На правах рукописи

Семенов Артем Семенович

МНОГОУРОВНЕВЫЕ МОДЕЛИ СЕГНЕТОЭЛЕКТРОУПРУГИХ МАТЕРИАЛОВ И ИХ ПРИМЕНЕНИЕ ПРИ РЕШЕНИИ КРАЕВЫХ ЗАДАЧ

Специальность 1.1.8 (ранее 01.02.04) – Механика деформируемого твердого тела

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

доктора физико-математических наук

Санкт-Петербург

2022

Работа выполнена в Федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого».

Официальные оппоненты: **Трусов Петр Валентинович**

доктор физико-математических наук, профессор (Пермский национальный исследовательский политехнический университет)

Наседкин Андрей Викторович

доктор физико-математических наук, профессор (Южный федеральный университет)

Пронин Игорь Петрович

доктор физико-математических наук, (Физико-технический Институт им. А.Ф. Иоффе)

Ведущая организация: Санкт-Петербургский государственный университет

Защита состоится « 30 » июня 2022 года в 14:00 часов на заседании Диссертационного совета Д 002.075.01 в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте проблем машиноведения Российской академии наук по адресу: 199178, Санкт-Петербург, Большой пр. В.О., 61.

С диссертацией можно ознакомиться в ОНТИ Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института проблем машиноведения Российской академии наук и на сайте института по адресу: http://www.ipme.ru.

Автореферат разослан «___» _____ 2022 года.

Ученый секретарь

Диссертационного совета, Д 002.075.01
доктор технических наук Е.Б. Седакова

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность и степень разработанности темы исследования. Одним из ключевых атрибутов научно-технического прогресса является разработка и активное внедрение новых материалов, к числу которых в настоящее время относятся активные (смарт) материалы. Создание и применение подобных многофункциональных материалов в значительной мере определяется возможностью их детального математического моделирования. Интенсивное внедрение на практике сложных смарт систем и активных элементов конструкций приводит к необходимости анализа их прочности и долговечности, а также к повышению точности предсказания неоднородного напряженно-деформированного состояния.

Сегнетоэлектроупругие материалы (сегнетоэлектрики и сегнетоэластики), наиболее характерным примером которых является поликристаллическая пьезокерамика, представляют собой активные (многофункциональные, интеллектуальные, смарт, адаптивные) материалы, являющиеся перспективными материалами новой техники, находящими благодаря своим уникальным свойствам все более широкое применение на практике. Сегнетоэлектроупругие материалы используются в качестве рабочих элементов сенсоров и актуаторов (топливные инжекторы, нанопозиционеры, микромоторы, приводы сканирующих туннельных микроскопов, гасители вибраций), пьезотрансформаторов, элементов памяти, датчиков быстропеременных давлений и др. Для оценки точности позиционирования и прочности рассматриваемых устройств является актуальной разработка уточненных моделей деформирования и поляризации сегнетоэлектроупругого материала и использование эффективных методов решения нелинейных связанных краевых задач.

Наибольший интерес и сложность представляет математическое моделирование необратимых процессов деформирования и поляризации, гистерезисных явлений, деполяризации и реполяризации, ползучести, старения, усталости, деэйджинга, совместное комплексное описание которых в рамках трехмерных моделей в настоящее время отсутствует. Значительный вклад в разработку нелинейных феноменологических и микроструктурных моделей сегнетоэлектроупругой среды внесли В.Л. Гинзбург, А.В. Белоконь, А.С. Скалиух, А.В. Наседкин, А.В. Турик, А.Ю. Белов, A.F. Devonshire, W. Cochran, G.A. Maugin, R.M. McMeeking, J.E. Huber, C.M. Landis, M. Kamlah, H. Balke, P. Neumeister, S. Stark, R. Müller, J. Schröder, D.C. Lupascu, W.S. Kreher, C.S. Lynch, F. Li и др.

Многие из указанных моделей основаны на обобщениях подходов нелинейной механики деформируемого твердого тела, в частности теории пластичности. Существенный вклад в развитие методологии создания макрофеноменологических моделей неупругого деформирования внесли А.А. Ильюшин, В.В. Новожилов, Ю.И. Кадашевич, В.А. Пальмов, Р.А. Васин, В.Г. Зубчанинов, П.В. Трусов, О.С. Садаков, В.С. Бондарь, Ю.Г. Коротких, Е.В. Ломакин, Б.Е. Мельников, Л.Б. Гецов, А.Ю. Ишлинский, Д.Д. Ивлев, А.А. Вакуленко, И.Э. Келлер, А.А. Роговой, R. Mises, W. Prager, R. Hill, J.L. Chaboche, E. Kröner, J. Lubliner, Z. Mröz, K.C. Valanis, H. Ziegler и др.

Большой вклад в разработку многоуровневых моделей материалов с явным учетом микроструктуры и специфики механизмов деформирования на разных масштабных уровнях внесен В.А. Лихачевым, В.Г. Малининым, П.В. Трусовым, М.Я. Леоновым, А.Н. Мохелем, Р.Л. Салгаником, С.А. Христиановичем, В.Е. Пани-

ным, В.В. Рыбиным, Ю.В. Соколкиным, А.А. Ташкиновым, А.М. Кривцовым, В.А. Романовой, А.И. Швейкиным, А.Е. Волковым, С.А. Кукушкиным, L. Anand, R.J. Asaro, G. Cailletaud, E. Busso, R. Hill, D. Raabe, A. Staroselsky и др.

Анализ поведения поликристаллической сегнетопьезокерамики при комбинированном многоосном непропорциональном переменном электромеханическом воздействии высокой интенсивности приводит к необходимости рассмотрения трех характерных структурных уровней: микро- (домен), мезо- (кристаллит), макро- (поликристалл) и установлению связей между переменными на различных уровнях (двухуровневая гомогенизация). Предложенная в данной работе многоуровневая модель трехмерного континуума позволяет объединить достижения микроструктурных и феноменологических моделей сегнетоэлектроупругого материала, учесть многофазное строение, анизотропию, взаимное влияние кристаллитов, эволюцию микроструктуры и наличие дефектов.

Точечные дефекты кристаллической решетки оказывают значительное влияние на процессы формирования и движения доменных границ, размеры и форму гистерезисных кривых, время переключения, процессы деградации электромеханических свойств (усталость, старение), диэлектрические, пьезоэлектрические и механические свойства, что подтверждается многочисленными экспериментами, выполненными на $BaTiO_3$, PZT, PLZT, PMS-PZT, PMN-PZT, BNT–BT, KNN, TGS, KTS и др. Однако в современных моделях сегнетоэлектроупругого континуума не проводится непосредственный учет наличия дефектов и их эволюции.

Дефекты кристаллической решетки могут быть как собственными, так и созданными искусственно в процессе выращивания кристалла с помощью введения акцепторных или донорных легирующих примесей, а также путем воздействия на кристалл высокоэнергетическими частицами. Создание пространственно упорядоченных полярных дефектов заданной концентрации открывает возможность целенаправленного изменения электромеханических свойств сегнетоэлектроупругих материалов и является одним из способов доменной инженерии.

Актуальным для поиска экологически чистых бессвинцовых сегнетоэлектроупругих материалов, приходящих на смену имеющей в настоящее время широкое распространение свинец-содержащей ПЦТ-пьезокерамики, является выявление концентрационных границ оптимального состава, обеспечивающих экстремальные деформационные способности многосвязной смеси. Проведение многовариантных вычислительных экспериментов с вариацией микроструктурных параметров позволяет сократить объем длительных дорогостоящих экспериментов.

Цель и задачи исследования. Целью диссертационной работы является развитие подходов описания необратимых процессов деформирования и поляризации сегнетоэлектроупругих сред с учетом различных структурных уровней, многофазного состава и эволюции дефектов.

Для достижения поставленной цели сформулированы и решены следующие научные задачи:

1. Разработка *микроструктурной модели* сегнетоэлектроупругого материала с учетом мультидоменной структуры, многофазного состава, анизотропии свойств, наличия и эволюции полярных точечных дефектов и диссипативного характера движения доменных стенок для описания гистерезисного поведения сегнетоэлектриков/сегнетоэластиков в условиях сложного многоосного комбинированного электрического и/или механического нагружения.

2. Разработка линейной теории эволюции заряженных точечных дефектов на основе выбора свободной энергии дефектов в виде квадратичной формы вектора поляризации и тензора деформации дефектов, уравнения эволюции которых априори удовлетворяют диссипативному неравенству.
3. Разработка *феноменологической модели* склерономного сегнетоэлектроупругого материала с уравнениями эволюции внутренних переменных, получаемыми следствием *принципа максимума диссипации* при наличии ограничения в виде функции переключения. Конкретизация выражений для свободной энергии и функции переключения для *изотропного* и *трансверсально-изотропного* приближений в рамках теории инвариантов. Идентификация свободной энергии и функции переключения на основе гомогенизации результатов расчетов с использованием микроструктурной модели.
4. Разработка *векторно-потенциальной вариационной формулировки*, соответствующей принципу виртуальной электромеханической работы, обеспечивающей сходимость итерационных решений нелинейных задач во всем диапазоне нагрузок. Формулировка граничных условий для векторного потенциала для односвязных и многосвязных областей, обеспечивающих наряду с калибровкой в объеме его единственность.
5. Развитие *метода возвратного отображения* (наикратчайшей проекции), представляющего собой эффективную схему интегрирования нелинейных определяющих уравнений эволюционного типа при наличии ограничений. Получение матрицы согласованных касательных модулей для обеспечения квадратичной скорости асимптотической сходимости глобальной итерационной процедуры Ньютона-Рафсона.
6. Разработка алгоритмов и программная реализация предложенных моделей материала и методов гомогенизации в КЭ программном комплексе.
7. *Верификация* предложенных моделей материала, вариационных формулировок, способов задания граничных условий, методов решения нелинейных задач на основе сравнения полученных результатов с аналитическими решениями и результатами экспериментов. Исследование скорости сходимости численного решения, диапазонов допустимых значений штрафных параметров.
8. Анализ *взаимного влияния кристаллитов* для описания эффектов значительного снижения уровня остаточной деформации поликристалла в сравнении со спонтанной деформацией. Исследование механизмов возникновения в поликристалле *микронапряжений* вследствие наличия у кристаллитов запирающих (необратимо недеформируемых) направлений. Анализ ориентационных зависимостей остаточной деформации и поляризации для тетрагонального, ромбоэдрического и орторомбического *монокристаллов*.
9. Объяснение экстремальных свойств вблизи морфотропной фазовой границы. Анализ возможностей двухфазной T/P и трехфазной T/P/O микроструктурных моделей для описания эффекта проявления экстремальных свойств вблизи морфотропных фазовых границ. Анализ возможности синтеза сегнетоэлектроупругих материалов с оптимальной структурной организацией вещества путем управления его метастабильными состояниями.
10. Описание явлений *смещения* и *среза* петель диэлектрического и электромеханического гистерезисов на основе предложенной микроструктурной модели материала с учетом (неизменяющихся или эволюционирующих) полярных точечных дефектов. Систематическое исследование *влияния ориентации дефектов* на форму петель гистерезиса.

Методы исследования. В работе используются фундаментальные законы механики и физики твердого тела, термодинамики сплошных сред. Запись определяющих и балансовых уравнений основана на применении прямого тензорного исчисления. Формулировка определяющих уравнений феноменологической модели на макроуровне основана на введении внутренних переменных, применении методов теории инвариантов. Учет взаимного влияния кристаллитов в поликристалле произведен на основе использования в расчетах метода двухуровневой конечно-элементной гомогенизации. Интегрирование нелинейных определяющих уравнений осуществляется с помощью метода возвратного отображения. При решении нелинейных задач используется метод Ньютона-Рафсона.

Предметом исследования являются процессы необратимого деформирования и поляризации при монотонном и циклическом, пропорциональном и многоосном, механическом, электрическом или комбинированном нагружении.

Область исследования соответствует требованиям паспорта специальности 01.02.04 - Механика деформируемого твердого тела (пункт 4. Механика интеллектуальных материалов и конструкций, 3. Мезомеханика многоуровневых сред со структурой, 2. Теория моделей деформируемых тел со сложной структурой, 7. Постановка и решение краевых задач при механических и электромагнитных воздействиях).

Научная новизна. В диссертации разработан новый многоуровневый подход прогнозирования нелинейного поведения поликристаллических и монокристаллических сегнетоэлектроупругих материалов с учетом эволюции и взаимодействия мультидоменной и дефектной подструктур, многофазного состава, анизотропии свойств и диссипативного характера движения доменных стенок.

В предложенной микроструктурной модели выполнен учет тетрагональной, ромбоэдрической и орторомбической *фаз* и их смесей. В настоящее время существующие модели ограничены рассмотрением только тетрагональной фазы или смеси тетрагональной и ромбоэдрической фаз.

Для решения нелинейных электромеханических краевых задач предложена *векторно-потенциальная вариационная формулировка*, лишенная недостатков стандартной скалярно-потенциальной вариационной формулировки. Для верификации предложенных формулировок, способов задания граничных условий, методов решения нелинейных задач получены оригинальные *аналитические решения* линейных и нелинейных краевых задач сегнетоэлектроупругости в трехмерной постановке.

Систематический анализ взаимного влияния структурных элементов на различных масштабных уровнях позволил установить эффекты доменного и кристаллитного *упрочнения*. Установлен механизм возникновения в поликристалле микронапряжений вследствие наличия у кристаллитов запирающих (необратимо недеформируемых) направлений, приводящих к парадоксальному снижению уровня остаточной деформации поликристалла с ростом спонтанной деформации.

Предложено количественное описание эффекта *экстремальных свойств* вблизи *морфотропной фазовой границы* для двухфазной T/P и трехфазной T/P/O смесей, открывающее возможность синтеза сегнетоэлектроупругих материалов с оптимальной структурной организацией.

Произведено систематическое исследование влияния *ориентации дефектов* на форму петель гистерезиса. Исследованы возможности описания эффектов

смещения и *среза петель* диэлектрического и электромеханического гистерезисов, процессов старения и деэйджинга с использованием предложенных микроструктурных моделей с учетом (неизменяющихся или эволюционирующих) полярных точечных дефектов.

Содержание приведенного выше перечисления достижений, обладающих новизной, характеризует также **теоретическую значимость** работы – развитие подхода к построению многоуровневых моделей прогнозирования нелинейного поведения сегнетоэлектроупругих материалов.

Практическая значимость работы заключается в возможности использования предложенного аппарата (многоуровневых моделей, методов решения нелинейных краевых связанных задач и реализующего их комплекса программ) для исследования поведения сегнетоэлектроупругих материалов в качестве рабочих элементов сенсоров и актуаторов при комбинированном электромеханическом воздействии. Получены аналитические и численные решения для ряда актуальных для практики краевых задач. Предложенная микроструктурная модель позволяет определить концентрационные границы оптимального состава, обеспечивающие экстремальные деформационные способности многосвязной смеси, что приводит к сокращению объема экспериментов.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Микроструктурная модель сегнетоэлектроупругого материала с учетом наличия и эволюции полярных точечных дефектов, многофазного состава, анизотропии свойств, мультидоменной структуры и диссипативного характера движения доменных стенок.
2. Линейная теория эволюции точечных дефектов в сегнетоэлектроупругих материалах на основе выбора свободной энергии дефектов в виде квадратичной формы вектора поляризации и тензора деформации дефектов, уравнения эволюции которых получены на основе диссипативного неравенства.
3. Векторно-потенциальная вариационная формулировка, соответствующая принципу виртуальной электромеханической работы и приводящая к положительно-определенной матрице жесткости. Для обеспечения единственности векторного потенциала наряду с калибровкой в объеме предложены и апробированы специальные виды граничных условий для односвязных и многосвязных областей.
4. Предложено объяснение и количественное описание эффектов:
   - микроструктурного (доменного и кристаллитного) упрочнения,
   - экстремальных свойств вблизи морфотропной фазовой границы на основе двухфазной Т/Р микроструктурной модели,
   - экстремальных свойств остаточной деформации и поляризации трехфазных Т/Р/О композиций различного фазового состава,
   - наличия максимума в зависимости остаточной деформации тетрагонального и ромбоэдрического поликристалла от спонтанной деформации,
   - процесса старения после предварительной поляризации,
   - деэйджинга, связанного с уменьшением начального поля смещения при последующем интенсивном циклическом нагружении.

Достоверность результатов работы обеспечивается строгой математической постановкой задач; предельными переходами к известным случаям; сравнением с аналогичными результатами, полученными другими авторами; применением математически обоснованных методов решения; качественным и количественным совпадением с *экспериментальными* результатами.

