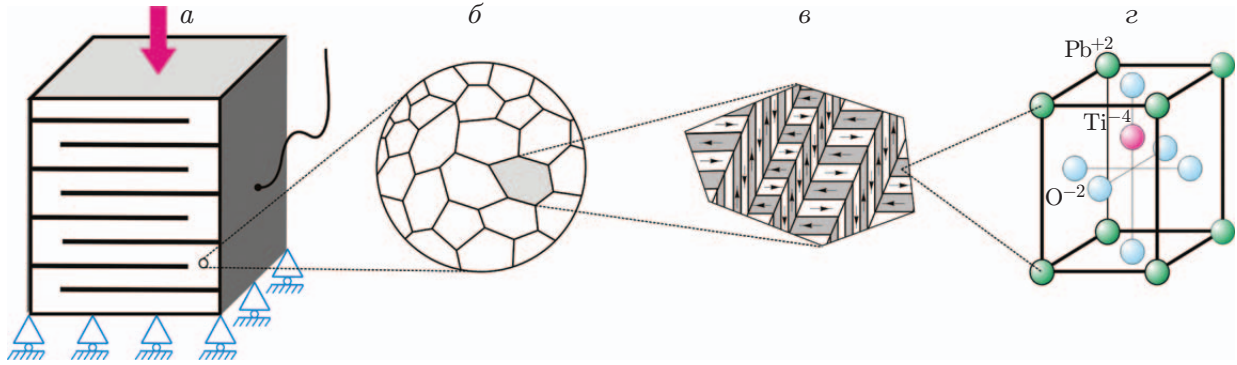


Рис. 1. Масштабные уровни структуры поликристаллической сегнетопъезокерамики:
 а — макроуровень (конструкция), б — мезоуровень (зерна), в — микроуровень (домены), г — наноуровень (элементарная ячейка)

ромеханической континуальной модели сегнетоэлектроругого материала, учитывающей наличие дефектов и адекватно описывающей результаты экспериментов по одноосному и многоосному нагружению, а также эволюцию поверхности переключений.

1. ДВУХУРОВНЕВАЯ ГОМОГЕНИЗАЦИЯ

Для описания поведения поликристаллического сегнетоэлектроругого материала на макроуровне в настоящей работе используется метод двухуровневой гомогенизации, применяемый для систем, в которых можно выделить три характерных масштабных уровня: домен (элементарная ячейка кристаллической решетки), кристалл, поликристалл. На рис. 1 показана иерархия рассматриваемых масштабных уровней для сегнетопъезокерамических материалов на основе цирконат-титаната свинца с характерными размерами элементарной ячейки периодичности $\sim 10^{-10}$ м, домена $\sim 10^{-7} \div 10^{-5}$ м, кристаллита $\sim 10^{-5} \div 10^{-4}$ м и размером элемента устройства $\sim 10^{-3} \div 10^{-1}$ м.

Сепарабельность масштабов неоднородностей позволяет ввести элементарные представительные объемы (ЭПО) на микро- и мезоуровнях. В данной работе гомогенизация при переходе от мезоуровня кристаллитов к макроуровню поликристалла осуществляется на основе метода конечных элементов. Использование альтернативных упрощенных схем гомогенизации (метода самосогласования [18], подходов Фойгта или Рейсса, правила смесей) не позволяет адекватно описать взаимное влияние кристаллитов.

Связь между макроскопическими электромеханическими переменными $\{\bar{\varepsilon}, \bar{\sigma}, \bar{\mathbf{D}}, \bar{\mathbf{E}}\}$ и переменными на мезоуровне $\{\varepsilon, \sigma, \mathbf{D}, \mathbf{E}\}$ (ε, σ — тензоры деформации и напряжений; \mathbf{D}, \mathbf{E} — векторы электрической индукции (электрического смещения) и напряженности электрического поля) определяется уравнениями

$$\bar{\varepsilon} = \frac{1}{V_{\text{ЭПО}}} \int_{V_{\text{ЭПО}}} \varepsilon dV = \frac{1}{V_{\text{ЭПО}}} \int_{\partial V_{\text{ЭПО}}} (\mathbf{u} \otimes \mathbf{n})^S dS; \tag{1}$$

$$\bar{\sigma} = \frac{1}{V_{\text{ЭПО}}} \int_{V_{\text{ЭПО}}} \sigma dV = \frac{1}{V_{\text{ЭПО}}} \int_{\partial V_{\text{ЭПО}}} (\mathbf{n} \cdot \sigma \otimes \mathbf{r})^S dS; \tag{2}$$

$$\bar{\mathbf{D}} = \frac{1}{V_{\text{ЭПО}}} \int_{V_{\text{ЭПО}}} \mathbf{D} dV = -\frac{1}{V_{\text{ЭПО}}} \int_{\partial V_{\text{ЭПО}}} qsr dS; \tag{3}$$

$$\bar{\mathbf{E}} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОП}}} \int_{V_{\text{ЭПОП}}} \mathbf{E} dV = -\frac{1}{V_{\text{ЭПОП}}} \int_{\partial V_{\text{ЭПОП}}} \varphi \mathbf{n} dS. \quad (4)$$

В (1)–(4) $V_{\text{ЭПОП}}$ — ЭПО поликристалла, ограниченный замкнутой поверхностью $\partial V_{\text{ЭПОП}}$ с внешней нормалью \mathbf{n} ; \mathbf{u} — вектор перемещений; \mathbf{r} — радиус-вектор; q_S — плотность поверхностных зарядов; φ — электрический скалярный потенциал; $\mathbf{E} = -\nabla\varphi$; знак “ \otimes ” обозначает операцию диадного произведения; $(\mathbf{u} \otimes \mathbf{n})^S = (1/2)(\mathbf{u} \otimes \mathbf{n} + \mathbf{n} \otimes \mathbf{u})$ — симметричная часть диады.

Гомогенизация при переходе с уровня домена на уровень монокристалла осуществляется аналитически с использованием осреднения Рейсса (в предположении однородности полей напряжений и напряженности электрического поля в кристалле). Второй уровень гомогенизации вводится упрощенно с целью учесть полидоменную структуру кристаллита на микроуровне при описании процессов поляризации без значительного усложнения модели.

С использованием подхода Рейсса связь между переменными $\{\varepsilon, \sigma, \mathbf{D}, \mathbf{E}\}$ на мезоуровне и $\{\tilde{\varepsilon}, \tilde{\sigma}, \tilde{\mathbf{D}}, \tilde{\mathbf{E}}\}$ на микроуровне определяется уравнениями

$$\varepsilon = \frac{1}{V_{\text{ЭПОК}}} \int_{V_{\text{ЭПОК}}} \tilde{\varepsilon} dV = \sum_{I=1}^N c_I \tilde{\varepsilon}_I; \quad (5)$$

$$\sigma = \frac{1}{V_{\text{ЭПОК}}} \int_{V_{\text{ЭПОК}}} \tilde{\sigma} dV \equiv \tilde{\sigma}; \quad (6)$$

$$\mathbf{D} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОК}}} \int_{V_{\text{ЭПОК}}} \tilde{\mathbf{D}} dV = \sum_{I=1}^N c_I \tilde{\mathbf{D}}_I; \quad (7)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОК}}} \int_{V_{\text{ЭПОК}}} \tilde{\mathbf{E}} dV \equiv \tilde{\mathbf{E}}. \quad (8)$$

В (5)–(8) $V_{\text{ЭПОК}}$ — ЭПО кристаллита (зерна); $\tilde{\varepsilon}_I$ — тензор деформации I -го домена; $\tilde{\mathbf{D}}_I$ — вектор электрического смещения I -го домена; N — количество доменов в кристаллите; c_I — концентрация (объемная доля) I -го домена в монокристалле, удовлетворяющая ограничениям

$$0 \leq c_I \leq 1, \quad \sum_{I=1}^N c_I = 1. \quad (9)$$

Пространственная структура доменов в предлагаемом подходе не рассматривается. Учитывается лишь совокупный вклад доменов сонаправленной ориентации в поляризацию и деформацию кристаллита.

2. ОПРЕДЕЛЯЮЩИЕ УРАВНЕНИЯ МИКРОМЕХАНИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ МОНОКРИСТАЛЛА

2.1. Модель без учета дефектов. Склерономная микромеханическая модель для монокристалла с учетом диссипативного характера движения доменных стенок предложена в [18] и развита в работах [15, 16, 19–23]. Модель имеет строгое термодинамическое обоснование и экспериментальное подтверждение [18–23] для различных программ электромеханического воздействия.