Апробация работы. Основные результаты диссертационной работы были представлены на 47 Всероссийских и Международных конференциях, в том числе на 14th Symposium «Smart Structures and Materials» (2007 San Diego, USA); 2nd GAMM-Seminar on «Multiscale Material Modelling» (2008 Stuttgart, Germany); IUTAM Symposium «Multiscale Modelling of Fatigue, Damage and Fracture in Smart Materials Systems» (2009 Freiberg, Germany); MRS Spring Meeting «Modeling and Simulation for Smart, Ferroic and Multiferroic Materials» (2005 San Francisco, USA); 67th, 69th, 75th, 81st GAMM Annual Meeting (1996 Prag, Czech Republic; 1998 Bremen, Germany; 2004 Dresden, Germany; 2010 Karlsruhe, Germany); 19th FEM-Symposium (2006 Chemnitz, Germany); X, XI, XII Всероссийские съезды по фундаментальным проблемам теоретической и прикладной механики (2011 Нижний Новгород; 2015 Казань; 2019 Уфа); 5ый, 6ой, 8ой Международные междисциплинарные молодежные симпозиумы «Физика бессвинцовых пьезоактивных и родственных материалов (LFPM)» (2016, 2017, 2019 Туапсе/Ростов-на-Дону); XXII, XXIII, XXIV, XXVII межд. конф. «Математическое моделирование в механике деформируемых тел и конструкций. Методы граничных и конечных элементов (BEM&FEM)» (2007, 2009, 2011, 2017 С.-Петербург); 4th Scientific Symposium «Lightweight Design by Integrating Functions (CRC/Transregio 39)» (2013 Nuremberg, Germany); V, VI, VII межд. конф. «Научно-технические проблемы прогнозирования надежности и долговечности конструкций и методы их решения (RELMAS)» (2003, 2005, 2008 С.-Петербург); VI, VII, VIII межд. симпозиумы «Современные проблемы пластичности и устойчивости в механике деформируемого твердого тела» (2006, 2010, 2015 Тверь); Международные научные симпозиумы по проблемам механики деформируемых тел, посвященные 105 и 110-летию со дня рождения А.А. Ильюшина (2016, 2021 Москва); XLI, XLII, XLVIII , XLIX Int. Summer School – Conference «Advanced Problems in Mechanics» (2013, 2014, 2020, 2021 St. Petersburg); EUROMECH Colloquim-458. Advanced Methods in Validation and Identification of Nonlinear Constitutive Equations in Solid Mechanics (2004 Moscow); XXI Петербургские чтения по проблемам прочности. К 100-летию со дня рождения Л.М. Качанова и Ю.Н. Работнова (2014 С.-Петербург); XXXVII, XXXVIII, XXXIX, XL, XLI, XLII, XLIII, XLIV, XLV, XLVI, XLVII, XLVIII Недели науки СПбПУ. Межд. научно-практическая конф. (2008, 2009, 2010, 2011, 2012, 2013, 2014, 2015, 2016, 2017, 2018, 2019 С.-Петербург); Int. conf. «Emerging Trends in Applied and Computational Physics» (2019 St. Petersburg).

Часть работы выполнена при поддержке грантов Российского научного фонда (проекты 15-19-00091, 18-19-00413), Российского фонда фундаментальных исследований (проект 19-08-01252), DFG (проект 5355944).

Личный вклад. Автором или с его непосредственным лидирующим участием получены все включенные в диссертацию результаты: аналитический обзор литературы, постановки цели и задач исследования, обоснование и формулировка основных положений, определяющих научную новизну и практическую значимость работы, анализ результатов экспериментальных исследований и формулировка основных закономерностей нелинейного поведения сегнетоэлектроупругих материалов при различных видах нагружения, разработка программ, проведение вычислительных экспериментов, анализ и обобщение аналитических и численных результатов моделирования, формулировка выводов. Базовые работы по тематике исследований [1,2,17,18] выполнены без соавторов.

Публикации. Результаты диссертации опубликованы в 45 работах, в том числе в 16 изданиях [1-16], рекомендованных ВАК России и/или входящих в международные базы цитирования Web of Science и Scopus.

Объем и структура диссертации. Диссертационная работа состоит из введения, 6 глав, заключения, списка использованной литературы и 6 приложений. Работа изложена на 470 страницах (основной текст занимает 379 страниц), содержит 190 рисунков и 32 таблицы. Список литературы включает 515 наименований.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Во введении обоснована актуальность темы диссертации, сформулирована цель и основные задачи исследования, указаны научная новизна, практическая значимость работы и основные положения, выносимые на защиту, представлена информация о структуре диссертации и об апробации работы.

Первая глава посвящена обзору экспериментальных и теоретических основ процессов переключения в сегнетоэлектроупругих материалах.

В настоящее время благодаря рекордно высоким значениям пьезоэлектрических модулей наибольшее распространение при создании смарт устройств получила поликристаллическая сегнетопьезокерамика, традиционными областями применения которой являются устройства, основанные на использовании прямого и обратного пьезоэффекта, нелинейных свойств материала, возможности процессов переключения: автомобильная, авиакосмическая и морская техника, машиностроение, микроэлектроника, оптико-лазерная техника, медицинская техника, спорт и автономные накопители энергии.

В диссертации представлено необходимое для разработки многоуровневых моделей описание структуры сегнетоэлектроупругих материалов на различных масштабных уровнях, рассмотрены принципы формирования доменной структуры, показаны особенности поведения вблизи морфотропной фазовой границы.

Результаты экспериментальных исследований являются основой для разработки и верификации микроструктурных и феноменологических моделей сегнетоэлектроупругого материала, а также идентификации параметров разрабатываемых моделей. Поэтому в работе приведен систематический обзор имеющихся *экспериментальных* данных по необратимому деформированию и поляризации при монотонном и циклическом, одноосном и многоосном, пропорциональном и непропорциональном, механическом, электрическом или комбинированном нагружении.

Произведен аналитический обзор литературы по существующим *моделям* описания процессов необратимого деформирования и поляризации сегнетоэлектроупругих материалов, начиная с пионерской работы В.Л. Гинзбурга 1945 г., где он впервые применил к сегнетоэлектрикам основные положения теории фазовых переходов Л.Д. Ландау. В обзоре рассмотрены известные микроструктурные и феноменологические склерономные и реономные модели сегнетоэлектроупругих поликристаллов и монокристаллов (при нагружении в диапазоне температур существенно ниже точки Кюри). Достигнут значительный прогресс в описании поведения сегнетопьезокерамики, однако существующие модели не описывают ряд важных эффектов, таких как появление экстремальных свойств вблизи морфотропной фазовой границы, предсказание эволюции поверхности переключения, поведение при многоосном непропорциональном нагружении, описание эффектов старения, усталости и деэйджинга.

Во второй главе рассматриваются математические (микроструктурные и феноменологические) модели сегнетоэлектроупругого материала.

Микроструктурные модели позволяют учесть процессы изменения структуры и особенности механизмов деформирования и поляризации на разных структурных уровнях. Для описания поведения поликристаллического сегнетоэлектроупругого материала на макроуровне используется метод многоуровневой гомогенизации, применяемый для систем, позволяющих выделить несколько характерных масштабных уровней (элементарная ячейка кристаллической решетки, домен, кристалл, поликристалл). На Рис. 1 представлена иллюстрация иерархии рассматриваемых масштабных уровней для поликристаллической сегнетопьезокерамики с характерными размерами: элементарной ячейки периодичности ~10^{-10} м, домена ~10^{-7}-10^{-5} м, кристаллита ~10^{-5}-10^{-4} м и размером элемента устройства ~10^{-3}-10^{-1} м.

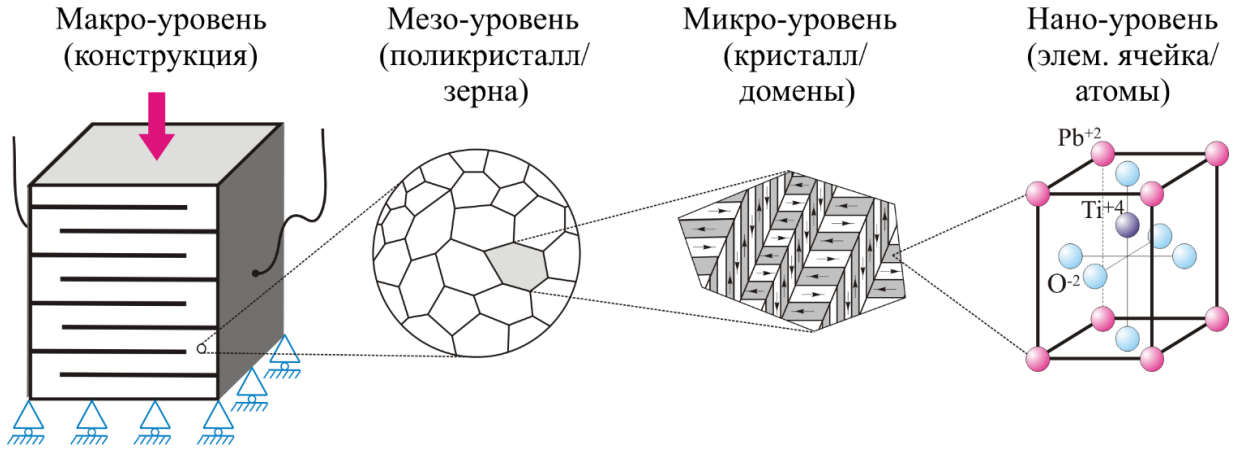


Рис. 1. Масштабные уровни для поликристаллической сегнетопьезокерамики.

Связь между *макроскопическими* (для поликристалла) механическими и электрическими переменными $\{\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}, \bar{\boldsymbol{\sigma}}, \bar{\mathbf{D}}, \bar{\mathbf{E}}, \bar{\psi}\}$ и переменными на *мезоуровне* (для кристаллита) $\{\boldsymbol{\varepsilon}, \boldsymbol{\sigma}, \mathbf{D}, \mathbf{E}, \psi\}$ определяется уравнениями:

$$\bar{\boldsymbol{\varepsilon}} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОП}}} \int_{V_{\text{ЭПОП}}} \boldsymbol{\varepsilon}\, dV, \qquad \bar{\boldsymbol{\sigma}} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОП}}} \int_{V_{\text{ЭПОП}}} \boldsymbol{\sigma}\, dV, \tag{1}$$

$$\bar{\mathbf{D}} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОП}}} \int_{V_{\text{ЭПОП}}} \mathbf{D}\, dV, \qquad \bar{\mathbf{E}} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОП}}} \int_{V_{\text{ЭПОП}}} \mathbf{E}\, dV, \tag{2}$$

$$\bar{\rho}\bar{\psi} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОП}}} \int_{V_{\text{ЭПОП}}} \rho\psi\, dV, \tag{3}$$

где $\boldsymbol{\varepsilon}$ и $\boldsymbol{\sigma}$ – тензоры деформации и напряжений, $\mathbf{D}$ и $\mathbf{E}$ – векторы электрического смещения и напряженности электрического поля, ψ – плотность свободной энергии. В уравнениях (1)-(3) $V_{\text{ЭПОП}}$ – элементарный представительный объем (ЭПО) поликристалла, ограниченный замкнутой поверхностью $\partial V_{\text{ЭПОП}}$.

Гомогенизация при *переходе с уровня домена на уровень монокристалла* осуществляется аналитически в рамках осреднения Рейсса (в предположении однородности полей напряжений и напряженности электрического поля в кристалле). Введение второго уровня гомогенизации производится в упрощенной

форме с целью учесть полидоменную структуру кристаллита на микроуровне при описании процессов поляризации без значительного усложнения модели.

Связь между переменными на *мезоуровне* (для кристаллита) $\{\boldsymbol{\varepsilon}, \boldsymbol{\sigma}, \mathbf{D}, \mathbf{E}, \psi\}$ и на *микроуровне* (для домена) $\{\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}, \tilde{\boldsymbol{\sigma}}, \tilde{\mathbf{D}}, \tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\psi}\}$ определяется в рамках подхода Рейсса уравнениями:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОК}}} \int\limits_{V_{\text{ЭПОК}}} \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}\, dV = \sum_{I=1}^{N} c_I \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I, \qquad \boldsymbol{\sigma} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОК}}} \int\limits_{V_{\text{ЭПОК}}} \tilde{\boldsymbol{\sigma}}\, dV \equiv \tilde{\boldsymbol{\sigma}}, \tag{4}$$

$$\mathbf{D} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОК}}} \int\limits_{V_{\text{ЭПОК}}} \tilde{\mathbf{D}}\, dV = \sum_{I=1}^{N} c_I \tilde{\mathbf{D}}_I, \qquad \mathbf{E} = \frac{1}{V_{\text{ЭПОК}}} \int\limits_{V_{\text{ЭПОК}}} \tilde{\mathbf{E}}\, dV \equiv \tilde{\mathbf{E}}, \tag{5}$$

$$\rho\psi = \frac{1}{V_{\text{ЭПОК}}} \int\limits_{V_{\text{ЭПОК}}} \tilde{\rho}\tilde{\psi}\, dV = \sum_{I=1}^{N} c_I \tilde{\rho}\tilde{\psi}_I, \tag{6}$$

где $V_{\text{ЭПОК}}$ – объем ЭПО кристаллита (зерна); $\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I$ – тензор деформации I-го домена; $\tilde{\mathbf{D}}_I$ – вектор электрического смещения I-го домена; $\tilde{\psi}_I$ – плотность свободной энергии I-го домена, N – количество доменов в кристаллите, c_I – объемная доля I-го домена в монокристалле, удовлетворяющая ограничениям:

$$0 \le c_I \le 1, \qquad \sum_{I=1}^{N} c_I = 1. \tag{7}$$

При формулировке определяющих уравнений для сегнетопьезокерамики предполагается, что деформации являются малыми и выполняются условия изотермического нагружения. Принимается, что тензор деформации $\boldsymbol{\varepsilon}$ и вектор электрической индукции $\mathbf{D}$ допускают декомпозицию в виде суммы линейных (обратимых) $\boldsymbol{\varepsilon}^l$, $\mathbf{D}^l$ и остаточных (аналог пластических) $\boldsymbol{\varepsilon}^r$, $\mathbf{P}^r$ составляющих:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}^l + \boldsymbol{\varepsilon}^r, \qquad \mathbf{D} = \mathbf{D}^l + \mathbf{P}^r. \tag{8}$$

Для обратимых составляющих справедливы линейные соотношения, соответствующие линейному пьезоэлектрическому материалу:

$$\begin{cases} \boldsymbol{\varepsilon}^l = \boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^r = {}^4\mathbf{S}^E \cdot\cdot\, \boldsymbol{\sigma} + {}^3\mathbf{d}^T \cdot \mathbf{E}, \\ \mathbf{D}^l = \mathbf{D} - \mathbf{P}^r = {}^3\mathbf{d} \cdot\cdot\, \boldsymbol{\sigma} + \boldsymbol{\kappa}^\sigma \cdot \mathbf{E}, \end{cases} \tag{9}$$

которые допускают следующую обращенную форму:

$$\begin{cases} \boldsymbol{\sigma} = {}^4\mathbf{C}^D \cdot\cdot \left(\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^r\right) - {}^3\mathbf{h}^T \cdot \left(\mathbf{D} - \mathbf{P}^r\right), \\ \mathbf{E} = -{}^3\mathbf{h} \cdot\cdot \left(\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^r\right) + \boldsymbol{\beta}^\varepsilon \cdot \left(\mathbf{D} - \mathbf{P}^r\right), \end{cases} \tag{10}$$

где ${}^4\mathbf{S}^E$ – тензор модулей упругой податливости кристаллита при постоянном электрическом поле (4го ранга), ${}^3\mathbf{d}$ – тензор пьезоэлектрических модулей кристаллита (3го ранга) и $\boldsymbol{\kappa}^\sigma$ – тензор модулей диэлектрической проницаемости кристаллита при постоянных напряжениях (2го ранга). Тензоры ${}^4\mathbf{C}^D, {}^3\mathbf{h}, \boldsymbol{\beta}^\varepsilon$ определяются на основе тензоров ${}^4\mathbf{S}^E, {}^3\mathbf{d}, \boldsymbol{\kappa}^\sigma$ путем инверсии блочной матрицы.

Процессы необратимого деформирования и спонтанной поляризации пьезокерамики связаны с возможностью скачкообразного перемещения нецентральносимметричных атомов кристаллической решетки. В данном исследовании рассмотрены три типа решеток (фаз). В *тетрагональном* монокристалле реализуется $N = 6$ ориентаций спонтанной поляризации $\langle 001 \rangle$, соответствующих 6 возможным вариантам доменов. В *ромбоэдрическом* монокристалле реализуется $N = 8$

ориентаций спонтанной поляризации $\langle 111 \rangle$. В *орторомбическом* монокристалле реализуется $N = 12$ ориентаций спонтанной поляризации $\langle 011 \rangle$. Тензор остаточной деформации и вектор остаточной поляризации кристаллита в рамках подхода Рейсса могут быть записаны как сумма вкладов отдельных доменов:

$$\boldsymbol{\varepsilon}^r = \sum_{I=1}^{N} c_I \, \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^r, \qquad \mathbf{P}^r = \sum_{I=1}^{N} c_I \, \tilde{\mathbf{P}}_I^r. \tag{11}$$

Тензор $\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^r$ и вектор $\tilde{\mathbf{P}}_I^r$ являются постоянными и определяются исключительно геометрией решетки и значениями спонтанной деформации и поляризации.

Модули монокристалла ${}^4\mathbf{S}^E, {}^3\mathbf{d}$ и $\boldsymbol{\kappa}^\sigma$ определяются на основе модулей отдельных доменов ${}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E$, ${}^3\tilde{\mathbf{d}}_I$ и $\tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma$ соотношениями, аналогичными (11):

$${}^4\mathbf{S}^E = \sum_{I=1}^{N} c_I \, {}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E, \qquad {}^3\mathbf{d} = \sum_{I=1}^{N} c_I \, {}^3\tilde{\mathbf{d}}_I, \qquad \boldsymbol{\kappa}^\sigma = \sum_{I=1}^{N} c_I \tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma. \tag{12}$$

Структура тензоров ${}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E$, ${}^3\tilde{\mathbf{d}}_I$ и $\tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma$ определяется типом кристаллической решетки. В рамках модели *трансверсально-изотропного* материала с нормалью к плоскости изотропии, определяемой направлением поляризации $\mathfrak{p} = \tilde{\mathbf{P}}_I^r / |\tilde{\mathbf{P}}_I^r|$, выражения для линейных модулей имеют вид:

$$\begin{aligned}
{}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E &= \tilde{s}_1 \mathbf{1}\otimes\mathbf{1} + \tilde{s}_2\left(\mathbf{1}\,\overline{\otimes}\,\mathbf{1} + \mathbf{1}\,\underline{\otimes}\,\mathbf{1}\right) + \\
&+ \tilde{s}_3\left(\mathbf{1}\otimes\mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p} + \mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p}\otimes\mathbf{1}\right) + \tilde{s}_4\left(\mathbf{1}\,\underline{\otimes}\,\mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p} + \mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p}\,\underline{\otimes}\,\mathbf{1}\right) + \tilde{s}_5\left(\mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p}\right), \\
{}^3\tilde{\mathbf{d}}_I &= \tilde{d}_{31}\left(\mathfrak{p}\otimes\mathbf{1} - \mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p}\right) + \tilde{d}_{33}\mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p} + \tfrac{1}{2}\tilde{d}_{15}\left(\mathbf{1}\otimes\mathfrak{p} + \mathbf{1}\,\overline{\otimes}\,\mathfrak{p} - 2\mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p}\right), \\
\tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma &= \tilde{\kappa}_{11}\left(\mathbf{1} - \mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p}\right) + \tilde{\kappa}_{33}\mathfrak{p}\otimes\mathfrak{p},
\end{aligned} \tag{13}$$

где $\mathbf{1}$ - единичный тензор, $\left(\mathbf{A}\otimes\mathbf{B}\right)_{ijkl} = A_{ij}B_{kl}$, $\left(\mathbf{A}\,\overline{\otimes}\,\mathbf{B}\right)_{ijkl} = A_{ik}B_{jl}$, $\left(\mathbf{A}\,\underline{\otimes}\,\mathbf{B}\right)_{ijkl} = A_{il}B_{jk}$, $\left(\mathbf{A}\,\overline{\otimes}\,\mathbf{x}\right)_{ijk} = A_{ik}x_j$ - символы прямого и непрямого диадного умножения. Для задания ${}^4\tilde{\mathbf{S}}_I^E$, ${}^3\tilde{\mathbf{d}}_I$ и $\tilde{\boldsymbol{\kappa}}_I^\sigma$ требуется знание 10 констант материала: $\tilde{s}_1, \tilde{s}_2, \tilde{s}_3, \tilde{s}_4, \tilde{s}_5, \tilde{d}_{31}, \tilde{d}_{33}, \tilde{d}_{15}, \tilde{\kappa}_{11}, \tilde{\kappa}_{33}$.

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

$$\dot{c}_I = \sum_{\substack{J=1 \\ J\neq I}}^{N} \left(\dot{c}^{J\to I} - \dot{c}^{I\to J}\right). \tag{14}$$

Следствием соотношений (11) и (14) скорости остаточных деформаций и поляризации могут быть представлены в виде:

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^r = \sum_{I=1}^{N}\sum_{\substack{J=1 \\ J\neq I}}^{N} \dot{c}^{J\to I} \Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^r, \qquad \dot{\mathbf{P}}^r = \sum_{I=1}^{N}\sum_{\substack{J=1 \\ J\neq I}}^{N} \dot{c}^{J\to I} \Delta\tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^r, \tag{15}$$

где $\Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^r = \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^r - \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_J^r$ и $\Delta\tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^r = \tilde{\mathbf{P}}_I^r - \tilde{\mathbf{P}}_J^r$.

Переменные c_I или им эквивалентные $c^{J\to I}$ представляют собой внутренние переменные состояния. Для описания их изменения вводятся уравнения эволюции, на вид которых накладывают ограничения уравнения термодинамики. Подстановка выражения свободной энергии $\psi(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{D}, c_I)$, заданного в виде квадратичной формы:

$$\rho\psi = \tfrac{1}{2}\left(\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^r\right)\cdot\cdot\,{}^4\mathbf{C}^D\cdot\cdot\left(\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^r\right) - \left(\mathbf{D} - \mathbf{P}^r\right)\cdot{}^3\mathbf{h}\cdot\cdot\left(\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^r\right) + \tfrac{1}{2}\left(\mathbf{D} - \mathbf{P}^r\right)\cdot\boldsymbol{\beta}^\varepsilon\cdot\left(\mathbf{D} - \mathbf{P}^r\right) \tag{16}$$

в диссипативное неравенство $\delta = \boldsymbol{\sigma} \cdot\cdot \dot{\boldsymbol{\varepsilon}} + \mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{D}} - \rho\dot{\psi} \geq 0$ с учетом (8)-(15) приводит к [1]:

$$\delta = \sum_{I=1}^{N} \sum_{\substack{J=1 \\ J \neq I}}^{N} G^{J \to I} \dot{c}^{J \to I} \geq 0, \tag{17}$$

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

$$G^{J \to I} = \boldsymbol{\sigma} \cdot\cdot \Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^{r}_{J \to I} + \mathbf{E} \cdot \Delta\tilde{\mathbf{P}}^{r}_{J \to I} + \tfrac{1}{2}\boldsymbol{\sigma} \cdot\cdot \Delta^{4}\tilde{\mathbf{S}}^{E}_{J \to I} \cdot\cdot \boldsymbol{\sigma} + \mathbf{E} \cdot \Delta^{3}\tilde{\mathbf{d}}_{J \to I} \cdot\cdot \boldsymbol{\sigma} + \tfrac{1}{2}\mathbf{E} \cdot \Delta\tilde{\boldsymbol{\kappa}}^{\sigma}_{J \to I} \cdot \mathbf{E}. \tag{18}$$

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

$$\dot{c}^{J \to I} = \begin{cases} B^{J \to I} \left(\dfrac{G^{J \to I}}{G_c^{J \to I}} \right)^{n} \left(\dfrac{c_J}{C_0} \right)^{m}, & G^{J \to I} \geq 0; \\ 0, & G^{J \to I} < 0; \end{cases} \tag{19}$$

где $G_c^{J \to I} > 0, B^{J \to I} > 0, n > 0, m > 0, C_0 > 0$ – константы материала, определяющие форму гистерезисных кривых. Для описания склерономного поведения выбирается $n >> 1$ по аналогии с пластичностью кристаллов. Введение последнего сомножителя в (19) позволяет описать эффект насыщения и удовлетворить ограничениям (7), так как при исчерпании концентрации донора $c^{J} \to 0$ скорость переключения падает $\dot{c}^{J \to I} \to 0$, чем обеспечивается выполнение условия $c^{J} \geq 0$.

Введенная микроструктурная модель основана на базовых идеях подхода Huber-Fleck[1], в развитии которого в данной модели произведен учет многофазности (актуальный для описания поведения реальных пьезокерамик), анизотропии свойств доменов, рассмотрены альтернативные варианты уравнений эволюции, выполнен учет дефектов кристаллической решетки.

Формулировка определяющих уравнений микроструктурной модели *с учетом дефектов* основана на введении в рассмотрение двух внутренних переменных: вектора поляризации $\mathbf{P}^{d}$ и тензора деформации $\boldsymbol{\varepsilon}^{d}$, учитывающих наличие полярных точечных дефектов в кристаллической решетке. Они являются дополнительными аргументами свободной энергии и уравнений эволюции других внутренних переменных.

Предполагается, что $\mathbf{P}^{d}$ и $\boldsymbol{\varepsilon}^{d}$, описывающие влияние дефектов, так же, как и $\mathbf{P}^{r}$ и $\boldsymbol{\varepsilon}^{r}$, учитывающие процессы переключения, представляют собой вклад в общую спонтанную деформацию и поляризацию:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}^{l} + \boldsymbol{\varepsilon}^{r} + \boldsymbol{\varepsilon}^{d}, \qquad \mathbf{D} = \mathbf{D}^{l} + \mathbf{P}^{r} + \mathbf{P}^{d}. \tag{20}$$

Предполагается, что свободная энергия реального (дефектосодержащего) кристаллита допускает разложение:

$$\psi = \psi_{ideal} + \psi_{defect}, \tag{21}$$

где $\psi_{ideal} = \psi_{ideal}(\mathbf{D}, \boldsymbol{\varepsilon}, c_I)$ – свободная энергия идеального (бездефектного) кристалла, определяемая квадратичной формой (16), $\psi_{defect} = \psi_{defect}(\mathbf{P}^{d}, \boldsymbol{\varepsilon}^{d}, \mathbf{P}^{r}, \boldsymbol{\varepsilon}^{r})$ – свободная энергия, вызванная появлением дефектов. Аргументы $\mathbf{P}^{r}, \boldsymbol{\varepsilon}^{r}$ в функции $\psi_{defect} = \psi_{defect}(\mathbf{P}^{d}, \boldsymbol{\varepsilon}^{d}, \mathbf{P}^{r}, \boldsymbol{\varepsilon}^{r})$ введены для учета взаимного влияния дефектов и до-

[1] Huber J.E., Fleck N.A. Multi-axial electrical switching of a ferroelectric: Theory versus experiment // Journal of the Mechanics and Physics of Solids. 2001. № 4 (49). P. 785–811.

менных стенок. Ограничиваясь рассмотрением *линейной теории* дефектов в сегнетоэлектроупругих материалах вводится наиболее общее выражение свободной энергии дефектов в виде квадратичной формы:

$$\begin{aligned}\rho\psi_{defect} = {} & \tfrac{1}{2}\mathbf{P}^d\cdot\mathbf{Q}_P\cdot\mathbf{P}^d + \mathbf{P}^d\cdot{}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon}\cdot\cdot\,\boldsymbol{\varepsilon}^d + \tfrac{1}{2}\boldsymbol{\varepsilon}^d\cdot\cdot{}^4\mathbf{Q}_\varepsilon\cdot\cdot\,\boldsymbol{\varepsilon}^d + \\ & + \mathbf{P}^d\cdot\mathbf{L}_P\cdot\mathbf{P}^r + \mathbf{P}^d\cdot{}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon}\cdot\cdot\,\boldsymbol{\varepsilon}^r + \mathbf{P}^r\cdot{}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}\cdot\cdot\,\boldsymbol{\varepsilon}^d + \boldsymbol{\varepsilon}^d\cdot\cdot{}^4\mathbf{L}_\varepsilon\cdot\cdot\,\boldsymbol{\varepsilon}^r,\end{aligned} \tag{22}$$

где $\mathbf{Q}_P, {}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon}, {}^4\mathbf{Q}_\varepsilon, \mathbf{L}_P, {}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon}, {}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}, {}^4\mathbf{L}_\varepsilon$ – тензоры, характеризующие чувствительность материала к влиянию дефектов. $\mathbf{Q}$-тензоры ($\mathbf{Q}_P, {}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon}, {}^4\mathbf{Q}_\varepsilon$) используются в *квадратичных* членах по отношению к величинам, характеризующим дефектное состояние $\mathbf{P}^d$ и $\boldsymbol{\varepsilon}^d$, $\mathbf{L}$-тензоры ($\mathbf{L}_P, {}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon}, {}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}, {}^4\mathbf{L}_\varepsilon$) – в *линейных*.

В случае *неизменяющихся* (замороженных, труднопереключаемых) дефектов, когда $\mathbf{P}^d = \mathbf{const}$ и $\boldsymbol{\varepsilon}^d = \mathbf{const}$, выражение для диссипативной функции примет вид, аналогичный (17):

$$\delta = \sum_{I=1}^{N}\sum_{\substack{J=1\\J\neq I}}^{N}\left(G_{ideal}^{J\to I} - G_{defect}^{J\to I}\right)\dot{c}^{J\to I} \geq 0, \tag{23}$$

где результирующая движущая сила определяется выражением:

$$\begin{aligned}G^{J\to I} = G_{ideal}^{J\to I} - G_{defect}^{J\to I} = {} & \left(\boldsymbol{\sigma} - \frac{\partial\rho\psi_{defect}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^r}\right)\cdot\cdot\,\Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^r + \left(\mathbf{E} - \frac{\partial\rho\psi_{defect}}{\partial\mathbf{P}^r}\right)\cdot\Delta\tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^r + \\ & + \tfrac{1}{2}\boldsymbol{\sigma}\cdot\cdot\Delta{}^4\tilde{\mathbf{S}}_{J\to I}^E\cdot\cdot\,\boldsymbol{\sigma} + \mathbf{E}\cdot\Delta{}^3\tilde{\mathbf{d}}_{J\to I}\cdot\cdot\,\boldsymbol{\sigma} + \tfrac{1}{2}\mathbf{E}\cdot\Delta\tilde{\boldsymbol{\kappa}}_{J\to I}^\sigma\cdot\mathbf{E}.\end{aligned} \tag{24}$$

Движущая сила бездефектного материала $G_{ideal}^{J\to I}$ вычисляется на основе (18). В случае *линейной теории* (22) движущая сила вследствие появления дефектов $G_{defect}^{J\to I}$ определяется равенством:

$$G_{defect}^{J\to I} = \mathbf{P}^d\cdot\mathbf{L}_P\cdot\Delta\tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^r + \mathbf{P}^d\cdot{}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon}\cdot\cdot\,\Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^r + \Delta\tilde{\mathbf{P}}_{J\to I}^r\cdot{}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}\cdot\cdot\,\boldsymbol{\varepsilon}^d + \boldsymbol{\varepsilon}^d\cdot\cdot{}^4\mathbf{L}_\varepsilon\cdot\cdot\,\Delta\tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J\to I}^r. \tag{25}$$

Обобщением уравнений эволюции (19) является:

$$\dot{c}^{J\to I} = \begin{cases} B^{J\to I}\left(\dfrac{G_{ideal}^{J\to I} - G_{defect}^{J\to I}}{G_c^{J\to I}}\right)^n\left(\dfrac{c_J}{C_0}\right)^m, & G_{ideal}^{J\to I} - G_{defect}^{J\to I} \geq 0; \\ 0, & G_{ideal}^{J\to I} - G_{defect}^{J\to I} < 0. \end{cases} \tag{26}$$

Структура уравнений (26) соответствует модели кинематического упрочнения, используемой в теории пластичности. $G_{defect}^{J\to I}$ определяет вклад системы переключения $J\to I$ в смещение петли гистерезиса вдоль осей компонент тензора напряжений и вектора электрического поля. Наличие точечных дефектов приводит к возникновению внутренних полей смещения напряжений $\boldsymbol{\sigma}_d$ и электрических полей $\mathbf{E}_d$, непосредственно определяющих величину сдвига центров петель гистерезисов. Как следует из выражений (18) и (25), в случае представления свободной энергии дефектов в виде квадратичной формы (22) внутренние поля смещения линейно связаны с деформацией и поляризацией дефектов:

$$\begin{cases} \boldsymbol{\sigma}_d = \dfrac{\partial\rho\psi_{defect}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}^r} = {}^4\mathbf{L}_\varepsilon^T\cdot\cdot\,\boldsymbol{\varepsilon}^d + {}^3\mathbf{L}_{P\varepsilon}^T\cdot\mathbf{P}^d, \\ \mathbf{E}_d = \dfrac{\partial\rho\psi_{defect}}{\partial\mathbf{P}^r}\,{}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P}\cdot\cdot\,\boldsymbol{\varepsilon}^d + \mathbf{L}_P^T\cdot\mathbf{P}^d. \end{cases} \tag{27}$$

В микроструктурной модели с *учетом эволюции дефектов* принимается во внимание дискретный характер возможных ориентаций дипольного дефекта в соответствии с расположением кислородных вакансий в элементарной кристал-

лической ячейке. В этом случае, по аналогии с выражениями для $\boldsymbol{\varepsilon}^r$ и $\mathbf{P}^r$ (11), деформация и поляризация дефектов определяются как сумма вкладов отдельных направлений:

$$\boldsymbol{\varepsilon}^d = \sum_{I=1}^{L} n_I \, \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^d, \qquad \mathbf{P}^d = \sum_{I=1}^{L} n_I \, \tilde{\mathbf{P}}_I^d, \tag{28}$$

где L – число возможных направлений ориентаций дефекта (для перовскитов тетрагональной симметрии в поляризованном состоянии $L = N = 6$), n_I – плотность дипольных дефектов определенного направления (для перовскитов тетрагональной симметрии совпадает с ориентацией поляризации I-го домена).