При формулировке определяющих уравнений предполагается, что деформации являются малыми, поскольку в процессе переключения деформация решетки не превышает 7 % (например, для титаната бария при $a = 3,989 \text{ \AA}$, $c = 4,029 \text{ \AA}$ [5] в тетрагональной фазе деформация составляет $(c - a)/a = 1,002 \%$, для титаната свинца при $a = 3,896 \text{ \AA}$ и $c = 4,136 \text{ \AA}$ [5] $(c - a)/a = 6,160 \%$). Принимается, что тензор деформации ε и вектор электрической индукции \mathbf{D} допускают декомпозицию в виде суммы линейных (обратимых) ε^l , \mathbf{D}^l и остаточных (аналог пластических) ε^r , \mathbf{P}^r составляющих:

$$\varepsilon = \varepsilon^l + \varepsilon^r, \quad \mathbf{D} = \mathbf{D}^l + \mathbf{P}^r. \quad (10)$$

Для обратимых составляющих справедливы линейные соотношения

$$\varepsilon^l = \varepsilon - \varepsilon^r = {}^4S^E \cdot \cdot \sigma + {}^3d^T \cdot \mathbf{E}, \quad \mathbf{D}^l = \mathbf{D} - \mathbf{P}^r = {}^3d \cdot \cdot \sigma + \varkappa^\sigma \cdot \mathbf{E}, \quad (11)$$

допускающие обращенную форму

$$\sigma = {}^4C^D \cdot \cdot (\varepsilon - \varepsilon^r) - {}^3h^T \cdot (\mathbf{D} - \mathbf{P}^r), \quad \mathbf{E} = -{}^3h \cdot \cdot (\varepsilon - \varepsilon^r) + \beta^\varepsilon \cdot (\mathbf{D} - \mathbf{P}^r), \quad (12)$$

где ${}^4S^E$ — тензор модулей упругой податливости кристалла (тензор четвертого ранга); 3d — тензор пьезоэлектрических модулей кристалла (тензор третьего ранга); \varkappa^σ — тензор модулей диэлектрической проницаемости (тензор второго ранга); тензоры ${}^4C^D$, ${}^3h^T$, β^ε определяются на основе тензоров ${}^4S^E$, ${}^3d^T$, \varkappa^σ путем инверсии блочной матрицы.

Процессы необратимого деформирования и спонтанной поляризации пьезокерамики обусловлены возможностью скачкообразного перемещения атомов кристаллической решетки, не являющихся центрально-симметричными. В тетрагональном монокристалле реализуется $N = 6$ ориентаций спонтанной поляризации $\langle 001 \rangle$ (вдоль положительных и отрицательных направлений трех кристаллографических осей), соответствующих шести возможным вариантам доменов и $M = N(N - 1) = 30$ системам переключения. В ромбоэдрическом монокристалле реализуется $N = 8$ ориентаций спонтанной поляризации $\langle 111 \rangle$ (вдоль направлений четырех главных диагоналей кристаллической ячейки), соответствующих восьми возможным вариантам доменов и 56 системам переключения. В орторомбическом монокристалле реализуется $N = 12$ ориентаций спонтанной поляризации $\langle 011 \rangle$ (вдоль диагоналей граней кристаллической ячейки), соответствующих 12 возможным вариантам доменов и 132 системам переключения. В этом случае тензор остаточной деформации и вектор остаточной поляризации кристаллита могут быть представлены в виде сумм вкладов отдельных доменов:

$$\varepsilon^r = \sum_{I=1}^N c_I \tilde{\varepsilon}_I^r, \quad \mathbf{P}^r = \sum_{I=1}^N c_I \tilde{\mathbf{P}}_I^r. \quad (13)$$

Здесь c_I — концентрация (объемная доля) I -го домена в монокристалле; величины со знаком “ \sim ” обозначают переменные, определяемые на уровне домена.

Модули монокристалла ${}^4S^E$, 3d , \varkappa^σ определяются на основе модулей отдельных доменов ${}^4\tilde{S}_I^E$, ${}^3\tilde{d}_I$, $\tilde{\varkappa}_I^\sigma$ соотношениями, аналогичными (13):

$${}^4S^E = \sum_{I=1}^N c_I {}^4\tilde{S}_I^E, \quad {}^3d = \sum_{I=1}^N c_I {}^3\tilde{d}_I, \quad \varkappa^\sigma = \sum_{I=1}^N c_I \tilde{\varkappa}_I^\sigma. \quad (14)$$

Скорость изменения концентрации I -го домена монокристалла выражается через разность скоростей переключения доменов из состояния с ориентацией J в I и в направлении из состояния с ориентацией I в J :

$$\dot{c}_I = \sum_{J=1}^N (\dot{c}^{J \rightarrow I} - \dot{c}^{I \rightarrow J}). \quad (15)$$

С учетом первого соотношения (13) и (15) скорости остаточных деформаций могут быть представлены в виде

$$\begin{aligned} \dot{\varepsilon}^r &= \sum_{I=1}^N \dot{c}_I \tilde{\varepsilon}_I^r = \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^N (\dot{c}^{J \rightarrow I} - \dot{c}^{I \rightarrow J}) \tilde{\varepsilon}_I^r = \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^N \dot{c}^{J \rightarrow I} \tilde{\varepsilon}_I^r - \sum_{J=1}^N \sum_{I=1}^N \dot{c}^{J \rightarrow I} \tilde{\varepsilon}_J^r = \\ &= \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^N \dot{c}^{J \rightarrow I} (\tilde{\varepsilon}_I^r - \tilde{\varepsilon}_J^r), \end{aligned} \quad (16)$$

откуда следует представление для тензора скорости остаточной деформации, а также выражение для вектора скорости поляризации:

$$\dot{\varepsilon}^r = \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^N \dot{c}^{J \rightarrow I} \Delta \tilde{\varepsilon}_{J \rightarrow I}^r, \quad \dot{\mathbf{P}}^r = \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^N \dot{c}^{J \rightarrow I} \Delta \tilde{\mathbf{P}}_{J \rightarrow I}^r. \quad (17)$$

Здесь величины $\Delta \tilde{\varepsilon}_{J \rightarrow I}^r = \tilde{\varepsilon}_I^r - \tilde{\varepsilon}_J^r = \tilde{\mu}_{J \rightarrow I} \tilde{\varepsilon}_0^r$ и $\Delta \tilde{\mathbf{P}}_{J \rightarrow I}^r = \tilde{\mathbf{P}}_I^r - \tilde{\mathbf{P}}_J^r = \tilde{\beta}_{J \rightarrow I} \tilde{P}_0^r$ определяются константами, характеризующими кристаллическую решетку; $\tilde{\mu}_{J \rightarrow I}$, $\tilde{\beta}_{J \rightarrow I}$ — тензор и вектор Шмида; $\tilde{\varepsilon}_0^r$, \tilde{P}_0^r — скалярные величины, определяемые спонтанной деформацией и поляризацией.

Аналогично с использованием уравнений (14), (15) определяются модули

$${}^4 \dot{S}^E = \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^N \dot{c}^{J \rightarrow I} \Delta {}^4 \tilde{S}_{J \rightarrow I}^E, \quad {}^3 \dot{d} = \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^N \dot{c}^{J \rightarrow I} \Delta {}^3 \tilde{d}_{J \rightarrow I}, \quad \dot{\varkappa}^\sigma = \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^N \dot{c}^{J \rightarrow I} \Delta \tilde{\varkappa}_{J \rightarrow I}^\sigma. \quad (18)$$

Уравнения для вычисления кинематических переменных $\dot{c}^{J \rightarrow I}$, играющих важную роль при описании процессов переключения, вводятся таким образом, чтобы априори выполнялись термодинамические ограничения. Для этого сначала введем величину свободной энергии (термодинамический потенциал Гельмгольца) в виде квадратичной формы по обратимым составляющим деформации и индукции:

$$\begin{aligned} \psi &= \frac{1}{2} (\varepsilon - \varepsilon^r) \cdot \cdot {}^4 C^D \cdot \cdot (\varepsilon - \varepsilon^r) - (\varepsilon - \varepsilon^r) \cdot \cdot {}^3 h \cdot (\mathbf{D} - \mathbf{P}^r) + \\ &+ \frac{1}{2} (\mathbf{D} - \mathbf{P}^r) \cdot \beta^\varepsilon \cdot (\mathbf{D} - \mathbf{P}^r). \end{aligned} \quad (19)$$

Свободная энергия является функцией тензора обратимых деформаций ε^l , вектора обратимого электрического смещения \mathbf{D}^l и внутренних переменных c_I : $\psi(\varepsilon^l, \mathbf{D}^l, c_I)$. Изменение внутренних переменных определяет изменение величин ε^r , \mathbf{P}^r , ${}^4 C^E$, ${}^3 h$, β^ε в соответствии с (13), (14).

Тензор напряжений и вектор напряженности электрического поля могут быть определены через производную от свободной энергии: $\sigma = \partial \psi / \partial \varepsilon^l$, $\mathbf{E} = \partial \psi / \partial \mathbf{D}^l$. Если свободная энергия ψ представляется в квадратичной форме (19), то имеют место уравнения (12).

Мощность диссипации определяется выражением

$$\begin{aligned} \delta &= \sigma \cdot \cdot \dot{\varepsilon} + \mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{D}} - \dot{\psi} = \sigma \cdot \cdot \dot{\varepsilon}^r + \mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{P}}^r + \frac{1}{2} \sigma \cdot \cdot {}^4 \dot{S}^E \cdot \cdot \sigma + \\ &+ \sigma \cdot \cdot {}^3 \dot{d} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{2} \mathbf{E} \cdot \dot{\varkappa}^\sigma \cdot \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (20)$$

Подставляя (17), (18) в (20), получаем выражение

$$\delta = \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^N \dot{c}^{J \rightarrow I} G^{J \rightarrow I}, \quad (21)$$

где движущая сила $G^{J \rightarrow I}$, сопряженная с $c^{J \rightarrow I}$, определяется равенством

$$G^{J \rightarrow I} = \sigma \cdot \Delta \tilde{\varepsilon}_{J \rightarrow I}^r + \mathbf{E} \cdot \Delta \tilde{\mathbf{P}}_{J \rightarrow I}^r + \frac{1}{2} \sigma \cdot \Delta^4 \tilde{S}_{J \rightarrow I}^E \cdot \sigma + \sigma \cdot \Delta^3 \tilde{d}_{J \rightarrow I} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{2} \mathbf{E} \cdot \Delta \tilde{\varkappa}_{J \rightarrow I}^\sigma \cdot \mathbf{E}. \quad (22)$$

Уравнение эволюции $\dot{c}^{J \rightarrow I}$, удовлетворяющее условию неотрицательности диссипации $\delta \geq 0$, принимается в виде

$$\dot{c}^{J \rightarrow I} = B^{J \rightarrow I} \frac{G^{J \rightarrow I}}{G_c^{J \rightarrow I}} \left| \frac{G^{J \rightarrow I}}{G_c^{J \rightarrow I}} \right|^{n-1} \left(\frac{c_J}{C_0} \right)^m, \quad (23)$$

где $G_c^{J \rightarrow I} > 0$, $B^{J \rightarrow I} > 0$, $n > 0$, $m > 0$, $C_0 > 0$ — константы материала, определяющие форму гистерезисных кривых. Для описания склерономного поведения материала следует выбрать $n \gg 1$. Наличие последнего множителя в (23) позволяет описать процесс насыщения, и при этом c_I удовлетворяет неравенствам (9).

В силу определения $\Delta \tilde{\varepsilon}_{J \rightarrow I}^r = \tilde{\varepsilon}_I^r - \tilde{\varepsilon}_J^r = -\Delta \tilde{\varepsilon}_{I \rightarrow J}^r$ и $\Delta \tilde{\mathbf{P}}_{J \rightarrow I}^r = \tilde{\mathbf{P}}_I^r - \tilde{\mathbf{P}}_J^r = -\Delta \tilde{\mathbf{P}}_{I \rightarrow J}^r$. Поэтому из выражения (22) следует $G^{J \rightarrow I} = -G^{I \rightarrow J}$. С учетом этого и уравнения (23) получаем $\dot{c}^{J \rightarrow I} = -\dot{c}^{I \rightarrow J}$. Введенное ограничение позволяет уменьшить число независимых внутренних переменных $c^{J \rightarrow I}$ с N^2 до $M = N(N - 1)$, а также число слагаемых в вы-

ражениях (17), (18) с учетом равенства $\dot{\varepsilon}^r = 2 \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^{I-1} \dot{c}^{J \rightarrow I} \Delta \tilde{\varepsilon}_{J \rightarrow I}^r$. Аналогичные правила суммирования используются для $\dot{\mathbf{P}}^r$, ${}^4 \dot{S}^E$, ${}^3 \dot{d}$, $\dot{\varkappa}^\sigma$.

2.2. Модель с учетом дефектов. Дефекты кристаллической решетки оказывают значительное влияние на процессы формирования и движения доменных границ и как следствие на коэрцитивное поле и форму гистерезисных кривых. Многообразие потенциально возможных типов дефектов: точечные заряженные (полярные) дефекты; точечные незаряженные дефекты (междоузельные атомы и вакансии, а также примесные атомы); линейные дефекты-дислокации; дефекты с механизмами образования по Френкелю или по Шоттки; дефекты с легко- и труднообразаемой поляризацией (“замороженные”); дефекты типа случайного локального поля, случайной локальной температуры перехода, случайной локальной анизотропии; дефекты, обусловленные электромиграцией кислородных вакансий и др., — затрудняет получение единых зависимостей. Теоретическая модель фазовых переходов при наличии дефектов изложена в [39, 40]. Анализ взаимодействия доменных границ с дефектами с использованием аналитических методов выполнен в [36, 40], с использованием метода конечных элементов — в [41], с использованием первых принципов — в [42].

В данной работе для описания электромеханического состояния реального кристаллита дополнительно вводятся две внутренние переменные: вектор поляризации \mathbf{P}^d и тензор деформации ε^d , учитывающие наличие дефектов в кристаллической решетке. Эти переменные являются аргументами свободной энергии и уравнений эволюции других внутренних переменных. Предполагается, что обусловленные наличием точечных дефектов поляризация кристаллита \mathbf{P}^d и его деформация ε^d определяются соотношениями

$$\mathbf{P}^d = \frac{1}{V_{\text{ЭПОК}}} \int_{V_{\text{ЭПОК}}} \tilde{\mathbf{P}}^d dV, \quad \varepsilon^d = \frac{1}{V_{\text{ЭПОК}}} \int_{V_{\text{ЭПОК}}} \tilde{\varepsilon}^d dV. \quad (24)$$

Оценка подынтегральных величин в (24) может быть проведена на основе следующих рассуждений. Изменение дипольного момента $\tilde{\mathbf{p}}^d$ при образовании дефекта определяется

выражением [2]

$$\tilde{\mathbf{p}}^d = \tilde{\mathbf{p}}^s + \sum_i \tilde{q}_i \Delta \tilde{\mathbf{r}}_i,$$

где $\tilde{\mathbf{p}}^s$ — собственный дипольный момент дефекта, положение которого не совпадает с положением центра инверсии; $\Delta \tilde{\mathbf{r}}_i$ — смещение зарядов \tilde{q}_i окружающей дефект решетки. Распределение полей электрического потенциала и вектора поляризации неподвижного диполя описывается равенствами

$$\begin{aligned} \tilde{\varphi}^d &= -(4\pi\varepsilon_0)^{-1} \tilde{\mathbf{p}}^d \cdot \nabla r^{-1} = (4\pi\varepsilon_0)^{-1} \tilde{\mathbf{p}}^d \cdot \mathbf{r} r^{-3}, \\ \tilde{\mathbf{P}}^d &= (4\pi\varepsilon_0)^{-1} \tilde{\mathbf{p}}^d \cdot \nabla \nabla r^{-1} (\varepsilon - \varepsilon_0) = -(4\pi\varepsilon_0)^{-1} \tilde{\mathbf{p}}^d \cdot (I - 3\mathbf{r}\mathbf{r}\mathbf{r}^{-2}) r^{-3} (\varepsilon - \varepsilon_0), \end{aligned}$$

где \mathbf{r} — радиус-вектор, начало которого находится в точке, где расположен дефект; r — его длина. В соответствии с континуальной теорией точечных дефектов [43] перемещения в неограниченном теле вследствие образования точечного дефекта (помещения (удаления) шара в несоизмерную ему сферическую полость) имеют вид

$$\tilde{\mathbf{u}}^d = -c \nabla r^{-1} = c \mathbf{r} r^{-3},$$

где $c = \Delta V / (4\pi)$ — мощность дефекта. Соответствующие этим перемещениям деформации определяются равенством

$$\tilde{\varepsilon}^d = -c \nabla \nabla r^{-1} = c (I - 3\mathbf{r}\mathbf{r}\mathbf{r}^{-2}) r^{-3},$$

где I — единичный тензор.

При формулировке определяющих уравнений предполагается, что величины \mathbf{P}^d , ε^d , характеризующие влияние дефектов, так же как и величины \mathbf{P}^r , ε^r , учитывающие процессы переключения, представляют собой вклад в спонтанную поляризацию и деформацию, поэтому в общем случае вместо (10) используются разложения

$$\varepsilon = \varepsilon^l + \varepsilon^r + \varepsilon^d, \quad \mathbf{D} = \mathbf{D}^l + \mathbf{P}^r + \mathbf{P}^d. \quad (25)$$

Предполагается, что выражение для свободной энергии реального (содержащего дефекты) кристаллита допускает разложение

$$\psi = \psi_{id} + \psi_{def}, \quad (26)$$

где $\psi_{def} = \psi_{def}(\mathbf{P}^d, \varepsilon^d, \mathbf{P}^r, \varepsilon^r)$ — свободная энергия, обусловленная наличием дефектов; $\psi_{id} = \psi_{id}(\mathbf{D}^l, \varepsilon^l, c_I)$ — обратимая часть свободной энергии (19), определяемая квадратичной формой обратимых составляющих индукции \mathbf{D}^l и деформации ε^l :

$$\psi_{id} = \frac{1}{2} \varepsilon^l \cdot \cdot 4C^E \cdot \cdot \varepsilon^l + \varepsilon^l \cdot \cdot 3h \cdot \mathbf{D}^l + \frac{1}{2} \mathbf{D}^l \cdot \beta^\varepsilon \cdot \mathbf{D}^l. \quad (27)$$