Диссипативная функция в этом случае определяется выражением:

$$\delta = \sum_{I=1}^{N} \sum_{\substack{J=1 \\ J \neq I}}^{N} G^{J \to I} \dot{c}^{J \to I} + \sum_{I=1}^{L} \sum_{\substack{J=1 \\ J \neq I}}^{L} H^{J \to I} \dot{n}^{J \to I} \geq 0, \tag{29}$$

где движущая сила $G^{J \to I}$, сопряженная с $c^{J \to I}$, вычисляется на основе равенства (24), а движущая сила $H^{J \to I}$, сопряженная с $n^{J \to I}$, определяется соотношением:

$$H^{J \to I} = \left(\boldsymbol{\sigma} - \frac{\partial \psi_{defect}}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^d} \right) \cdot\cdot \, \Delta \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J \to I}^d + \left(\mathbf{E} - \frac{\partial \psi_{defect}}{\partial \mathbf{P}^d} \right) \cdot \Delta \tilde{\mathbf{P}}_{J \to I}^d . \tag{30}$$

В случае квадратичной функции свободной энергии дефектов (22) движущая сила допускает представление в виде линейной функции переменных $\mathbf{P}^d, \boldsymbol{\varepsilon}^d, \mathbf{P}^r, \boldsymbol{\varepsilon}^r$:

$$\begin{aligned} H^{J \to I} = & \left(\boldsymbol{\sigma} - \boldsymbol{\varepsilon}^d \cdot\cdot \, {}^4\mathbf{Q}_{\varepsilon} - \mathbf{P}^d \cdot {}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^r \cdot\cdot \, {}^4\mathbf{L}_{\varepsilon}^T - \mathbf{P}^r \cdot {}^3\mathbf{L}_{\varepsilon P} \right) \cdot\cdot \, \Delta \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J \to I}^d + \\ & + \left(\mathbf{E} - \boldsymbol{\varepsilon}^d \cdot\cdot \, {}^3\mathbf{Q}_{P\varepsilon}^T - \mathbf{P}^d \cdot \mathbf{Q}_P - \boldsymbol{\varepsilon}^r \cdot\cdot \, {}^4\mathbf{L}_{P\varepsilon}^T - \mathbf{P}^r \cdot \mathbf{L}_P^T \right) \cdot \Delta \tilde{\mathbf{P}}_{J \to I}^d, \end{aligned} \tag{31}$$

где $\Delta \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_{J \to I}^d = \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_I^d - \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}_J^d$ и $\Delta \tilde{\mathbf{P}}_{J \to I}^d = \tilde{\mathbf{P}}_I^d - \tilde{\mathbf{P}}_J^d$ – константы материала, характеризующие изменение параметров дипольного дефекта при изменении местоположения кислородной вакансии в кристаллической решетке.

Уравнения эволюции для $c^{J \to I}$ описываются системой (26), а для $n^{J \to I}$ определяются выражением:

$$\dot{n}^{J \to I} = \begin{cases} A^{J \to I} \left(\dfrac{H^{J \to I}}{H_c^{J \to I}} \right)^l \left(\dfrac{n_J}{N_0} \right)^q, & H^{J \to I} \geq 0; \\ 0, & H^{J \to I} < 0; \end{cases} \tag{32}$$

где $H_c^{J \to I} > 0, A^{J \to I} > 0, l > 0, q > 0, N_0 > 0$ – константы, характеризующие изменение дипольного дефекта.

В работе показано, что модель Arlt-Neumann[2] переориентации дефектов (основана на термоактивационном механизме процесса миграции кислородных вакансий, описываемого уравнением Аррениуса) при принятии предположения о степенной зависимости энергии активации от $H^{J \to I}$ совпадает с предложенными уравнениями эволюции (32).

Для описания поведения сегнетоэлектроупругого материала на макроуровне рассматривается микромеханически мотивированная *феноменологическая* модель, основанная на модификации модели Landis[3]. Формулировка определяющих уравнений производится с использованием аналогий с феноменологической теорией пластичности (теорией пластического течения с кинематическим

[2] Arlt G., Neumann H. Internal bias in ferroelectric ceramics: Origin and time dependence, Ferroelectrics. 1988. 87 (1). P. 109–120.

[3] Landis C.M. Fully coupled, multi-axial, symmetric constitutive laws for polycrystalline ferroelectric ceramics // J. Mech. Phys. Solids. 2002. Vol. 50. No. 1. P. 127–152.

упрочнением). Зависимость от истории нагружения в этой модели учитывается на основе введения двух внутренних переменных состояния: тензора остаточных (аналог пластических) деформаций $\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r$ и вектора поляризации $\overline{\mathbf{P}}^r$.

В соответствии с используемой парадигмой *стандартного материала с диссипацией*[4] для задания определяющих уравнений (уравнений состояния) вводятся два выпуклых потенциала: плотность свободной энергии (термодинамический потенциал Гельмгольца) $\overline{\rho\psi}\left(\overline{\boldsymbol{\varepsilon}},\overline{\mathbf{D}},\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r,\overline{\mathbf{P}}^r\right)$ и потенциал диссипации $\overline{\delta}^r(\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}^r,\dot{\overline{\mathbf{P}}}^r)$. Использование концепции стандартного материала обеспечивает получение термодинамически согласованных формулировок, возможность введения экстремальных принципов, выполнение условий существования и единственности решения начально-краевой задачи.

Подстановка в диссипативное неравенство $\overline{\delta}=\overline{\boldsymbol{\sigma}}\cdot\cdot\,\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}+\overline{\mathbf{E}}\cdot\dot{\overline{\mathbf{D}}}-\dot{\overline{\rho\psi}}\geq 0$ выражения свободной энергии $\overline{\rho\psi}\left(\overline{\boldsymbol{\varepsilon}},\overline{\mathbf{D}},\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r,\overline{\mathbf{P}}^r\right)$ приводит к соотношению:

$$\overline{\delta}=\left(\overline{\boldsymbol{\sigma}}-\frac{\partial\overline{\rho\psi}}{\partial\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}\right)\cdot\cdot\,\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}+\left(\overline{\mathbf{E}}-\frac{\partial\overline{\rho\psi}}{\partial\overline{\mathbf{D}}}\right)\cdot\dot{\overline{\mathbf{D}}}-\frac{\partial\overline{\rho\psi}}{\partial\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r}\cdot\cdot\,\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}^r-\frac{\partial\overline{\rho\psi}}{\partial\overline{\mathbf{P}}^r}\cdot\dot{\overline{\mathbf{P}}}^r\geq 0\,. \tag{33}$$

Так как условие (33) должно выполняться для всех возможных термодинамических процессов, то есть при любых значениях $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}$ и $\dot{\mathbf{D}}$, то выражения в круглых скобках должны обратиться в $\mathbf{0}$, что приводит к определяющим уравнениям:

$$\overline{\boldsymbol{\sigma}}=\frac{\partial\overline{\rho\psi}}{\partial\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}},\qquad \overline{\mathbf{E}}=\frac{\partial\overline{\rho\psi}}{\partial\overline{\mathbf{D}}}. \tag{34}$$

Обобщенные термодинамические силы, энергетически сопряженные с внутренними переменными $\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r$ и $\overline{\mathbf{P}}^r$, определяются равенствами:

$$\hat{\boldsymbol{\sigma}}=-\frac{\partial\overline{\rho\psi}}{\partial\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r},\qquad \hat{\mathbf{E}}=-\frac{\partial\overline{\rho\psi}}{\partial\overline{\mathbf{P}}^r}, \tag{35}$$

с использованием которых получается компактная формулировка диссипативного неравенства в форме неравенства Кельвина:

$$\overline{\delta}=\hat{\boldsymbol{\sigma}}\cdot\cdot\,\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}^r+\hat{\mathbf{E}}\cdot\dot{\overline{\mathbf{P}}}^r\geq 0\,. \tag{36}$$

Таким образом, внутренняя диссипация $\overline{\delta}$ допускает представление в виде суммы произведений диссипативных сил $\hat{\boldsymbol{\sigma}}$ и $\hat{\mathbf{E}}$ на соответствующие потоки $\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}^r$ и $\dot{\overline{\mathbf{P}}}^r$.

Уравнения эволюции для внутренних сил могут быть получены на основе потенциала диссипации $\overline{\delta}^r(\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}^r,\dot{\overline{\mathbf{P}}}^r)$, представляющего непрерывную скалярную выпуклую функцию переменных $\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}^r$ и $\dot{\overline{\mathbf{P}}}^r$. Применение преобразования Лежандра-Фенхеля к потенциалу $\overline{\delta}^r(\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}^r,\dot{\overline{\mathbf{P}}}^r)$ приводит к соответствующему сопряженному потенциалу $\overline{\delta}^{r*}(\hat{\boldsymbol{\sigma}},\hat{\mathbf{E}})=\sup\limits_{\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}^r,\dot{\overline{\mathbf{P}}}^r}\left\{\hat{\boldsymbol{\sigma}}\cdot\cdot\,\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}^r+\hat{\mathbf{E}}\cdot\dot{\overline{\mathbf{P}}}^r-\overline{\delta}^r(\dot{\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}}^r,\dot{\overline{\mathbf{P}}}^r)\right\}$, который представляет собой индикаторную функцию для выпуклого множества допустимой области изменения внутренних сил, определяемой функцией переключения (нагружения):

$$\overline{\Phi}(\hat{\boldsymbol{\sigma}},\hat{\mathbf{E}})\leq 0\,. \tag{37}$$

Уравнения эволюции внутренних переменных для склерономного материала могут быть получены следствием *принципа максимума диссипации* при наличии ограничения (37) на основе поиска минимума лагранжиана:

[4] Nguyen Q.S. Stability and nonlinear solid mechanics. Paris: John Wiley, 2000. 398 p.

$$L(\hat{\boldsymbol{\sigma}},\hat{\mathbf{E}},\bar{\lambda}) = -\bar{\delta}(\hat{\boldsymbol{\sigma}},\hat{\mathbf{E}}) + \bar{\lambda}\bar{\Phi}(\hat{\boldsymbol{\sigma}},\hat{\mathbf{E}}), \tag{38}$$

где $\bar{\lambda} \geq 0$ - множитель Лагранжа. Условия экстремальности приводят к ассоциированному закону переключения для внутренних переменных:

$$\dot{\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}}^r = \bar{\lambda}\frac{\partial\bar{\Phi}}{\partial\hat{\boldsymbol{\sigma}}}, \qquad \dot{\bar{\mathbf{P}}}^r = \bar{\lambda}\frac{\partial\bar{\Phi}}{\partial\hat{\mathbf{E}}} \tag{39}$$

и условиям нагружения/разгрузки:

$$\bar{\lambda} \geq 0, \qquad \bar{\Phi} \leq 0, \qquad \bar{\lambda}\bar{\Phi} = 0. \tag{40}$$

В рамках общей формулировки определяющих уравнений сегнетоэлектроупругого материала, определяемых равенствами (35) и (39), конкретные варианты теории могут быть получены на основе конкретизации функций $\bar{\psi}\left(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}},\bar{\mathbf{D}},\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r,\bar{\mathbf{P}}^r\right)$ и $\bar{\Phi}(\hat{\boldsymbol{\sigma}},\hat{\mathbf{E}})$.

В данной работе используется следующая конкретизация выражения свободной энергии $\bar{\psi}$, допускающая разложение на обратимую (запасаемую в теле и вводимую для описания линейного пьезоэлектрического эффекта) энергию $\bar{\psi}^l\left(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^l,\bar{\mathbf{P}}^l\right) = \bar{\psi}^l\left(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}-\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r,\bar{\mathbf{P}}-\bar{\mathbf{P}}^r\right)$ и необратимую (связанную с изменением внутренних переменных и вводимую для описания эффектов насыщения и упрочнения) $\bar{\psi}^r\left(\bar{\mathbf{P}}^r,\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r\right) = \bar{\psi}^e\left(\bar{\mathbf{P}}^r,\bar{P}_{sat}(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r)\right) + \bar{\psi}^m\left(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r,\bar{\varepsilon}_{sat}(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r)\right)$:

$$\bar{\psi} = \bar{\psi}^l\left(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^l,\bar{\mathbf{P}}^l\right) + \bar{\psi}^e\left(\bar{\mathbf{P}}^r,\bar{P}_{sat}\right) + \bar{\psi}^m\left(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r,\bar{\varepsilon}_{sat}\right). \tag{41}$$

Обратимая составляющая свободной энергии представляет собой квадратичную форму относительно переменных $\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^l$ и $\bar{\mathbf{P}}^l$:

$$\bar{\rho}\bar{\psi}^l = \tfrac{1}{2}\left(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}-\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r\right)\cdot\cdot\,{}^4\bar{\mathbf{C}}^D\cdot\cdot\left(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}-\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r\right) - \left(\bar{\mathbf{D}}-\bar{\mathbf{P}}^r\right)\cdot{}^3\bar{\mathbf{h}}\cdot\cdot\left(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}-\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r\right) + \tfrac{1}{2}\left(\bar{\mathbf{D}}-\bar{\mathbf{P}}^r\right)\cdot\bar{\boldsymbol{\beta}}^{\varepsilon}\cdot\left(\bar{\mathbf{D}}-\bar{\mathbf{P}}^r\right). \tag{42}$$

В рамках модели *трансверсально-изотропного* материала с нормалью к плоскости изотропии $\bar{\mathfrak{p}} = \bar{\mathbf{P}}^r/|\bar{\mathbf{P}}^r|$ выражения для линейных модулей ${}^4\bar{\mathbf{C}}^D, {}^3\bar{\mathbf{h}}, \bar{\boldsymbol{\beta}}^{\varepsilon}$ определяются через ${}^4\bar{\mathbf{S}}^E, {}^3\bar{\mathbf{d}}, \bar{\boldsymbol{\kappa}}^{\sigma}$:

$$\begin{aligned}
{}^4\bar{\mathbf{S}}^E &= \bar{s}_1\mathbf{1}\otimes\mathbf{1} + \bar{s}_2\left(\mathbf{1}\underline{\otimes}\mathbf{1} + \mathbf{1}\underline{\otimes}\mathbf{1}\right) + \\
&+ \bar{s}_3\left(\mathbf{1}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}} + \bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\otimes\mathbf{1}\right) + \bar{s}_4\left(\mathbf{1}\underline{\otimes}\bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}} + \bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\underline{\otimes}\mathbf{1}\right) + \bar{s}_5\left(\bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\right), \\
{}^3\bar{\mathbf{d}} &= |\bar{\mathbf{P}}^r|/\bar{P}_{sat}\left[\bar{d}_{31}\left(\bar{\mathfrak{p}}\otimes\mathbf{1} - \bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\right) + \bar{d}_{33}\bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}} + \tfrac{1}{2}\bar{d}_{15}\left(\mathbf{1}\otimes\bar{\mathfrak{p}} + \mathbf{1}\otimes\bar{\mathfrak{p}} - 2\bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\right)\right], \\
\bar{\boldsymbol{\kappa}}^{\sigma} &= \bar{\kappa}_{11}\left(\mathbf{1} - \bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}\right) + \bar{\kappa}_{33}\bar{\mathfrak{p}}\otimes\bar{\mathfrak{p}}.
\end{aligned} \tag{43}$$

В выражении $(43)_2$ учитывается наблюдаемая в экспериментах линейная зависимость ${}^3\bar{\mathbf{d}}$ от поляризации $|\bar{\mathbf{P}}^r|$. Для задания ${}^4\bar{\mathbf{S}}^E$, ${}^3\bar{\mathbf{d}}$ и $\bar{\boldsymbol{\kappa}}^{\sigma}$ требуется знание 10 констант: $\bar{s}_1,\bar{s}_2,\bar{s}_3,\bar{s}_4,\bar{s}_5,\bar{d}_{31},\bar{d}_{33},\bar{d}_{15},\bar{\kappa}_{11},\bar{\kappa}_{33}$ и поляризации насыщения $\bar{P}_{sat}$ (46).

Следствием подстановки (42) в (34) приходим к определяющим уравнениям, аналогичным по структуре уравнениям на микроуровне (10):

$$\begin{cases}
\bar{\boldsymbol{\sigma}} = {}^4\bar{\mathbf{C}}^D\cdot\cdot\left(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}-\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r\right) - {}^3\bar{\mathbf{h}}^T\cdot\left(\bar{\mathbf{D}}-\bar{\mathbf{P}}^r\right), \\
\bar{\mathbf{E}} = -{}^3\bar{\mathbf{h}}\cdot\cdot\left(\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}-\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^r\right) + \bar{\boldsymbol{\beta}}^{\varepsilon}\cdot\left(\bar{\mathbf{D}}-\bar{\mathbf{P}}^r\right).
\end{cases} \tag{44}$$

Для функции $\bar{\psi}^e$, введенной в (41), предлагается следующее выражение, позволяющее описать эффект *насыщения* при стремлении $\bar{J}_1^r = |\bar{\mathbf{P}}^r|$ к $\bar{P}_{sat}$:

$$\overline{\rho}\overline{\psi}^e = \frac{H_0^e \overline{P}_{sat}^2(\overline{K}_1^r)}{m^e - 1}\left\{\frac{1}{m^e - 2}\left[\left(1 - \frac{\overline{J}_1^r}{\overline{P}_{sat}(\overline{K}_1^r)}\right)^{2-m^e} - 1\right] - \frac{\overline{J}_1^r}{\overline{P}_{sat}(\overline{K}_1^r)}\right\}, \quad (45)$$

где $H_0^e > 0, m^e \neq 1;2$ - константы материала, $\overline{J}_1^r = \sqrt{\overline{\mathbf{P}}^r \cdot \overline{\mathbf{P}}^r} = |\overline{\mathbf{P}}^r|$ и $\overline{K}_1^r = \overline{\mathfrak{p}} \cdot \overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r \cdot \overline{\mathfrak{p}} = \overline{\mathbf{P}}^r \cdot \overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r \cdot \overline{\mathbf{P}}^r / \overline{\mathbf{P}}^r \cdot \overline{\mathbf{P}}^r$ - инварианты. Для поляризации насыщения $\overline{P}_{sat}$ вводится линейная аппроксимация:

$$\overline{P}_{sat} = \frac{\overline{P}_{\max} - \overline{P}_{\min}}{\overline{\varepsilon}_t + \overline{\varepsilon}_c}\left(\overline{K}_1^r + \overline{\varepsilon}_c\right) + \overline{P}_{\min}. \quad (46)$$

В выражении (46) $\overline{P}_{\min} \approx 0{,}21\tilde{P}_0$ и $\overline{P}_{\max} \approx 0{,}83\tilde{P}_0$ - минимальная (при сжатии) и максимальная (при растяжении) поляризации насыщения поликристалла, $\overline{\varepsilon}_c \approx 0{,}40\tilde{\varepsilon}_0$ и $\overline{\varepsilon}_t \approx 0{,}55\tilde{\varepsilon}_0$ - остаточная деформации насыщения поликристалла при сжатии и растяжении, $\tilde{P}_0$ и $\tilde{\varepsilon}_0$ - поляризация и остаточная деформация насыщения домена.

Для функции $\overline{\psi}^m$ предлагается выражение, аналогичное (45):

$$\overline{\rho}\overline{\psi}^m = \frac{H_0^m \overline{\varepsilon}_{sat}^2(\overline{I}_3^r / \overline{I}_2^r)}{m^m - 1}\left\{\frac{1}{m^m - 2}\left[\left(1 - \frac{\overline{I}_2^r}{\overline{\varepsilon}_{sat}(\overline{I}_3^r / \overline{I}_2^r)}\right)^{2-m^m} - 1\right] - \frac{\overline{I}_2^r}{\varepsilon_{sat}(\overline{I}_3^r / \overline{I}_2^r)}\right\}, \quad (47)$$

где $H_0^m > 0, m^m \neq 1;2$ - константы материала, $\overline{I}_2^r = \left(\frac{2}{3}\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r \cdot\cdot\, \overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r\right)^{1/2}$, $\overline{I}_3^r = \left[\frac{4}{3}\det(\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r)\right]^{1/3}$ - инварианты. Для деформации насыщения вводится аппроксимация по 3м точкам:

$$\overline{\varepsilon}_{sat} = \frac{\overline{\varepsilon}_t - \overline{\varepsilon}_c}{2}\left(\overline{I}_3^r / \overline{I}_2^r\right)^3 + \left(\frac{\overline{\varepsilon}_t + \overline{\varepsilon}_c}{2} - \overline{\varepsilon}_s\right)\left(\overline{I}_3^r / \overline{I}_2^r\right)^2 + \overline{\varepsilon}_s, \quad (48)$$

здесь $\overline{\varepsilon}_c$, $\overline{\varepsilon}_t$ и $\overline{\varepsilon}_s$ - остаточные деформации насыщения поликристалла при сжатии, растяжении и сдвиге.

Структура уравнений (46) и (48) определена на основе многовариантных вычислительных экспериментов с использованием микроструктурной модели. Выражения для свободной энергии (45) и (47) позволяют описать эффект насыщения (вторые производные введенных функций, определяющие наклон диаграмм необратимого деформирования и поляризации, при стремлении $|\overline{\mathbf{P}}^r|$ к $\overline{P}_{sat}$ и $\overline{I}_2^r = \left(\frac{2}{3}\overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r \cdot\cdot\, \overline{\boldsymbol{\varepsilon}}^r\right)^{1/2}$ к $\overline{\varepsilon}_{sat}$ стремятся к бесконечности, блокируя дальнейший рост поляризации), подтверждаются прогнозами микроструктурной модели и хорошо описывают наблюдаемые в экспериментах одноосные гистерезисные кривые.

Функция переключения $\overline{\Phi}(\hat{\mathbf{s}}, \hat{\mathbf{E}})$ для *трансверсально-изотропного* материала с осью трансверсальной анизотропии $\overline{\mathfrak{p}}$ является функцией 10 инвариантов $\hat{\mathbf{s}}$, $\hat{\mathbf{E}}$ и $\overline{\mathfrak{p}}$. В случае использования аналога квадратичного критерия Мизеса и рассмотрения линейной комбинации введенных инвариантов приходим к соотношению:

$$\begin{aligned}\overline{\Phi}(\hat{\mathbf{s}}, \hat{\mathbf{E}}, \overline{\mathfrak{p}}) = {} & \frac{3\hat{\mathbf{s}} \cdot\cdot\, \hat{\mathbf{s}}}{2\overline{\sigma}_c^2} + \frac{\hat{\mathbf{E}} \cdot \hat{\mathbf{E}}}{\overline{E}_c^2} + \alpha\frac{\hat{\mathbf{E}} \cdot \overline{\mathfrak{p}}}{\overline{E}_c} + \beta\frac{\hat{\mathbf{E}} \cdot \hat{\mathbf{s}} \cdot \hat{\mathbf{E}}}{\overline{E}_c \overline{\sigma}_c \overline{E}_c} + \gamma\frac{\hat{\mathbf{E}} \cdot \hat{\mathbf{s}}^2 \cdot \hat{\mathbf{E}}}{\overline{E}_c \overline{\sigma}_c^2 \overline{E}_c} + \\ & + \delta\frac{\hat{\mathbf{E}} \cdot \hat{\mathbf{s}} \cdot \overline{\mathfrak{p}}}{\overline{E}_c \overline{\sigma}_c} + \varepsilon\frac{\hat{\mathbf{E}} \cdot \hat{\mathbf{s}}^2 \cdot \overline{\mathfrak{p}}}{\overline{E}_c \overline{\sigma}_c^2} + \varsigma\frac{\overline{\mathfrak{p}} \cdot \hat{\mathbf{s}} \cdot \overline{\mathfrak{p}}}{\overline{\sigma}_c} + \imath\frac{\overline{\mathfrak{p}} \cdot \hat{\mathbf{s}}^2 \cdot \overline{\mathfrak{p}}}{\overline{\sigma}_c^2} - 1,\end{aligned} \quad (49)$$

где $\alpha, \beta, \gamma, \delta, \varepsilon, \varsigma$ и $\imath$ - константы материала, на область допустимых значений которых накладывает ограничение условие выпуклости $\overline{\Phi}(\hat{\mathbf{s}}, \hat{\mathbf{E}})$, $\hat{\mathbf{s}} = \mathrm{dev}\hat{\boldsymbol{\sigma}}$. Близкий к (49) пятичленный критерий рассматривался в работе А.В. Белоконь и А.С. Скалиух[5].

[5] Белоконь А.В., Скалиух А.С. Математическое моделирование необратимых процессов поляризации. М.: Физматлит, 2010. 325 с.

Далее в данной работе используется простейший вариант (48), упрощенно учитывающий перекрестное влияние полей ($\alpha = \beta = \gamma = \varepsilon = \varsigma = \iota = 0$):

$$\bar{\Phi}(\hat{\mathbf{s}}, \hat{\mathbf{E}}, \bar{\mathbf{P}}^r) = \frac{3\hat{\mathbf{s}} \cdot\cdot \hat{\mathbf{s}}}{2\bar{\sigma}_c^2} + \frac{\hat{\mathbf{E}} \cdot \hat{\mathbf{E}}}{\bar{E}_c^2} + \delta \frac{\hat{\mathbf{E}} \cdot \hat{\mathbf{s}} \cdot \bar{\mathbf{P}}^r}{\bar{E}_c \bar{\sigma}_c \mid \bar{\mathbf{P}}^r \mid} - 1. \tag{50}$$

Несмотря на простоту, критерий переключения на макроуровне (50) находит хорошее подтверждение в вычислительных экспериментах с использованием микроструктурной модели при комбинированном электромеханическом нагружении. Близкий к (50) вариант предложен в работе C.M. Landis[3].

Учет дополнительных внутренних переменных $\bar{\mathbf{P}}^d$ и $\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^d$ позволяет описать влияние дефектов. В работе исследованы случаи получения результирующей структуры определяющих уравнений, аналогичной бездефектному материалу.

Третья глава посвящена разработке методов решения нелинейных связанных краевых задач сегнетоэлектроупругости.

Решение задач гомогенизации и расчет неоднородных полей в элементах конструкций с нетривиальной геометрией требует эффективных методов численного решения. Использование стандартной *скалярно-потенциальной* (СП) вариационной формулировки:

$$\int_V \left(\boldsymbol{\sigma} \cdot\cdot \delta\boldsymbol{\varepsilon} - \mathbf{D} \cdot \delta\mathbf{E} \right) dV = \int_V \mathbf{f}_V \cdot \delta\mathbf{u}\, dV + \int_S \left(\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\sigma} \cdot \delta\mathbf{u} + \mathbf{n} \cdot \mathbf{D} \delta\varphi \right) dS \tag{51}$$

при решении нелинейных краевых задач сегнетоэлектроупругости с характерными невыпуклыми диаграммами приводит к проблемам со сходимостью итерационных процедур метода Ньютона-Рафсона. В (51) вектор перемещения $\mathbf{u}$ и скалярный потенциал φ являются варьируемыми переменными, $\delta\boldsymbol{\varepsilon} = (\nabla \delta\mathbf{u})^S$ и $\delta\mathbf{E} = -\nabla\delta\varphi$.

Для устранения указанного недостатка предложена и верифицирована альтернативная *векторно-потенциальная* (ВП) вариационная формулировка [16]:

$$\int_V \left(\boldsymbol{\sigma} \cdot\cdot\, \delta\boldsymbol{\varepsilon} + \mathbf{E} \cdot \delta\mathbf{D} \right) dV = \int_V \mathbf{f}_V \cdot \delta\mathbf{u}\, dV + \int_S \left(\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\sigma} \cdot \delta\mathbf{u} + \mathbf{n} \times \mathbf{E} \cdot \delta\boldsymbol{\psi} \right) dS\,, \tag{52}$$

где вектор перемещения $\mathbf{u}$ и векторный потенциал $\boldsymbol{\psi}$ являются варьируемыми переменными, $\delta\boldsymbol{\varepsilon} = (\nabla \delta\mathbf{u})^S$ и $\delta\mathbf{D} = -\nabla \times \delta\boldsymbol{\psi}$. ВП формулировка соответствует принципу виртуальной электромеханической работы и приводит к *положительно-определенной* матрице жесткости. Решение ВП краевой задачи соответствует *минимуму* в пространстве узловых степеней свободы $\mathbf{u}$ и $\boldsymbol{\psi}$, в то время как СП решение находится в *седловой* точке в пространстве узловых степеней свободы $\mathbf{u}$ и φ. СП формулировка (51) основана на вариации смешанного термодинамического потенциала - *энергии* в механическом смысле, но *энтальпии* в электрическом. Поэтому в контексте метода КЭ использование скалярного потенциала приводит к *знаконеопределенной* матрице жесткости.

Для обеспечения единственности векторного потенциала, наряду с калибровкой в объеме, предложены и апробированы специальные виды граничных условий для односвязных и многосвязных областей.

В целях повышения точности интегрирования определяющих уравнений сегнетоэлектроупругости, представляющих собой систему нелинейных жестких дифференциально-алгебраических уравнений, предложен *метод возвратного отображения* [14] (метод расщепления оператора на электроупругий предиктор и сегнетоэлектроупругий корректор).

Использование *согласованных касательных модулей* существенно для обеспечения квадратичной скорости асимптотической сходимости глобальной ите-

рационной процедуры Ньютона-Рафсона. В работе найден согласованный касательный оператор [14] на основе линеаризации дискретной задачи, соответствующей методу возвратного отображения.

Условия выпуклости свободной энергии и поверхности нагружения являются необходимыми для обеспечения положительной определенности континуальной и согласованной касательных матриц жесткости (устойчивости поведения материала), численной устойчивости итерационных процедур и единственности решения для сегнетоэлектроупругого корректора.

Верификация предложенных вариационных формулировок, способов задания граничных условий, методов решения нелинейных задач, произведенная на основе сравнения полученных результатов с предложенными в работе аналитическими решениями, результатами экспериментов и альтернативными численными подходами, показала работоспособность используемых подходов для широкого класса задач различной размерности, топологии и условий нагружения. Исследована скорость сходимости численного решения, диапазоны допустимых значений штрафных параметров.

На Рис. 2 показано сравнение конечно-элементного (КЭ) решения с аналитическим в задаче о радиальной поляризации полого цилиндра, соответствующее трем различным уровням нагружения (приводящим к состояниям с радиусами зоны переключения ¼, ½ и ¾ толщины цилиндра). Наблюдается хорошее соответствие численных решений с аналитическими прогнозами.