Аргументы \mathbf{P}^r , ε^r в функции $\psi_{def} = \psi_{def}(\mathbf{P}^d, \varepsilon^d, \mathbf{P}^r, \varepsilon^r)$ введены для учета взаимного влияния дефектов и доменных стенок. Величина $\psi_{def}(\mathbf{P}^d, \varepsilon^d, \mathbf{P}^r, \varepsilon^r)$ в общем случае зависит от большого числа инвариантов [44]: $\mathbf{P}^d \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^r \cdot \mathbf{P}^r$, $\mathbf{P}^d \cdot \mathbf{P}^r$, $\text{tr}(\varepsilon^d)$, $\varepsilon^d \cdot \cdot \varepsilon^d$, $\det(\varepsilon^d)$, $\text{tr}(\varepsilon^r)$, $\varepsilon^r \cdot \cdot \varepsilon^r$, $\det(\varepsilon^r)$, $\varepsilon^d \cdot \cdot \varepsilon^r$, $\varepsilon^r \cdot \cdot \varepsilon^d$, $\varepsilon^d \cdot \cdot \varepsilon^r$, $\varepsilon^r \cdot \cdot \varepsilon^d$, $\varepsilon^d \cdot \cdot \varepsilon^r$, $\varepsilon^r \cdot \cdot \varepsilon^d$, $\varepsilon^d \cdot \cdot \varepsilon^r$, $\varepsilon^r \cdot \cdot \varepsilon^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^r \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^r$, $\mathbf{P}^r \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^r$, $\mathbf{P}^r \cdot \varepsilon^d \cdot \mathbf{P}^r$, $\mathbf{P}^r \cdot \varepsilon^d \cdot \mathbf{P}^r$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$, $\mathbf{P}^d \cdot \varepsilon^d \cdot \varepsilon^r \cdot \mathbf{P}^d$. Рассмотрим простейший вариант представления $\psi_{def}(\mathbf{P}^d, \varepsilon^d, \mathbf{P}^r, \varepsilon^r)$, учитывающий изменение электрической и механической составляющих свободной энергии вследствие возникновения дефектов и их влияние на доменные стенки:

$$\psi_{def} = \psi_{edd}(\mathbf{P}^d \cdot \mathbf{P}^d) + \psi_{edr}(\mathbf{P}^d \cdot \mathbf{P}^r) + \psi_{mdd}(\varepsilon^d \cdot \cdot \varepsilon^d) + \psi_{mdr}(\varepsilon^d \cdot \cdot \varepsilon^r). \quad (28)$$

Подставляя (27), (28) в (26) и затем в определение диссипации (20), получаем искомое выражение для диссипации, в котором учитываются движение доменных стенок, их взаимодействие с дефектами и процессы дефектообразования:

$$\begin{aligned} \delta = & (\sigma - \psi'_{m dr} \varepsilon^d) \cdot \dot{\varepsilon}^r + (\sigma - 2\psi'_{m dd} \varepsilon^d - \psi'_{m dr} \varepsilon^r) \cdot \dot{\varepsilon}^d + \\ & + (\mathbf{E} - \psi'_{edr} \mathbf{P}^d) \cdot \dot{\mathbf{P}}^r + (\mathbf{E} - 2\psi'_{edd} \mathbf{P}^d - \psi'_{edr} \mathbf{P}^r) \cdot \dot{\mathbf{P}}^d - \\ & - \frac{1}{2} \sigma \cdot \dot{S}^E \cdot \sigma - \sigma \cdot \dot{d} \cdot \mathbf{E} - \frac{1}{2} \mathbf{E} \cdot \dot{\varepsilon}^\sigma \cdot \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (29)$$

Тензор напряжений $\sigma = \partial\psi_{id}/\partial\varepsilon^l$ и вектор напряженности электрического поля $\mathbf{E} = \partial\psi_{id}/\partial\mathbf{D}^l$, удовлетворяющие условию неотрицательности диссипации, могут быть найдены с использованием выражения для свободной энергии (27) и представлены в виде

$$\sigma = {}^4 C^D \cdot (\varepsilon - \varepsilon^r - \varepsilon^d) - {}^3 h^T \cdot (\mathbf{D} - \mathbf{P}^r - \mathbf{P}^d), \quad \mathbf{E} = -{}^3 h \cdot (\varepsilon - \varepsilon^r - \varepsilon^d) + \beta^\varepsilon \cdot (\mathbf{D} - \mathbf{P}^r - \mathbf{P}^d). \quad (30)$$

Следует отметить, что в большинстве актуальных для практики случаев последним слагаемым в скобках в (30) можно пренебречь в силу предположения о малой концентрации дефектов.

В случае “замороженных” (труднопереключаемых) дефектов с $\mathbf{P}^d = \text{const}$ и $\varepsilon^d = \text{const}$ уравнение (29) упрощается:

$$\delta = (\sigma - \psi'_{m dr} \varepsilon^d) \cdot \dot{\varepsilon}^r + (\mathbf{E} - \psi'_{edr} \mathbf{P}^d) \cdot \dot{\mathbf{P}}^r + \frac{1}{2} \sigma \cdot \dot{S}^E \cdot \sigma + \sigma \cdot \dot{d} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{2} \mathbf{E} \cdot \dot{\varepsilon}^\sigma \cdot \mathbf{E}. \quad (31)$$

Подставляя (17), (18) в (31), получаем выражение

$$\delta = \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^N \dot{c}^{J \rightarrow I} (G_{id}^{J \rightarrow I} - G_{def}^{J \rightarrow I}), \quad (32)$$

где величина $G_{id}^{J \rightarrow I}$ вычисляется в соответствии с (22), $G_{def}^{J \rightarrow I}$ определяется равенством

$$G_{def}^{J \rightarrow I} = \psi'_{m dr} \varepsilon^d \cdot \Delta \tilde{\varepsilon}_{J \rightarrow I}^r + \psi'_{edr} \mathbf{P}^d \cdot \Delta \tilde{\mathbf{P}}_{J \rightarrow I}^r. \quad (33)$$

Уравнение эволюции для $\dot{c}^{J \rightarrow I}$, удовлетворяющее условию неотрицательности диссипации $\delta \geq 0$ (см. (32)), запишем в виде

$$\dot{c}^{J \rightarrow I} = B^{J \rightarrow I} \frac{G_{id}^{J \rightarrow I} - G_{def}^{J \rightarrow I}}{G_c^{J \rightarrow I}} \left| \frac{G_{id}^{J \rightarrow I} - G_{def}^{J \rightarrow I}}{G_c^{J \rightarrow I}} \right|^{n-1} \left(\frac{c_J}{C_0} \right)^m. \quad (34)$$

Структура уравнения (34) соответствует модели кинематического упрочнения, используемой в теории пластичности. Величина $G_{def}^{J \rightarrow I}$ определяет вклад системы переключения из состояния с ориентацией J в I в смещение петли гистерезиса.

При наличии дефектов в модели можно рассматривать зависимость критических значений движущей силы $G_c^{J \rightarrow I}$ от ориентации вектора поляризации дефектов \mathbf{P}^d по отношению к действующему электрическому полю, учитывающую экспериментально наблюдаемое торможение движения доменных стенок, направление которого противоположно направлению начальной поляризации [33], приводящей к образованию фиксированных дефектов. Простейшим вариантом рассматриваемой зависимости является линейная аппроксимация

$$G_c^{J \rightarrow I} = G_{c0}^{J \rightarrow I} + G_{c1}^{J \rightarrow I} \cos \theta, \quad (35)$$

где $\cos \theta = \mathbf{P}^d \cdot \mathbf{E} / (|\mathbf{P}^d| |\mathbf{E}|)$; $G_{c0}^{J \rightarrow I}$, $G_{c1}^{J \rightarrow I}$ — константы материала, которые могут быть найдены с использованием параметров коэрцитивного поля при нагружении в направлении, совпадающем с направлением начальной поляризации, и в противоположном направлении. Более точное описание формы поверхности переключения можно получить с использованием обобщения соотношения (35):

$$G_c^{J \rightarrow I} = \sum_{k=0}^N G_{ck}^{J \rightarrow I} \cos k\theta.$$

3. КОНЕЧНО-ЭЛЕМЕНТНАЯ ГОМОГЕНИЗАЦИЯ

3.1. Формулировка краевой задачи. Предложенные в п. 2 микромеханические модели поведения сегнетоэластичных материалов реализованы с помощью конечно-элементного программного комплекса PANTOCRATOR [45]. С использованием этого комплекса проведены многочисленные вычислительные эксперименты для различных программ электромеханического нагружения ЭПО поликристалла.

Формулировка краевой задачи для ЭПО поликристалла включает уравнения для объема V

$$\nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} = \mathbf{0}, \quad \boldsymbol{\varepsilon} = (\nabla \mathbf{u})^S, \quad \nabla \cdot \mathbf{D} = 0, \quad \mathbf{E} = -\nabla \varphi, \quad (36)$$

определяющие уравнения (12)–(14), (22), (33), (34) и граничные условия на внешней поверхности $S = S_\sigma \cup S_u = S_\varphi \cup S_D$:

$$\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\sigma} \Big|_{S_\sigma} = \mathbf{n} \cdot \bar{\boldsymbol{\sigma}}^*, \quad \mathbf{u} \Big|_{S_u} = \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^* \cdot \mathbf{r}, \quad \mathbf{n} \cdot \mathbf{D} \Big|_{S_D} = \mathbf{n} \cdot \bar{\mathbf{D}}^*, \quad \varphi \Big|_{S_\varphi} = -\bar{\mathbf{E}}^* \cdot \mathbf{r}. \quad (37)$$

При получении конечно-элементных решений связанных электромеханических краевых задач (36), (37) использовалась векторно-потенциальная формулировка [46, 47], основанная на вариационной формулировке с выбором в качестве варьируемых величин вектора перемещения \mathbf{u} и электрического векторного потенциала $\boldsymbol{\psi}$ [47] ($\mathbf{D} = -\nabla \times \boldsymbol{\psi}$):

$$\int_V (\boldsymbol{\sigma} \cdot \delta \boldsymbol{\varepsilon} + \mathbf{E} \cdot \delta \mathbf{D}) dV = \int_S (\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\sigma} \cdot \delta \mathbf{u} + \mathbf{n} \times \mathbf{E} \cdot \delta \boldsymbol{\psi}) dS.$$

3.2. Интерпретация кристаллитов в модели ЭПО. В качестве ЭПО поликристалла рассматривался куб (рис. 2, 3). Для исследуемого класса гетерогенных сред с нерегулярной микронеоднородностью выбор ЭПО не является тривиальным, поэтому при проведении вычислительных экспериментов рассматривались варианты с различным числом монокристаллов и различной интерпретацией кристаллита в конечно-элементной модели ЭПО поликристалла:

- 1) куб с полиэдрическими кристаллитами различной ориентации, каждый из которых разбит на несколько конечных элементов (КЭ) (см. рис. 2, а);
- 2) куб с нерегулярным разбиением на КЭ, каждый из которых рассматривался как отдельный полиэдрический кристаллит (см. рис. 2, б);
- 3) куб с регулярным разбиением на КЭ, каждый из которых рассматривался как отдельный кристаллит [7] (см. рис. 2, в);
- 4) куб с регулярным разбиением на КЭ, каждая гауссова точка которых рассматривалась как отдельный кристаллит [6] (см. рис. 2, г).