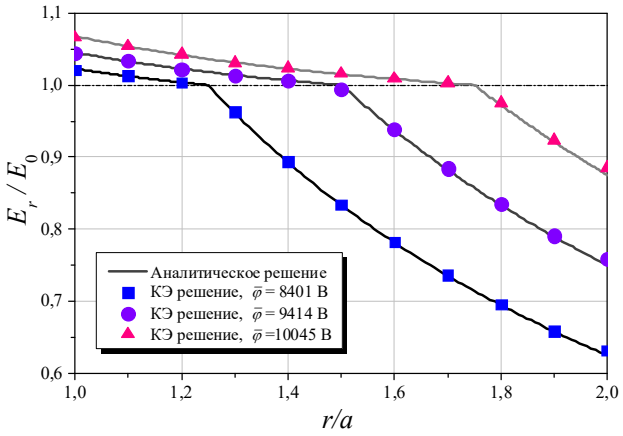


Рис. 2. Сравнение результатов КЭ расчетов с аналитическими решениями в задаче о радиальной поляризации полого цилиндра

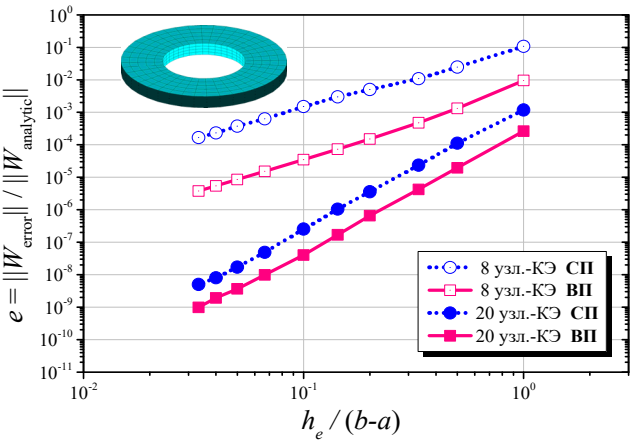
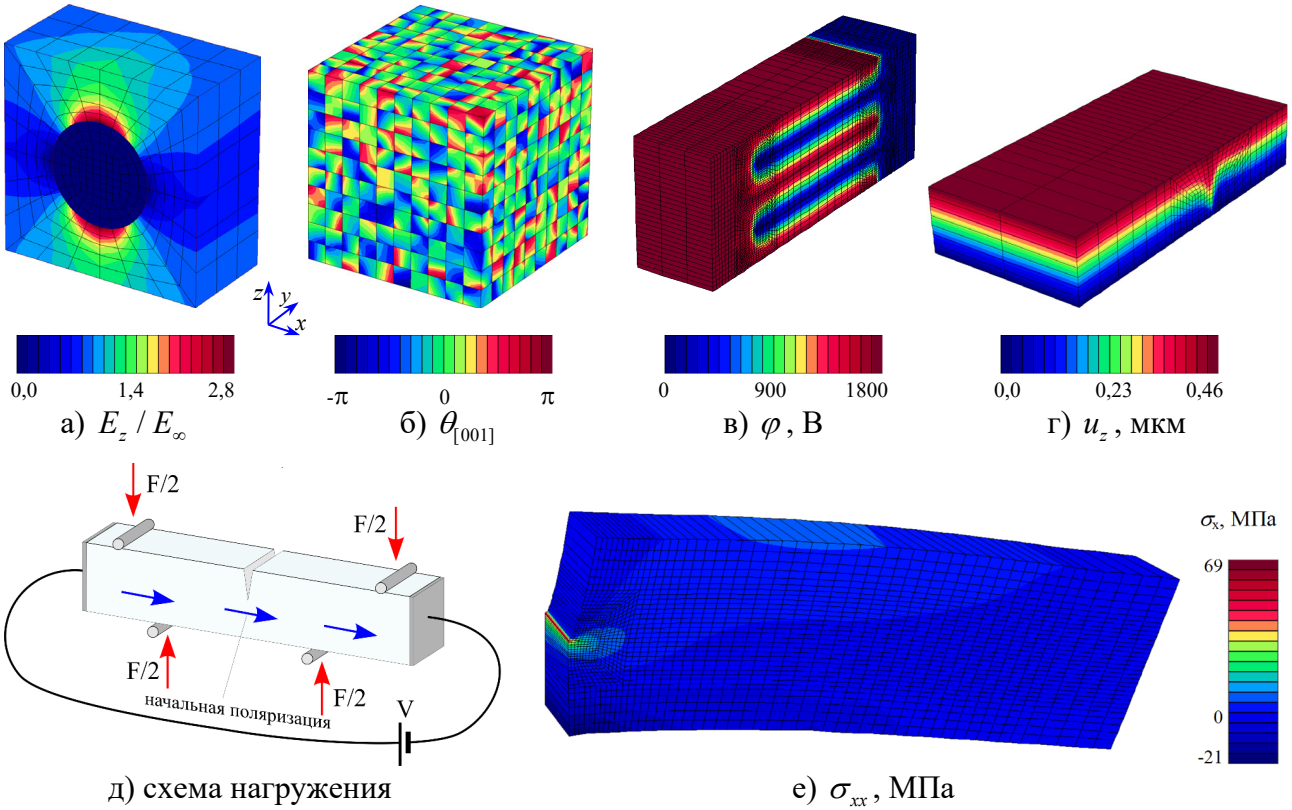


Рис. 3. Зависимость погрешности решения от размера КЭ сетки в задаче о радиальной поляризации полого цилиндра

На Рис. 3 показана зависимость погрешности КЭ решения от отношения размера конечного элемента h_e в радиальном направлении к толщине цилиндра b-a для ВП и СП формулировок. Рассматриваются как линейные (8-узловые), так и квадратичные (20-узловые) КЭ. Для определения характеристик скорости сходимости КЭ решения при измельчении сетки используется энергетическая норма.

Результаты КЭ расчетов и систематического сравнительного анализа точности решений для различных классов задач (пьезоэлектрическая пластина при комбинированном электромеханическом нагружении [9], радиальная поляризация полого цилиндра (Рис. 2 и 3), параллелепипед с цилиндрическим включением, параллелепипед с периодическими сферическими включениями (Рис. 4а), поляризация пьезоэлектрической пластины с отверстием [11], представительный объем поликристаллического агрегата (Рис. 4б), четырехточечный изгиб образца

с краевой трещиной (Рис. 4д, е) [27], многослойный актуатор (Рис. 4в, г)) продемонстрировали эффективность предложенных методов решения.



а) E_z / E_∞ б) $\theta_{[001]}$ в) φ, В г) u_z, мкм

д) схема нагружения е) σ_{xx}, МПа

Рис. 4. Примеры решенных задач: а) Ячейка периодичности со сферическим включением [электрическое поле в вертикальном направлении E_z]; б) Представительный объем поликристалла, содержащий 8 000 кристаллитов [угловые отклонения осей [001] кристаллов от вертикали]; Многослойный актуатор [распределение полей в) электрического потенциала φ, г) вертикальных перемещений u_z]; Образец с трещиной при четырехточечном изгибе [д) схема нагружения, е) распределение полей горизонтальных напряжений σ_{xx}]

Четвертая глава посвящена *верификации* микроструктурных и феноменологических моделей сегнетоэлектроупругого материала.

Для адекватного описания поведения поликристаллической сегнетопьезокерамики с использованием *микроструктурной* модели необходимо использование метода КЭ *гомогенизации*, учитывающего взаимное влияние кристаллитов в поликристалле. В работе на основе многовариантных вычислительных экспериментов предложена оптимальная стратегия выполнения расчетов и даны рекомендации по численной интерпретации кристаллита, выбору числа кристаллитов и конечных элементов, выбору модели материала.

При использовании *однофазной* (тетрагональной) *микроструктурной* модели с *идентификацией* ее параметров на основе данных опытов на *макроуровне* удается получить *хорошее* соответствие результатов расчета поведения поликристалла с данными опытов[6] для поликристаллических сегнетопьезокерамик PIC 151, PZT-5H, PLZT 8/65/35, PZT-51, PZT-4D и $BaTiO_3$ (Рис. 5). Однако при *идентификации* параметров однофазной тетрагональной микроструктурной модели на основе данных на *микроуровне* (для кристаллической решетки)

[6] Zhou D. Experimental investigation of non-linear constitutive behavior of PZT piezoceramics. Karlsruhe. 2003. 156 p.

наблюдаются значительные отличия от результатов экспериментов для поликристаллической пьезокерамики. Наибольшие отличия выявлены в прогнозировании электромеханического гистерезиса.

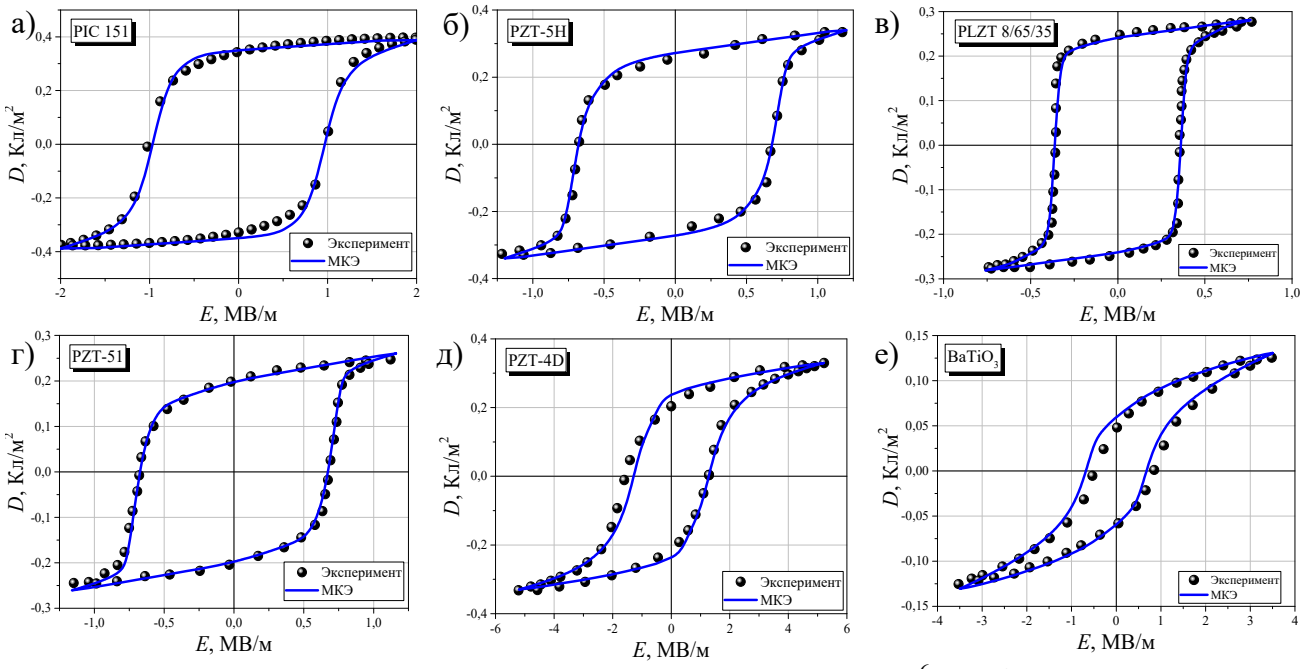


Рис. 5. Сравнение результатов расчетов с экспериментами[6] для 6 материалов:
а) PZT PIC 151, б) PZT-5H, в) PLZT 8/65/35, г) PZT-51, д) PZT-4D и е) $BaTiO_3$

При использовании *двухфазной микроструктурной* модели (тетрагональной/ромбоэдрической смеси) с *идентификацией* ее параметров на *микроуровне* удается получить *хорошее* соответствие результатов расчета поведения поликристалла с данными опытов для поликристаллических сегнетопьезокерамик. Удается получить качественное и количественное соответствие для диэлектрического, электромеханического (Рис. 6а) и механического (Рис. 6б) гистерезисов, эффекта памяти формы, кривых деполяризации (Рис. 8а) и реполяризации, эффекта наложения постоянного механического напряжения на циклическое электрическое поле (Рис. 7) и наоборот (Рис. 8), а также кривых переполяризации при *непропорциональном* электрическом воздействии.

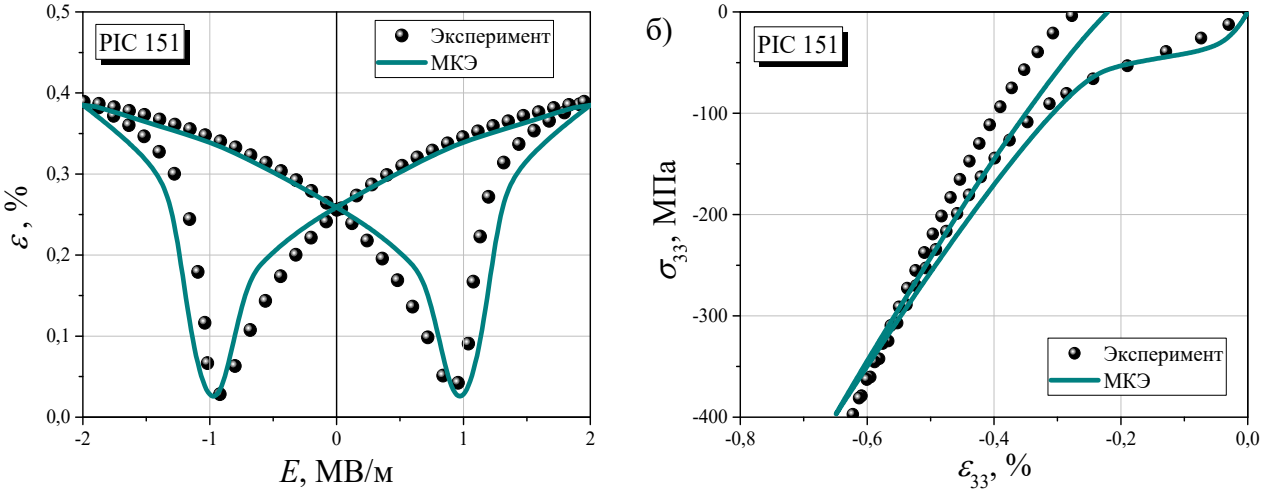


Рис. 6. Сравнение результатов КЭ расчетов (двухфазная модель T/P смеси) с экспериментами[6] для PZT PIC 151 керамики: а) электромеханический гистерезис, б) кривая сжатия

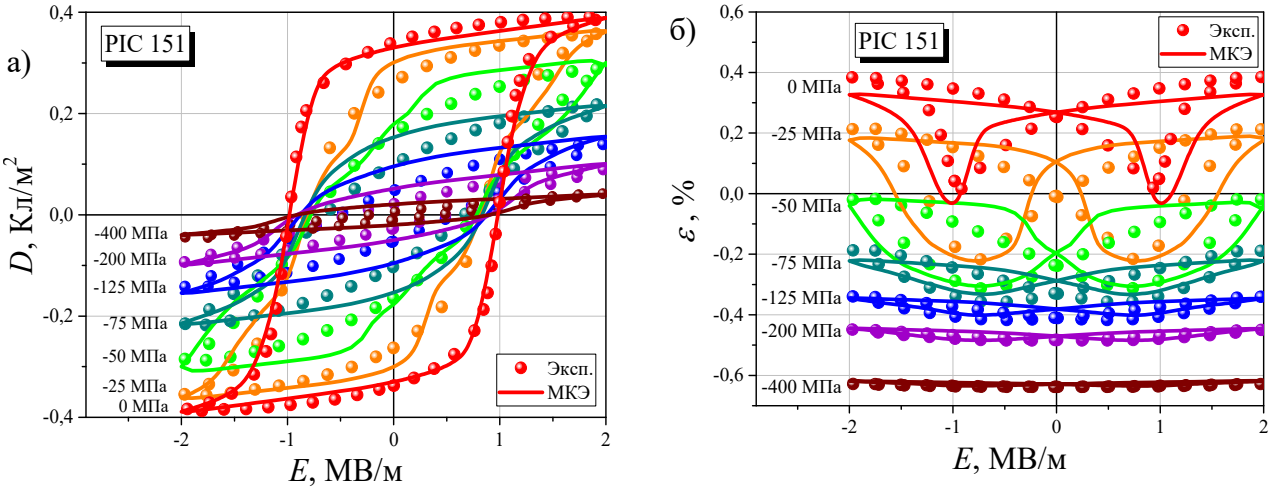


Рис. 7. Влияние сжимающих напряжений на кривые а) диэлектрического гистерезиса, б) электромеханического гистерезиса. Сравнение результатов КЭ расчетов (двухфазная модель T/P смеси) с экспериментами[6] для PZT PIC 151

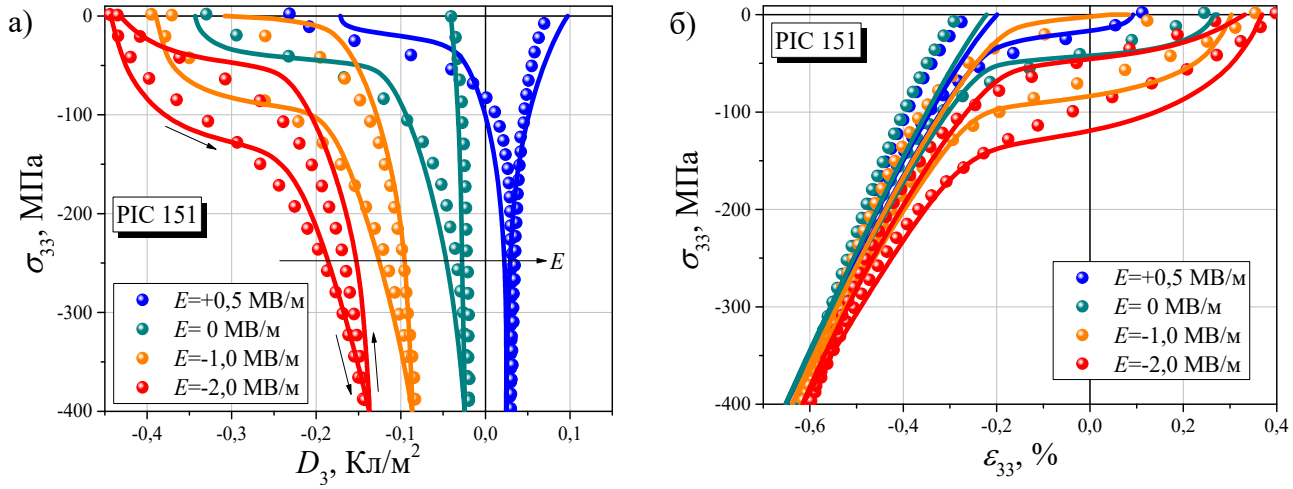


Рис. 8. Влияние электрического поля на кривые а) деполяризации, б) сжатия. Сравнение результатов КЭ расчетов (двухфазная модель T/P смеси) с экспериментами[6] для PZT PIC 151

Результаты моделирования нелинейного поведения сегнетоэлектроупругих материалов при *непропорциональном* нагружении представлены на Рис. 9. Рассматривается двухлучевое (трехзвенное) электрическое нагружение: нагрузка до 2 МВ/м, разгрузка до 0 и последующее нагружение в направлении, не совпадающем с первоначальным.