Ориентация кристаллитов генерировалась случайным образом (нормальное распределение в пределах полного телесного угла) путем задания углов Эйлера: $\varphi = 2\pi Z_1$, $\theta = \arccos(1 - 2Z_2)$, $\psi = 2\pi Z_3$ (Z_1 , Z_2 , Z_3 — независимые случайные величины, изменяющиеся в диапазоне от 0 до 1) [6].

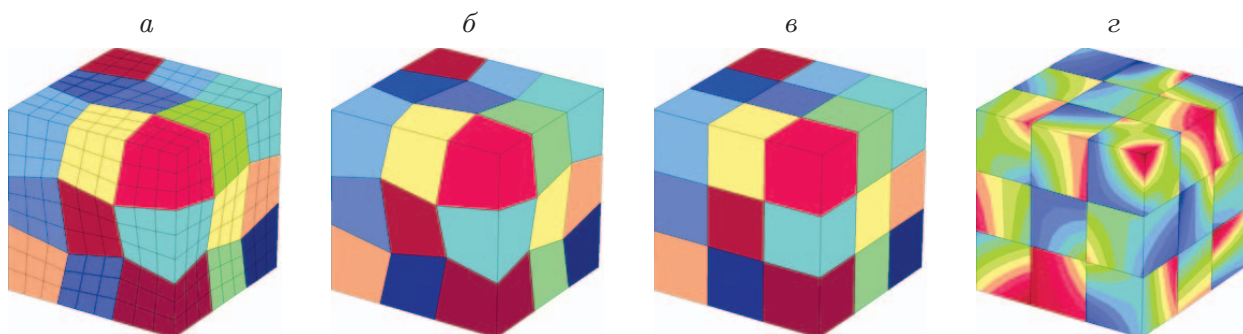


Рис. 2. Типы кристаллитов в ЭПО поликристалла:
a — кристаллит, состоящий из нескольких КЭ, *б* — кристаллит, представляющий собой одиночный КЭ нерегулярной формы, *в* — кристаллит, представляющий собой одиночный КЭ регулярной формы, *г* — кристаллит, соответствующий гауссовой точке КЭ

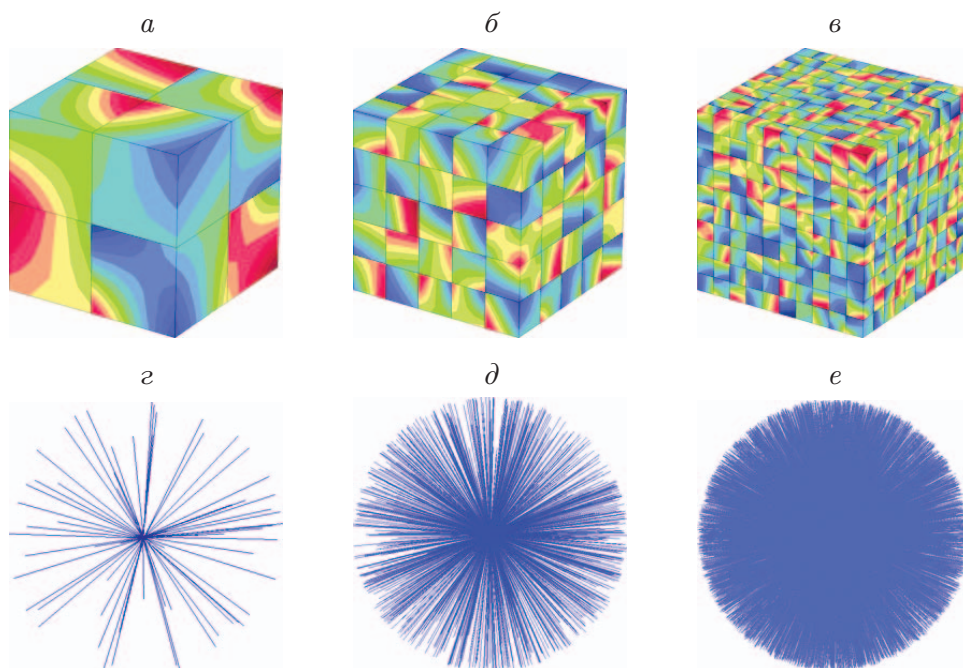


Рис. 3. Примеры ЭПО поликристалла с различным числом разбиений на КЭ:
a-в — распределения угловых отклонений осей $\langle 001 \rangle$ кристаллов от вертикали, *г-е* — векторы начальной ориентации $\langle 001 \rangle$ кристаллитов; *a, г* — $2 \times 2 \times 2$ (64 кристаллитов), *б, д* — $5 \times 5 \times 5$ (1000 кристаллитов), *в, е* — $10 \times 10 \times 10$ (8000 кристаллитов)

На рис. 2 показаны распределения угловых отклонений осей $[001]$ кристаллов от вертикали, изменяющихся в диапазоне от 0 до π . В случае совпадения монокристалла с КЭ эти распределения однородны в пределах одного КЭ.

Анализ результатов моделирования гистерезисных кривых и начальной поверхности переключений показал, что при одном и том же количестве степеней свободы дискретной модели более предпочтительным является вариант, показанный на рис. 2, *г*. Этот вариант позволяет учесть взаимное влияние кристаллитов и ввести наибольшее количество различно ориентированных кристаллитов при меньшем количестве КЭ.

3.3. Влияние числа конечных элементов на результаты расчетов. При проведении вычислительных экспериментов рассматривались различные варианты ЭПО поли-

кристалла с разбиениями на число КЭ, содержащих от 8 до 8000 кристаллитов, от $1 \times 1 \times 1$ до $10 \times 10 \times 10$ (см. рис. 3). В качестве кристаллита рассматривалась гауссова точка КЭ.

Для каждого конечно-элементного разбиения с целью получения статистических оценок проводились расчеты для 10 различных вариантов генерации (случайным образом) ориентаций кристаллитов в ЭПО. При анализе кривых зависимости электрической индукции от заданной напряженности электрического поля (монотонно возрастающей от 0 до $3E_c$) разброс уменьшался с увеличением числа КЭ. Для разбиений $1 \times 1 \times 1$, $2 \times 2 \times 2$, $3 \times 3 \times 3$, $4 \times 4 \times 4$, $5 \times 5 \times 5$ среднеквадратичное отклонение электрической индукции составляло 5,10; 0,94; 0,43; 0,32; 0,16 % ее среднего значения соответственно. При анализе начальной поверхности переключения на плоскости (E_x, E_y) для разбиений $1 \times 1 \times 1$, $2 \times 2 \times 2$, $3 \times 3 \times 3$, $4 \times 4 \times 4$, $5 \times 5 \times 5$ среднеквадратичное отклонение радиуса составило 0,77; 0,29; 0,17; 0,11; 0,06 % его среднего значения соответственно. Полученные результаты свидетельствуют о высокой точности расчетов даже при малом количестве КЭ. Погрешность менее 1 % обеспечивается при разбиении $2 \times 2 \times 2$.

4. СРАВНЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ РАСЧЕТОВ С ДАННЫМИ ЭКСПЕРИМЕНТОВ ПРИ ОДНООСНОМ НАГРУЖЕНИИ

Примеры верификации микромеханических моделей при одноосном нагружении (кривые диэлектрического, механического, электромеханического гистерезиса) представлены в работах [15–23]. На рис. 4 показаны рассчитанные в данной работе и полученные в экспериментах [37] кривые диэлектрического гистерезиса для трех пьезоэлектрических материалов (PZT-4D, PZT-5H, BaTiO₃), рассматриваемых в п. 5 при определении эволюции поверхностей нагружения. Следует отметить, что результаты расчетов хорошо согласуются с данными экспериментов. В расчетах использовались следующие параметры материала: модули упругости C_{3333}^E , C_{1133}^E , диэлектрическая проницаемость ϵ_{33}^T , пьезоэлектрический модуль d_{333} , спонтанная поляризация P_0 и деформация ϵ_0 , критическая движущая сила $G_c^{J \rightarrow I}$, вязкость $B^{J \rightarrow I}$, показатели степени в уравнении эволюции n , m , параметр насыщения C_0 (см. таблицу).