В опытах на *непропорциональное* нагружение рассматривались 5 различных путей нагружения с углами отклонения от первоначального направления на траектории нагружения: 0°, 45°, 90°, 135°, 180° (см. вставку на Рис. 9). При проведении экспериментов[7] подобные схемы нагружения были реализованы в два этапа. После первичной поляризации из пластины под различными углами к направлению первоначальной поляризации вырезались образцы меньшего размера, которые подвергались последующему осевому электрическому нагружению вплоть до уровня начальной поляризации.

[7] Zhou D., Kamlah M. Experimental studies on the non-linear ferroelectric and ferroelastic properties of piezoceramics // AIP Proc., 2008. Vol. 1029, No. 1. P. 199–208.

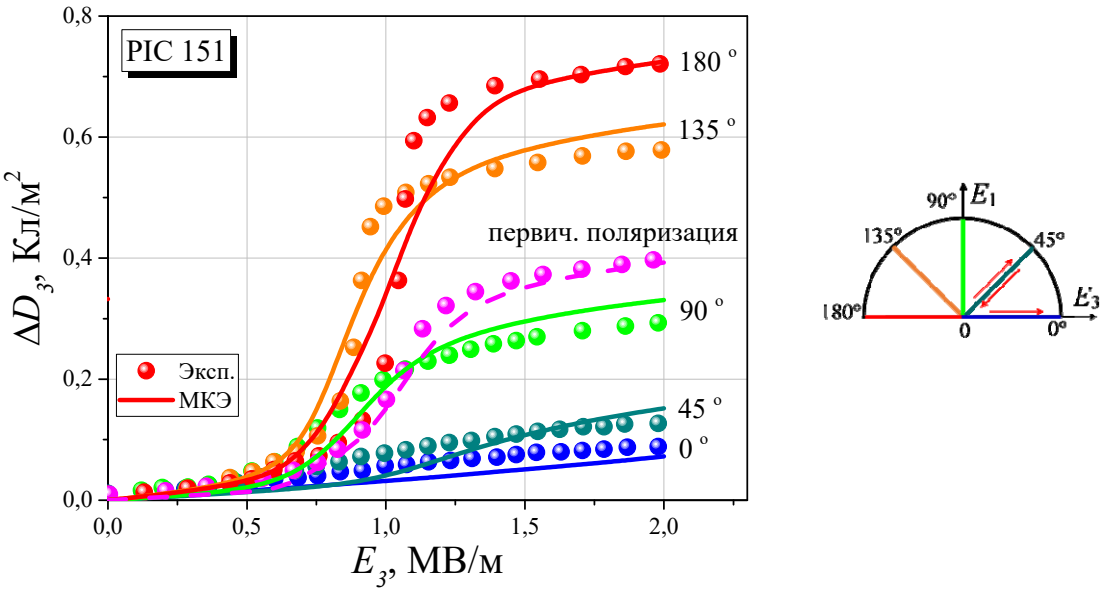


Рис. 9. Сравнение результатов КЭ расчетов (двухфазная модель Т/Р смеси) с экспериментами[7] для PZT PIC 151 керамики при непропорциональном двухлучевом нагружении

При значительных углах отклонения пути вторичного нагружения ($\geq 90^\circ$) наблюдается стремительный рост изменения поляризации (Рис. 9). Объяснением этому служит то, что в этом случае при углах отклонения $\geq 90^\circ$ происходит активное нагружение, так как путь нагружения на третьем этапе целиком лежит вне поверхности переключения, сформированной в конце второго этапа. При 180° изменение электрического смещения близко к удвоенному значению начальной поляризации. Отличие составляет 15%. Расчеты для пропорционального нагружения с 180° отклонением также показали, что для сегнетоэлектроупругих материалов принцип Мазинга (подобия кривых первоначального нагружения и разгрузки) не выполняется.

Все наблюдаемые в экспериментах эффекты непропорционального нагружения удается качественно и количественно повторить при КЭ моделировании с использованием двухфазной микроструктурной модели. Расчетные кривые переполяризации (см. Рис. 9, где показано изменение поляризации на последнем этапе нагружения) демонстрируют хорошее совпадение с результатами эксперимента[7] при всех рассмотренных углах отклонения на траектории непропорционального нагружения. На основе результатов систематического *параметрического анализа* микроструктурной модели предложены оптимальные алгоритмы *идентификации* констант материала.

При использовании *феноменологической* модели удается получить *хорошее* соответствие результатов расчета с данными опытов для поликристаллической сегнетопьезокерамики при пропорциональном нагружении. При комбинированном и непропорциональном нагружении точность прогнозов феноменологической модели ниже в сравнении с результатами микромеханической модели.

Идентификация констант материала феноменологической модели и вида функциональной зависимости потенциалов (свободной энергии и функции переключений) может осуществляться как на основе данных макроопыта, так и на основе результатов вычислительных экспериментов с использованием микроструктурной модели на основе гомогенизации при различных видах нагружения.

Пятая глава посвящена описанию поведения сегнетоэлектроупругих материалов вблизи *морфотропной фазовой границы*.

Современная сегнетопьезокерамика на основе ЦТС (бинарный твердый раствор цирконата-титаната свинца (1-x) $PbZrO_3$ — x $PbTiO_3$ ($0 \le x \le 1$)) производится с составом, соответствующим морфотропной фазовой границе (МФГ), когда одновременно соприсутствуют две фазы: тетрагональная ($PbTiO_3$) и ромбоэдрическая ($PbZrO_3$). При комнатной температуре МФГ соответствует $x \approx 47 \div 48\%$. Прогресс в развитии сегнетопьезокерамических материалов был связан с открытием экстремальных значений диэлектрической проницаемости, пьезоэлектрических коэффициентов, упругой податливости, остаточной деформации и поляризации пьезокерамики ЦТС вблизи МФГ.

Учет обеих фаз при формулировке микроструктурных моделей необходим для адекватного описания поведения ЦТС сегнетопьезокерамики вблизи МФГ. Однако в подавляющем большинстве предложенных микромеханических моделей учитывается только тетрагональная фаза. В данном исследовании на основе результатов вычислительных экспериментов с использованием микромеханической модели с учетом смеси различных фаз анализируется возможность описания появления максимума концентрационных зависимостей.

В разделе 5.1.1.4 на основе простейших аналитических оценок показано, что для двухфазной T/P смеси монокристалла минимальные среди всевозможных направлений остаточная деформация $\varepsilon^r_{\min}$ и поляризация $P^r_{\min}$ демонстрируют наличие максимума внутри диапазона изменения объемной доли тетрагональной фазы c_T при значении близком к $c_T = 0,4$. КЭ гомогенизация позволяет произвести проверку указанной возможности на основе модели многофазного поликристаллического агрегата, учитывающей взаимное влияние кристаллитов, а также поиск оптимального состава смеси, обеспечивающего максимум остаточной деформации и поляризации.

На Рис. 10 показаны полученные в расчетах зависимости осевой остаточной деформации $\overline{\varepsilon}^r_z$ и поляризации $\overline{P}^r_z$ от объемной доли тетрагональной фазы в T/P смеси при электрическом воздействии 3 МВ/м и последующей разгрузке до 0. Спонтанные деформации тетрагональной и ромбоэдрических фаз принимались равными $\varepsilon^T_0 = 1,91\%$ и $\varepsilon^R_0 = 0,55\%$, что соответствует реальным значениям сегнетопьезокерамики PZT PIC151. Остаточная деформация и поляризация поликристалла демонстрирует наличие максимумов при $c_T = 0,17$.

Следует отметить, что уровень остаточных деформаций для T/P смеси с $c_T = 0,17$ в 38 раз выше уровня остаточных деформаций тетрагональной фазы с $c_T = 1$.

На Рис. 10 также показаны кривые для случая $\varepsilon^T_0 = \varepsilon^R_0 = 0,5\%$, приводящего к смещению максимумов направо в область значений $c_T = 0,45$, уменьшению максимальной остаточной деформации поликристалла и увеличению поляризации, что указывает на чувствительность экстремальных параметров к характеристикам фаз.

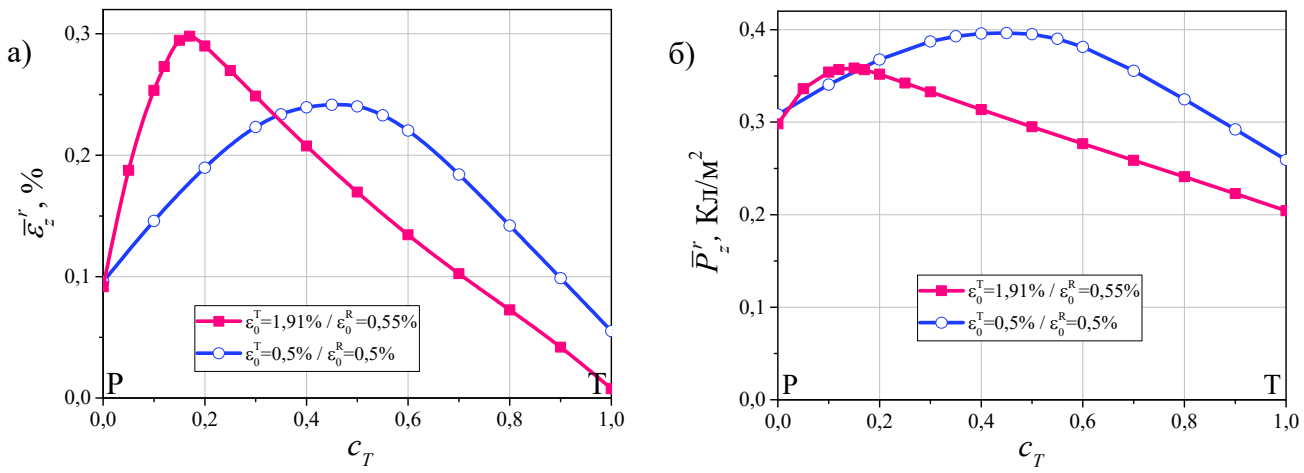


Рис. 10. Зависимости осевых компонент: а) остаточной деформации поликристалла $\bar{\varepsilon}_z^r$ и б) остаточной поляризации $\bar{P}_z^r$ от объемной доли тетрагональной фазы c_T в T/P смеси

Использование микроструктурной модели T/P смеси ($c_\text{T} = 0{,}17$) с реальными константами материала ($\varepsilon_0^T = 1{,}91\%$, $\varepsilon_0^R = 0{,}55\%$, $P_0^T = 0{,}5$ Кл / м^2, $P_0^R = 0{,}5$ Кл / м^2), определенными на основе данных измерения параметров кристаллической решетки для PZT PIC151, позволяет получить хорошее совпадение с данными экспериментов[6] (см. Рис. 11). Применение однофазных моделей с реальными константами при учете только тетрагональной ($c_\text{T} = 1$) или только ромбоэдрической ($c_\text{T} = 0$) фазы приводит к заниженным уровням остаточных деформаций.

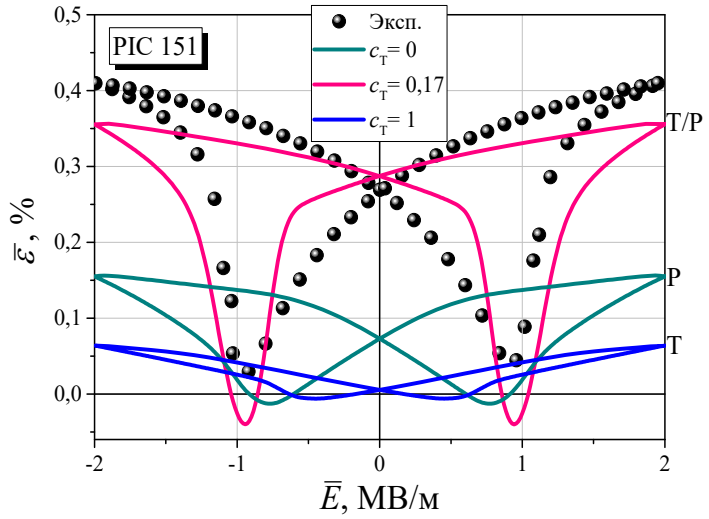


Рис. 11. Сравнение результатов КЭ расчетов электромеханического гистерезиса (двухфазная модель T/P смеси, однофазные T и P модели) с экспериментом[6] для PZT PIC 151

Результаты вычислительных экспериментов с использованием микроструктурной модели позволяют установить экстремальные свойства *трехфазных* T/P/O композиций различного фазового состава. Влияние фазового состава на остаточную деформацию и поляризацию для *тернарной* T/P/O-смеси со спонтанными характеристиками $\varepsilon_0^T = 1{,}91\%$, $\varepsilon_0^R = 0{,}55\%$, $\varepsilon_0^O = 2\%$, $P_0^T = P_0^R = P_0^O = 0{,}5$ Кл/м^2 и с $G_c^T = 0{,}5$ МДж/м^3, $G_c^P = 0{,}41$ МДж/м^3, $G_c^O = 0{,}35$ МДж/м^3 показано на Рис. 12. Фазовые распределения полей остаточной деформации и поляризации имеют близкий характер. Максимальные значения остаточной деформации наблюдаются на P/O-границе, а поляризации - на T/P-границе рассматриваемой области. В окрестно-

сти Т и Р фаз наблюдается снижение остаточных характеристик поликристалла. Следует отметить, что характер представленных на Рис. 12 распределений и местоположения максимумов и минимумов чувствительны к соотношению параметров $\varepsilon_0^T, \varepsilon_0^R, \varepsilon_0^O, P_0^T, P_0^R, P_0^O$. Предложенный подход, основанный на многовариантных вычислительных экспериментах с варьированием соотношений фаз, может быть использован при поиске оптимального фазового состава в целях обеспечения наивысших показателей материала.

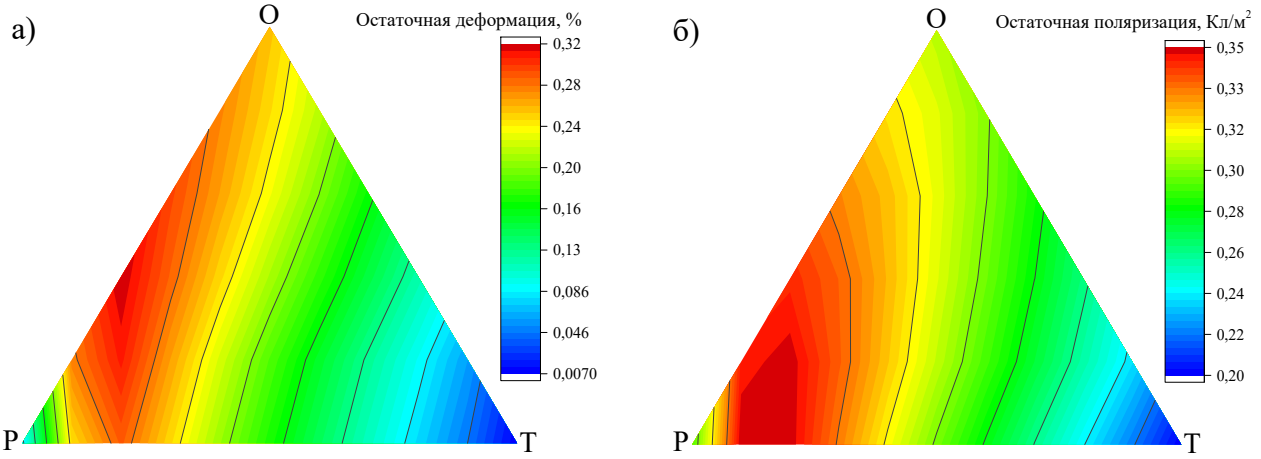


Рис. 12. Влияние фазового состава тернарной Т/Р/О-смеси на: а) остаточную деформацию поликристалла $\overline{\varepsilon}_z^r$ и б) остаточную поляризацию поликристалла $\overline{P}_z^r$

Для построения распределений остаточной деформации и поляризации в пределах фазового треугольника (Рис. 12) были решены 36 краевых задач с различным соотношением фаз. Объемные доли c_T и c_R варьировались с шагом 0,1, а представляющая ординату на Рис. 12 c_O варьировалась с шагом 0,2.