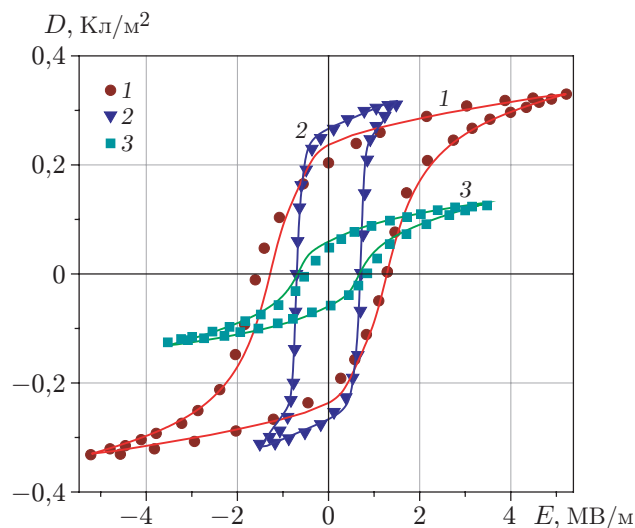


Рис. 4. Зависимость $D(E)$ для различных материалов ($f = 0,2$ Гц):
линии — расчет по модели без учета дефектов (10)–(23), точки — эксперимент [37];
1 — PZT-4D, 2 — PZT-5H, 3 — BaTiO₃

Параметры материалов, используемые в расчетах

Материал	C_{3333}^E , ГПа	C_{1133}^E , ГПа	$\chi_{33}^{\sigma} \cdot 10^8$, Ф/м	$d_{333} \cdot 10^{10}$, м/В	P_0 , Кл/м ²	ε_0 , %	$G_c^{J \rightarrow I}$, В · Кл/м ³	$B^{J \rightarrow I}$	n	m	C_0
PZT-4D	139	74,3	0,98	2,91	0,38	0,3	640 000	1	7	4,5	0,01
PZT-5H	126	53,0	4,90	3,15	0,40	0,3	330 000	1	14	1,4	0,01
BaTiO ₃	150	60,0	1,07	19,00	0,15	0,3	150 000	1	5	6,0	0,01

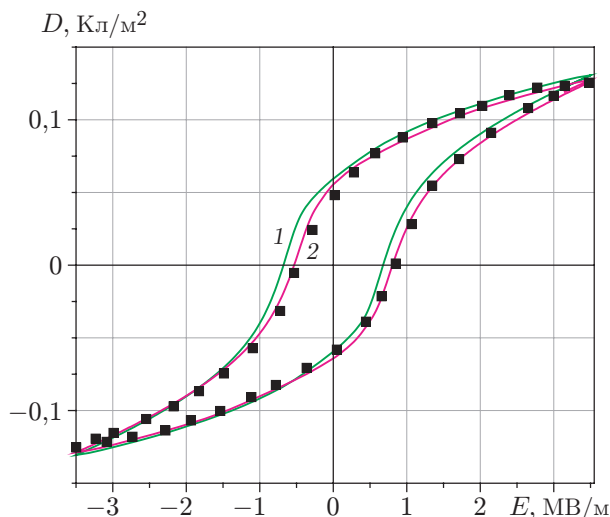


Рис. 5. Зависимость $D(E)$ для BaTiO₃ ($f = 0,2$ Гц):
 линии — результаты расчетов (1 — расчет по модели без учета дефектов (10)–(23),
 2 — расчет по модели с учетом дефектов (24)–(34)), точки — эксперимент [37]

Для сегнетожестких пьезокерамик (PZT-4D, BaTiO₃), в отличие от сегнетомягкой (PZT-5H), наблюдается некоторое смещение петли гистерезиса по горизонтали относительно начала координат. Это смещение может быть описано при использовании модели с учетом дефектов (24)–(34) (рис. 5). Кривые, приведенные на рис. 5, получены при $\psi'_{edr} = 150\,000$ В · м/Кл.

5. СРАВНЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ РАСЧЕТОВ С ДАННЫМИ ЭКСПЕРИМЕНТОВ ПО ОПРЕДЕЛЕНИЮ ЭВОЛЮЦИИ ФОРМЫ ПОВЕРХНОСТИ ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ

5.1. Методика численного определения формы поверхности переключения.

В результате многовариантных вычислительных экспериментов определялись различные двумерные сечения девятимерной (в общем случае) поверхности переключения в пространстве, определяемом компонентами тензора напряжений и вектора напряженности электрического поля. Алгоритм построения двумерных сечений поверхности переключений включает следующие основные шаги:

1. Формируется множество ориентаций всех кристаллитов (на основе генерации случайным образом трех углов Эйлера) для ЭПО поликристалла кубической формы (см. рис. 3).

2. Для сформированного ЭПО поликристалла с целью определения реакции материала на заданную произвольную историю нагружения (общую для всех последующих путей нагружения) решается трехмерная краевая задача (36), (37). При исследовании начальной

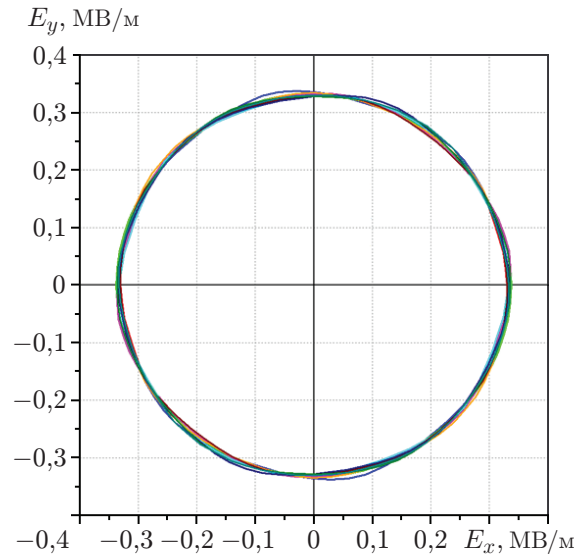


Рис. 6. Начальные кривые переключения ($|\Delta \mathbf{P}^r|/P_0 = 0,1 \%$) для 10 вариантов ЭПО (разбиение $1 \times 1 \times 1$) поликристалла PZT-5Н при различной ориентации кристаллитов

поверхности переключения неполяризованного поликристалла этот шаг алгоритма отсутствует.

3. Для сформированного ЭПО поликристалла решается серия краевых задач при различных направлениях лучевого нагружения из начального состояния, определенного на шаге 2. Величина угла, характеризующего направление лучей нагружения, изменяется в диапазоне от 0 до 360° с шагом по угловой координате, равным 5° .

4. По заданному допуску δ на изменение остаточной поляризации и (или) остаточной деформации с использованием условия $(|\mathbf{P}^r - \mathbf{P}_0^r|/P_0)^2 + (\|\boldsymbol{\varepsilon}^r - \boldsymbol{\varepsilon}_0^r\|/\varepsilon_0)^2 \geq \delta^2$, где $\mathbf{P}_0^r, \boldsymbol{\varepsilon}_0^r$ — начальные значения поляризации и деформации, для каждого луча определяется точка границы поверхности переключения.

5. Соседние точки переключения для всех лучей соединяются, при этом образуется замкнутая многозвенная ломаная, представляющая собой искомую аппроксимацию двумерного сечения поверхности переключений.

5.2. Влияние числа кристаллитов в ЭПО на форму поверхности переключения. Увеличение числа кристаллитов в ЭПО при построении кривых переключения позволяет повысить их точность, однако это приводит к существенному увеличению времени счета. В данной работе проведено исследование влияния числа кристаллитов на форму поверхности переключения на плоскости (E_x, E_y) . Решена серия задач для ЭПО поликристалла с разбиением на различное число (от $1 \times 1 \times 1$ до $10 \times 10 \times 10$) КЭ, содержащих от 8 до 8000 кристаллитов (см. рис. 3).

На рис. 6 показана совокупность начальных кривых переключения на плоскости (E_x, E_y) для 10 вариантов ЭПО (рассматривалось наиболее грубое разбиение $1 \times 1 \times 1$) поликристалла PZT-5Н с различной ориентацией кристаллитов, генерируемых случайным образом с равномерной плотностью распределения в пределах полного телесного угла. Допуск на изменение остаточной поляризации при построении кривых принимался равным $|\Delta \mathbf{P}^r|/P_0 = 0,1 \%$. Полученные кривые имеют форму, близкую к окружностям. С увеличением числа разбиений ЭПО (и соответственно числа кристаллитов) на КЭ уменьшается влияние ориентации кристаллитов на форму кривой переключения. Даже для разбиений

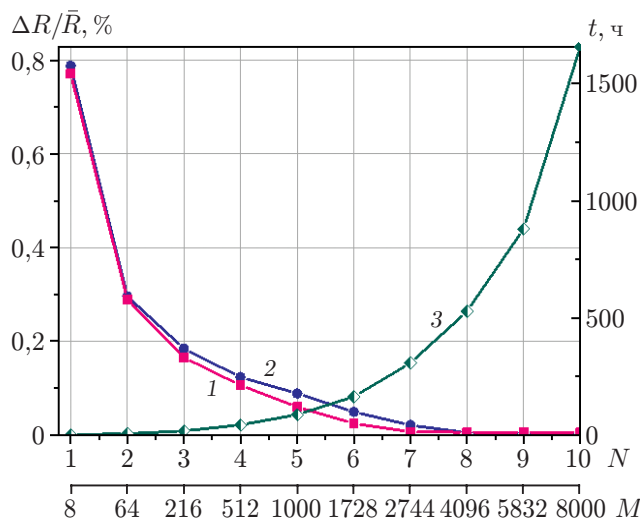


Рис. 7. Среднеквадратичное отклонение радиуса кривой переключения, отнесенное к среднему значению этого радиуса, $\Delta R/\bar{R}$ (1, 2) и время t , затраченное на вычисление (3), для поликристалла PZT-5Н при различном числе разбиений ЭПО N и различном количестве кристаллитов в ЭПО M

$3 \times 3 \times 3$ кривые переключения для 10 вариантов ЭПО поликристалла с различной ориентацией кристаллитов становятся визуально неразличимыми.

Зависимость среднеквадратичного отклонения (СКО) радиуса окружности переключения от числа разбиений ЭПО $N \times N \times N$ (обеспечивающего число кристаллитов $8N^3$) для поликристалла PZT-5Н показана на рис. 7. Форма полученной кривой практически не зависит от допуска на изменение остаточной поляризации. Следует отметить, что значение СКО мало. Даже при наиболее грубом разбиении ЭПО $1 \times 1 \times 1$ (восемь кристаллитов) значение СКО составляет менее 1 %. Далее в расчетах эволюции поверхности переключения в качестве базового используется разбиение ЭПО $3 \times 3 \times 3$ (216 кристаллитов), обеспечивающее значение СКО менее 0,2 %.

5.3. Результаты моделирования эволюции формы поверхности переключения. В работе [37] представлены результаты экспериментов по определению формы поверхности переключения после предварительной поляризации и последующей разгрузки. Эксперименты выполнялись для образцов из поликристаллических пьезокерамик PZT-4D, PZT-5Н и BaTiO₃. Предварительная поляризация проводилась для неполяризованных пластин размером $25 \times 25 \times 5$ мм в течение 40 с до максимальной напряженности электрического поля, составляющей 5 МВ/м для PZT-4D, 1,5 МВ/м для PZT-5Н, 3,25 МВ/м для BaTiO₃. Затем из пластины под углами 0, 30, 60, 90, 120, 150 и 180° к направлению поляризации вырезались образцы меньшего размера $5,0 \times 5,0 \times 1,5$ мм, которые подвергались электрическому нагружению в течение 30 с до значений начальной поляризации, после чего определялись кривые переключения для значений изменения остаточной поляризации 4, 12 и 40 %.

Результаты прямого моделирования рассматриваемого процесса двухлучевого нагружения (первоначальное нагружение при $E_x \neq 0$, $E_y = 0$, последующая разгрузка до значений $E_x = 0$, $E_y = 0$, повторное пропорциональное нагружение при $E_x \neq 0$, $E_y \neq 0$) методом конечно-элементной гомогенизации для ЭПО поликристалла с использованием модели без учета дефектов (10)–(23) количественно существенно отличаются от данных эксперимента (рис. 8). Для сегнетожестких пьезокерамик PZT-4D и BaTiO₃ это различие более значительное, чем для сегнетомягкой пьезокерамики PZT-5Н. Наблюдается несова-

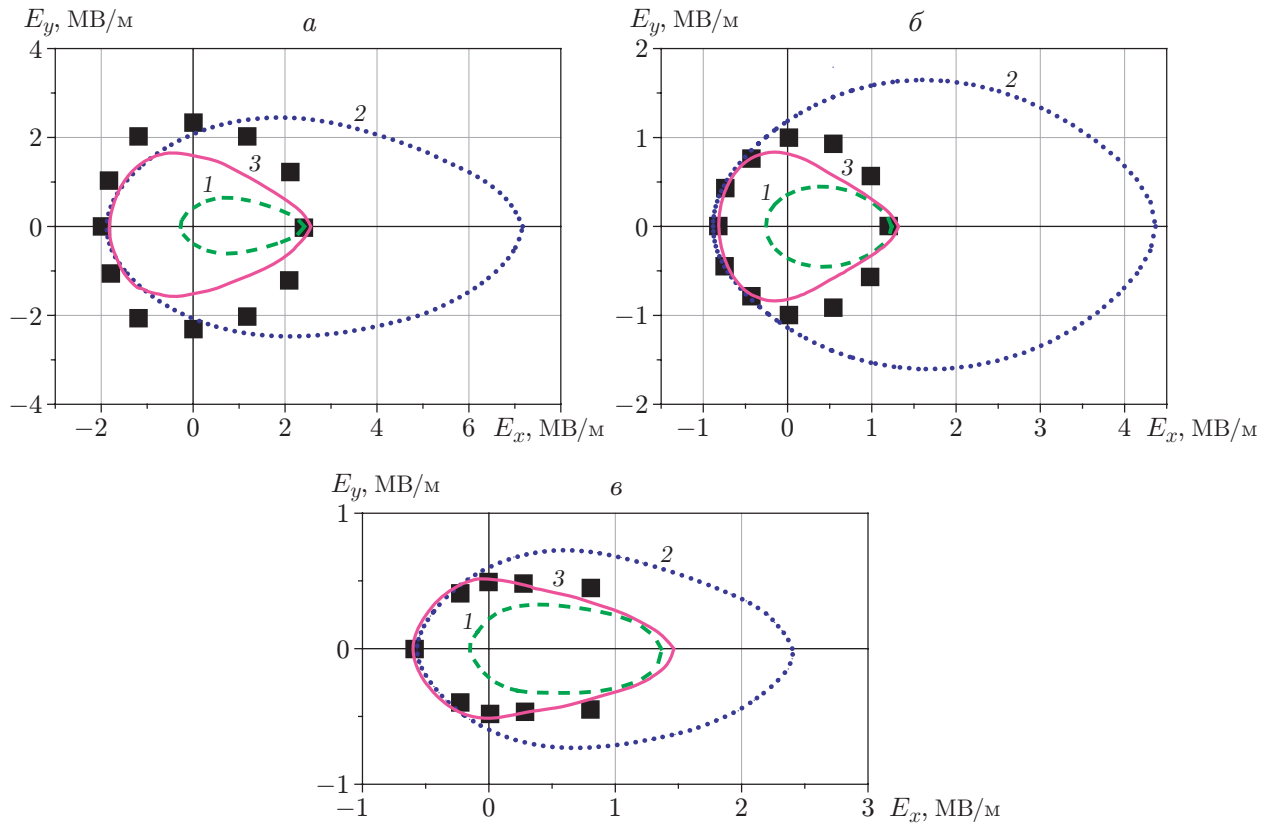


Рис. 8. Формы поверхностей переключений после предварительной поляризации и последующей разгрузки для различных материалов:

точки — экспериментальные данные [37] при $|\Delta P^r|/P_0 = 12\%$, линии — результаты расчетов (1, 2 — модель без учета дефектов, 3 — модель с учетом дефектов); а — PZT-4D (1 — $G_c = 320$, 2 — $G_c = 1600$, 3 — $G_{c0} = 900$, 4 — $G_{c1} = -630$), б — BaTiO₃ (1 — $G_c = 120$, 2 — $G_c = 600$, 3 — $G_{c0} = 250$, 4 — $G_{c1} = -200$), в — PZT-5H (1 — $G_c = 150$, 2 — $G_c = 470$, 3 — $G_{c0} = 310$, 4 — $G_{c1} = -200$)

дение поверхностей переключения при идентификации параметров материала по кривой поляризации под углами 0 и 180°. При идентификации коэрцитивного поля по кривой поляризации под углом 180° получается кривая переключений (см. рис. 8), размеры которой значительно превышают размеры экспериментальной кривой (для PZT-4D — в 2 раза, для BaTiO₃ — в 2,6 раза, для PZT-5H — в 1,4 раза), а при идентификации коэрцитивного поля по кривой поляризации под углом 0° получается кривая переключений меньшего размера (для PZT-4D — 0,62, для BaTiO₃ — 0,72, для PZT-5H — 0,79).

Использование модели с учетом дефектов (24)–(35) позволяет увеличить точность расчетов и одновременно удовлетворить условиям при нагружении под углами 0 и 180° к направлению начальной поляризации (см. рис. 8). Данный результат можно получить как с учетом зависимости критического значения движущей силы от ориентации поляризации дефектов (35), так и без учета.

Результаты расчетов показали, что модели с учетом дефектов наиболее точно описывают поведение сегнетожестких керамик (PZT-4D и BaTiO₃). Сегнетожесткие пьезо-керамики сложнее поляризовать и деполяризовать вследствие появления труднопереключаемых диполей дефектов. Экспериментально установлено, что при наличии акцепторной примеси в кристаллической структуре возникают анионные вакансии (вакансии по

кислороду), препятствующие смещению доменных стенок и обуславливающие увеличение сегнетожесткости. Появление собственных заряженных точечных дефектов и примесных атомов приводит к возникновению локальных электрических полей и полей микронапряжений, которые выполняют функцию ограничителей при движении доменных стенок.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе предложены термодинамически согласованные определяющие уравнения поликристаллического сегнетоэластичного материала, учитывающие диссипативный характер движения доменных стенок, наличие точечных дефектов и их влияние на процессы переключения. Наличие дефектов учитывается путем введения дополнительных внутренних переменных и с использованием зависимости критических значений движущей силы от угла ориентации вектора поляризации дефектов.

При описании поведения поликристаллического сегнетоэластичного материала на макроуровне использован метод двухуровневой гомогенизации. Проведено исследование влияния числа кристаллитов на результаты расчетов диэлектрического гистерезиса и начальной поверхности переключения для элементарного представительного объема поликристалла.

Сравнение результатов расчетов с экспериментальными данными о поверхностях переключения при непропорциональном (двухлучевом) нагружении поликристаллических пьезокерамик PZT-4D, PZT-5H и BaTiO₃ показало, что результаты расчетов по предложенной модели материала с учетом дефектов являются более точными по сравнению с результатами расчетов по модели без учета дефектов.

ЛИТЕРАТУРА

1. **Смоленский Г. А.** Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики / Г. А. Смоленский, Н. Н. Крайник. М.: Наука, 1968.
2. **Лайнс М.** Сегнетоэлектрики и родственные им материалы / М. Лайнс, А. Гласс. М.: Мир, 1981.
3. **Гриднев С. А.** Сегнетоэластические кристаллы: основные свойства, влияние дефектов // Природа. 2002. № 6. С. 22–29.
4. **Jaffe В.** Piezoelectric ceramics / В. Jaffe, W. R. Cook, H. Jaffe. N. Y.: Acad. Press, 1971.
5. **Белоконь А. В.** Математическое моделирование необратимых процессов поляризации / А. В. Белоконь, А. С. Скалиух. М.: Физматлит, 2010.
6. **Pardo L.** Multifunctional polycrystalline ferroelectric materials / L. Pardo, J. Ricote. Dordrecht: Springer, 2011.
7. **Уорден К.** Новые интеллектуальные материалы и конструкции. М.: Техносфера, 2003.
8. **Smith R. C.** Smart material systems. Philadelphia: SIAM, 2005.
9. **Uchino K.** Ferroelectric devices. 2nd ed. N. Y.: CRC Press, 2009.
10. **Landis C. M.** Fully coupled, multi-axial, symmetric constitutive laws for polycrystalline ferroelectric ceramics // J. Mech. Phys. Solids. 2002. V. 50. P. 127–152.
11. **McMeeking R. M., Landis C. M.** A phenomenological multi-axial constitutive law for switching in polycrystalline ferroelectric ceramics // Intern. J. Engng Sci. 2002. V. 40. P. 1553–1577.
12. **Kamlah M., Tsakmakis C.** Phenomenological modeling of the non-linear electromechanical coupling in ferroelectrics // Intern. J. Solids Structures. 1999. V. 36. P. 669–695.
13. **Elhadrouz M., Zineb T. B., Patoor E.** Constitutive law for ferroelastic and ferroelectric piezoceramics // J. Intelligent Material Systems Structures. 2005. V. 16. P. 221–236.

14. **Hwang S. C., Lynch C. S., McMeeking R. M.** Ferroelectric/ferroelastic interactions and a polarization switching model // *Acta Metallurg.* 1995. V. 43. P. 2073–2084.
15. **Huber J. E., Fleck N. A.** Multi-axial electrical switching of a ferroelectric: theory versus experiment // *J. Mech. Phys. Solids.* 2001. V. 49. P. 785–811.
16. **Belov A. Y., Kreher W. S.** Viscoplastic models for ferroelectric ceramics // *J. Europ. Ceram. Soc.* 2005. V. 25. P. 2567–2571.
17. **Белоконь А. В., Скалиух А. С.** Об определяющих соотношениях в трехмерных моделях поляризации // *Вестн. Перм. гос. техн. ун-та. Мат. моделирование систем и процессов.* 2008. № 16. С. 10–16.
18. **Huber J. E., Fleck N. A., Landis C. M., McMeeking R. M.** A constitutive model for ferroelectric polycrystals // *J. Mech. Phys. Solids.* 1999. V. 47. P. 1663–1697.
19. **Landis C. M., McMeeking R. M.** A self-consistent constitutive model for switching in polycrystalline barium titanate // *Ferroelectrics.* 2001. V. 255. P. 13–34.
20. **Liskowsky A. C., Semenov A. S., Balke H., McMeeking R. M.** Finite element modeling of the ferroelectroelastic material behavior in consideration of domain wall motions // *Coupled nonlinear phenomena — modeling and simulation for smart, ferroic and multiferroic materials: Proc. of the 2005 MRS Spring meeting, San Francisco (USA), Mar. 29–31, 2005. S. 1., 2005. V. 881E. CC4.2.*
21. **Pathak A., McMeeking R. M.** Three-dimensional finite element simulations of ferroelectric polycrystals under electrical and mechanical loading // *J. Mech. Phys. Solids.* 2008. V. 56. P. 663–683.
22. **Семенов А. С., Бальке Х., Мельников Б. Е.** Моделирование поликристаллической пьезокерамики методом конечно-элементной гомогенизации // *Мор. интеллект. технологии.* 2011. № S3. С. 106–112.
23. **Neumeister P., Balke H.** Micromechanical modelling of the remanent properties of morphotropic PZT // *J. Mech. Phys. Solids.* 2011. V. 59. P. 1794–1807.
24. **Semenov A. S., Liskowsky A. C., Balke H.** Return mapping algorithms and consistent tangent operators in ferroelectroelasticity // *Intern. J. Numer. Methods Engng.* 2010. V. 81. P. 1298–1340.
25. **Семенов А. С., Лисковски А. Ч., Ноймайстер П. и др.** Эффективные методы решения нелинейных краевых задач сегнетоэлектроругоности // *Мор. интеллект. технологии.* 2010. № 1. С. 55–61.
26. **Смоленский Г. А.** Физика сегнетоэлектрических явлений / Г. А. Смоленский, В. А. Боков, В. А. Исупов и др. Л.: Наука. Ленингр. отд-ние, 1985.
27. **Головнин В. А.** Физические основы, методы исследования и практическое применение пьезоматериалов / В. А. Головнин, А. А. Мовчинова, Б. Б. Педько, И. А. Каплунов, О. В. Малышкина. М.: Техносфера, 2013.
28. **Струков Б. А.** Фазовые переходы в сегнетоэлектрических кристаллах с дефектами // *Сорос. образоват. журн.* 1996. № 12. С. 95–101.
29. **He L., Vanderbilt D.** First-principles study of oxygen-vacancy pinning of domain walls in PbTiO_3 // *Phys. Rev. B.* 2003. V. 68. 134103.
30. **Keve E. T., Bye K. L., Whipps P. W., Annis A. D.** Structural inhibition of ferroelectric switching in triglycine sulphate. 1. Additives // *Ferroelectrics.* 1972. V. 3, N 1. P. 39–48.
31. **Лайхтман Б. Д.** Изгибные колебания доменных стенок и диэлектрическая дисперсия в сегнетоэлектриках // *Физика твердого тела.* 1973. Т. 15, № 1. С. 93–102.
32. **Pike G. E., Warren W. L., Dimos D., et al.** Voltage offsets in $(\text{Pb},\text{La})(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ thin films // *Appl. Phys. Lett.* 1995. V. 66, N 4. P. 484–486.

33. **Damjanovic D.** Hysteresis in piezoelectric and ferroelectric materials // *Sci. Hysteresis*. 2005. V. 3. P. 337–465.
34. **Yang T. J., Gopalan V., Swart P. J., Mohadeen U.** Direct observation of pinning and bowing of a single ferroelectric domain wall // *Phys. Rev. Lett.* 1999. V. 82. P. 4106–4109.
35. **Robels U., Arlt G.** Domain wall clamping in ferroelectrics by orientation of defects // *J. Appl. Phys.* 1993. V. 73. P. 3454–3460.
36. **Сидоркин А. С.** Доменная структура в сегнетоэлектриках и родственных материалах. М.: Физматлит, 2000.
37. **Shieh J., Huber J. E., Fleck N. A.** An evaluation of switching criteria for ferroelectrics under stress and electric field // *Acta Materialia*. 2003. V. 51. P. 6123–6137.
38. **Zhou D., Kamlah M., Laskewitz B.** Multi-axial non-proportional polarization rotation tests of soft PZT piezoceramics under electric field loading // *Proc. SPIE*. 2006. V. 6170. 617009.
39. **Levanyuk A. P.** Defects and structural phase transitions / A. P. Levanyuk, A. S. Sigov. N. Y.: Gordon and Bridge, 1987.
40. **Струков Б. А.** Физические основы сегнетоэлектрических явлений в кристаллах / Б. А. Струков, А. П. Леванюк. М.: Физматлит, 1995.
41. **Müller R., Schröder J., Lupascu D. C.** Thermodynamic consistent modelling of defects and microstructures in ferroelectrics // *GAMM-Mitteilung*. 2008. Bd 31, N 2. S. 133–150.
42. **Рабе К. М.** Физика сегнетоэлектриков: современный взгляд / К. М. Рабе, Ч. Г. Ан, Ж.-М. Трискон. 3-е изд. М.: Бином, 2015.
43. **Эшелби Дж.** Континуальная теория дислокаций. М.: Изд-во иностр. лит., 1963.
44. **Wang C. C.** A new representation theorem for isotropic functions: An answer to Prof. G. F. Smith's criticism of my papers on representations for isotropic functions // *Arch. Rational Mech. Anal.* 1970. V. 36, N 3. P. 166–197.
45. **Семенов А. С.** PANTOCRATOR — конечно-элементный программный комплекс, ориентированный на решение нелинейных задач механики // Тр. 5-й Междунар. конф. “Научно-технические проблемы прогнозирования надежности и долговечности конструкций и методы их решения”, Санкт-Петербург, 14–17 окт. 2003 г. СПб.: С.-Петербург. гос. политехн. ун-т, 2003. С. 466–480.
46. **Landis C. M.** A new finite-element formulation for electromechanical boundary value problems // *Intern. J. Numer. Methods Engng.* 2002. V. 55. P. 613–628.
47. **Semenov A. S., Kessler H., Liskowsky A., Balke H.** On a vector potential formulation for 3D electromechanical FE analysis // *Comm. Numer. Methods Engng.* 2006. V. 22. P. 357–375.

*Поступила в редакцию 12/III 2019 г.,
после доработки — 24/IV 2019 г.
Принята к публикации 27/V 2019 г.*