Основными причинами появления концентрационного максимума остаточной деформации и поляризации поликристалла в смесях (Т/Р, Т/О, Р/О, Т/Р/О) являются особенности анизотропии деформационных свойств монокристалла:

- увеличение числа направлений в смеси, для которых в монокристалле достигается максимальная остаточная деформация и поляризация, приводящее к более точному выстраиванию направлений поляризации кристаллитов в поликристалле в соответствии с направлением внешнего воздействия;
- отсутствие направлений в смеси с нулевыми остаточными деформациями в монокристалле приводит к снижению микронапряжений в поликристалле, уменьшению взаимного влияния кристаллитов, что приводит к незначительному изменению остаточной деформации и поляризации при разгрузке.

У тетрагонального и ромбоэдрического монокристаллов существуют необратимо недеформируемые (*запирающие) направления* (8 направлений $\langle 111 \rangle$ у тетрагонального (Рис. 13г) и 6 направлений $\langle 001 \rangle$ у ромбоэдрического (Рис. 13з)), вдоль которых максимальные значения остаточных деформаций равны нулю. У орторомбического монокристалла подобные направления отсутствуют (Рис. 13м). В Т/Р смеси запирающие направления Т и Р фаз взаимно компенсируются направлениями максимальной остаточной деформации (ср. Рис. 13г с 13ж, Рис. 13з с 13в). В Т/Р смеси реализуются 24 направления максимальной остаточной деформации, в то время как в Т-кристалле их всего 6 (Рис. 13а), а в Р-кристалле – 8 (Рис. 13д).

Взаимное влияние кристаллитов в поликристалле при наличии в первых запирающих направлений приводит к значительному *снижению* уровня остаточной деформации поликристалла $\bar{\varepsilon}^r$ в сравнении с остаточной деформацией монокристалла и со спонтанной деформацией ε_0. Для Т- и Р-поликристаллов установленное снижение $\bar{\varepsilon}^r$ прогрессирует с ростом ε_0 (Рис. 14а).

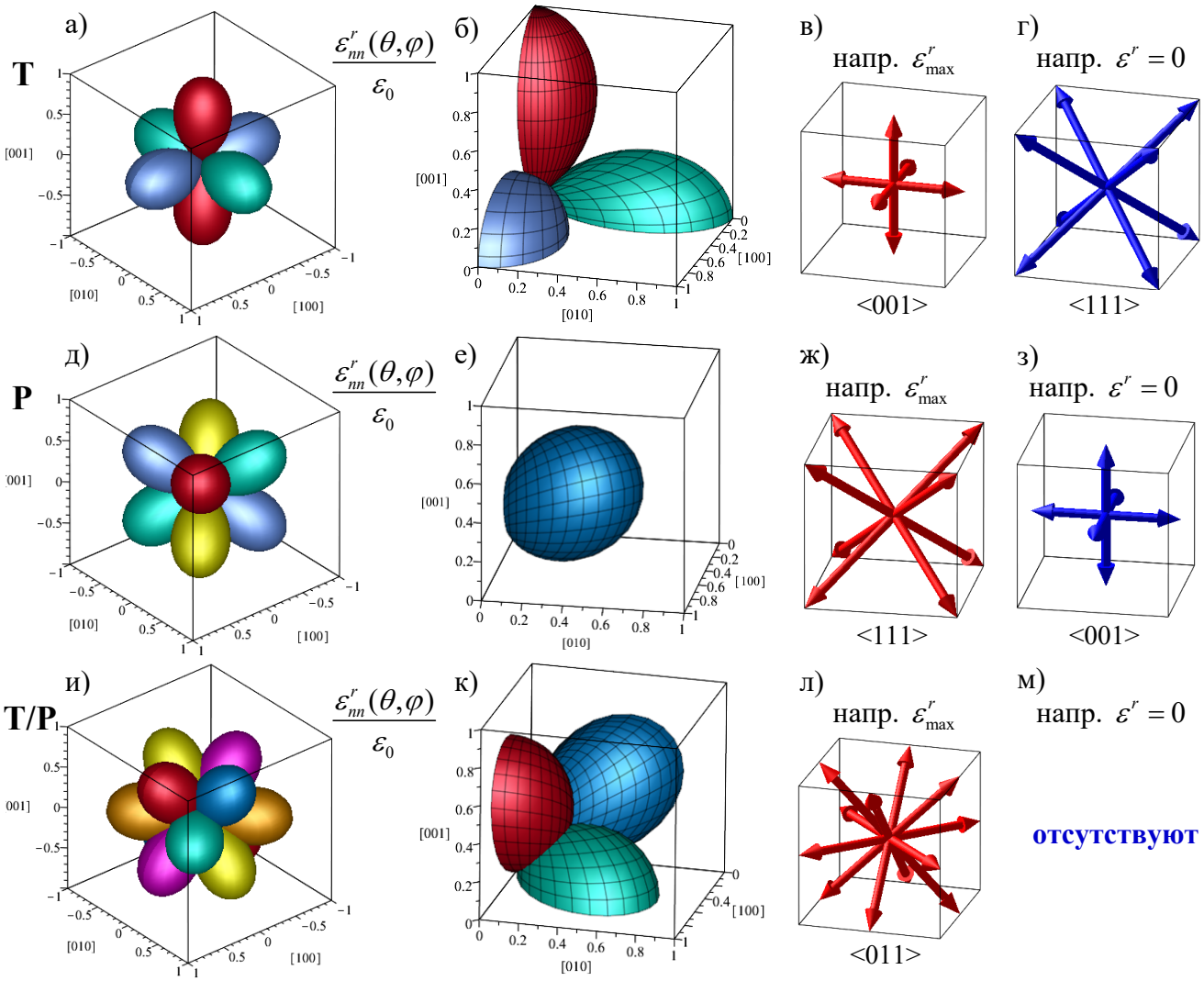


Рис. 13. Ориентационные зависимости максимально возможной остаточной деформации для а)-г) *тетрагонального*, д)-ж) *ромбоэдрического*, и)-м) *орторомбического* монокристаллов; а, д, и) во всей области направлений; б, е, к) в пределах I квадранта; в, ж, л) направления максимальной остаточной деформации; в, ж, л) недеформируемые направления

Результаты КЭ моделирования нелинейного поведения представительного элемента поликристаллического агрегата сегнетоэлектроупругого материала позволили установить наличие *максимума* в зависимости остаточной деформации тетрагонального и ромбоэдрического поликристалла $\bar{\varepsilon}^r$ от спонтанной деформации кристаллита ε_0 (Рис. 14а). Правее максимума наблюдается зависимость $\bar{\varepsilon}^r \sim 1/\varepsilon_0$, обусловленная взаимным влиянием кристаллитов, прогнозируемая также на основе предложенной в разделе 5.1.2 простейшей реологической модели, состоящей из двух параллельно соединенных кристаллов различной ориентации.

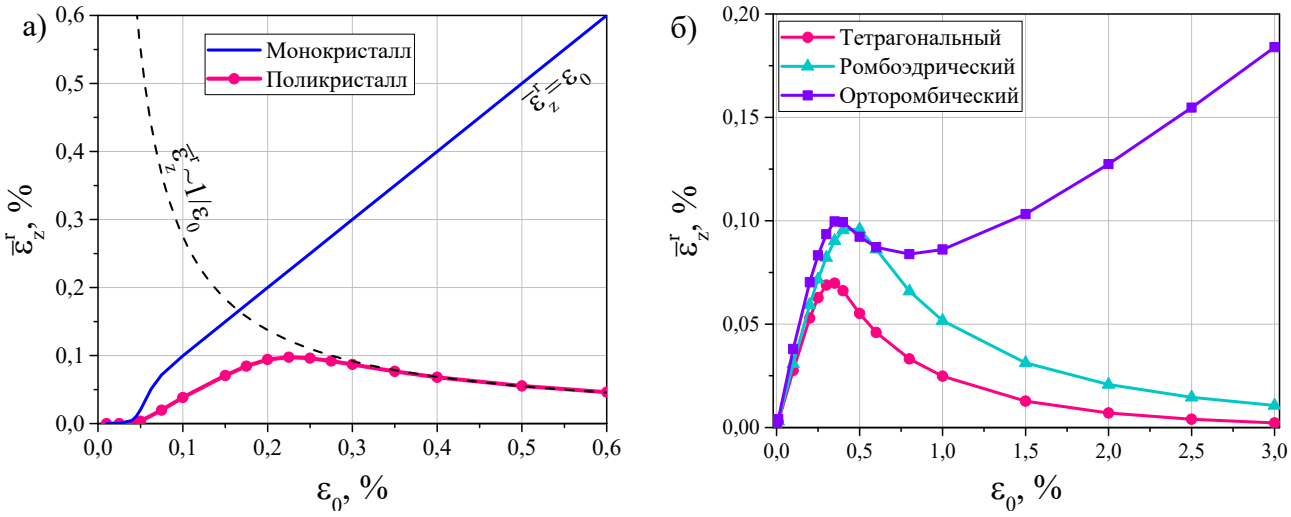


Рис. 14. Сравнение зависимостей осевой остаточной деформации поликристалла $\bar{\varepsilon}_z^r$ от спонтанной деформации кристаллита ε_0 для а) тетрагональных монокристалла и поликристалла (механическое нагружение), б) тетрагонального, ромбоэдрического и орторомбического поликристаллов (электрическое воздействие)

Сравнение поведения тетрагонального, ромбоэдрического и орторомбического поликристаллов выявило принципиальное отличие поведения первых двух типов от последнего при больши́х значениях ε_0, заключающееся в *уменьшении* остаточных деформаций с ростом ε_0, в то время как для орторомбического поликристалла наблюдается *увеличение* $\bar{\varepsilon}_z^r$ с ростом ε_0 (Рис. 14б). Объяснением этому служит отсутствие у орторомбического кристалла направлений с нулевым значением остаточных деформаций (см. Рис. 13и-м).

Для тетрагонального и ромбоэдрического поликристалла зависимость $\bar{\varepsilon}^r \sim 1/\varepsilon_0$ наблюдается как при электрическом, так и при механическом нагружении. Она является следствием взаимного влияния кристаллитов и возникновения в поликристалле микронапряжений вследствие наличия у кристаллитов запирающих (необратимо недеформируемых) направлений. При разгрузке микронапряжения способствуют более раннему началу накопления остаточных деформаций противоположного знака, которое в результате при разгрузке до 0 приводит к меньшему уровню результирующих остаточных деформаций (Рис. 14а). Наличие микронапряжений проявляется на макроуровне в виде эффекта Баушингера с пределом переключений, убывающим с ростом ε_0.

Шестая глава посвящена описанию поведения сегнетоэлектроупругих материалов при учете наличия *дефектов*.

Точечные дефекты (акцепторные или донорные легирующие примеси, подвижные вакансии) кристаллической решетки сегнетоэлектроупругих материалов определяют процессы формирования и движения доменных границ, кинетику доменной структуры, процессы необратимого деформирования и поляризации, размеры и форму гистерезисных кривых, время переключения, диэлектрические и пьезоэлектрические свойства и их деградацию.

Появление одинаково ориентированных полярных дефектов в моно- и поликристаллах приводит к *смещению петель гистерезиса*. Для упорядоченных в пределах доменов противоположно направленных (антипараллельных) полярных дефектов может наблюдаться *срез петли (двойная петля) гистерезиса*. Сравнение

результатов расчета *смещения* петель диэлектрического и электромеханического гистерезисов с использованием предложенной микроструктурной модели материала с учетом (неизменяющихся или эволюционирующих) полярных точечных дефектов с данными экспериментальных исследований для различных материалов: $BaTiO_3$, PMS–PZT, PMN-PZT, KTS и PZT PIC151 показало *хорошее* соответствие (Рис. 15). В рассмотрении участвовали поли- и монокристаллические материалы с тетрагональной, ромбоэдрической и орторомбической структурой.

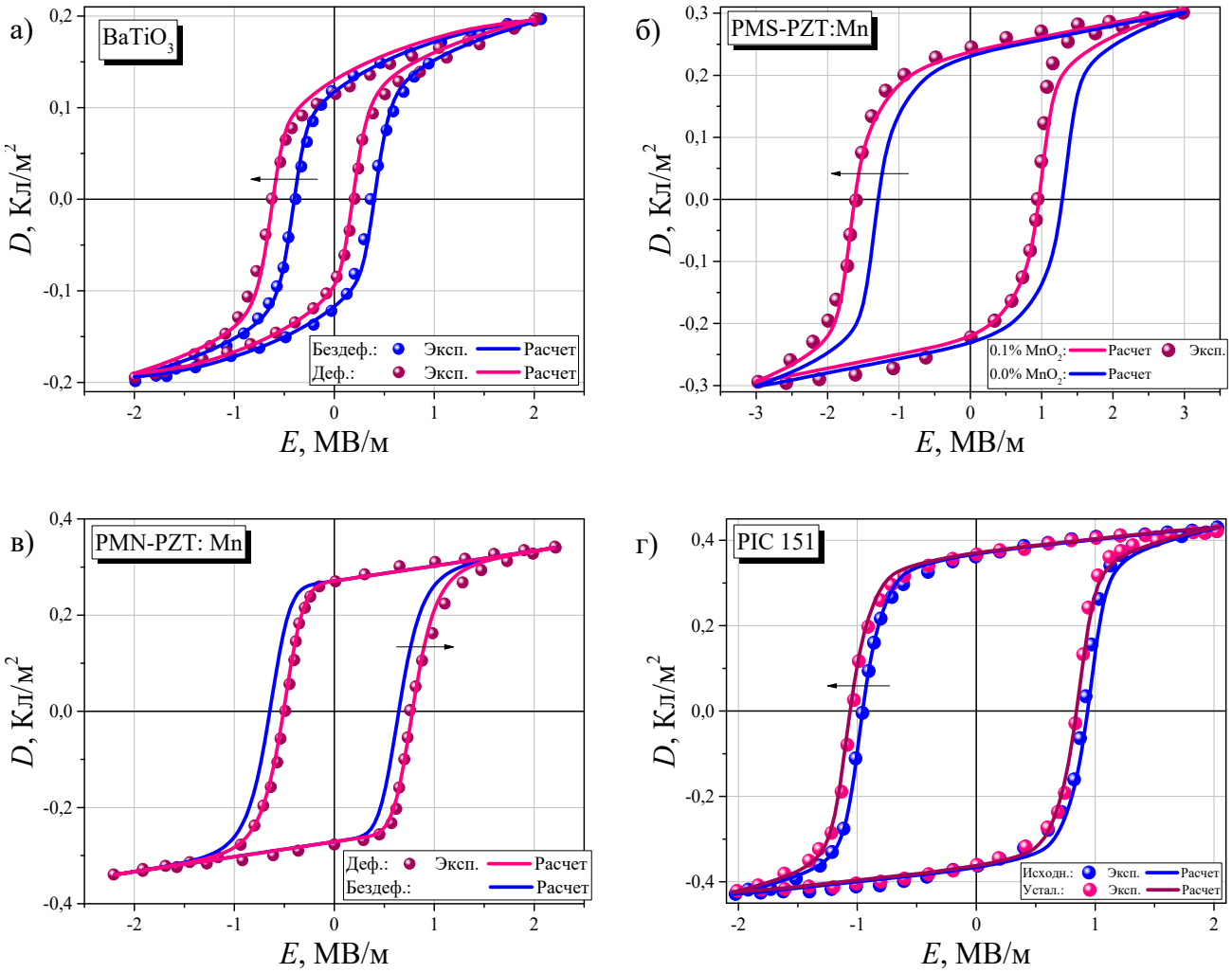


Рис. 15. Сравнение результатов КЭ расчетов на основе модели материала с учетом полярных дефектов с экспериментами для: а) $BaTiO_3$, б) PMS–PZT, в) PMN-PZT и г) PZT PIC151

Сравнение результатов расчета искажения электромеханического гистерезиса вследствие усталости (Рис. 16), *среза петель (двойных петель)* диэлектрического и механического гистерезисов с использованием предложенной микроструктурной модели материала с учетом изменяющихся дефектов с данными экспериментальных исследований для различных материалов показало *хорошее* соответствие.

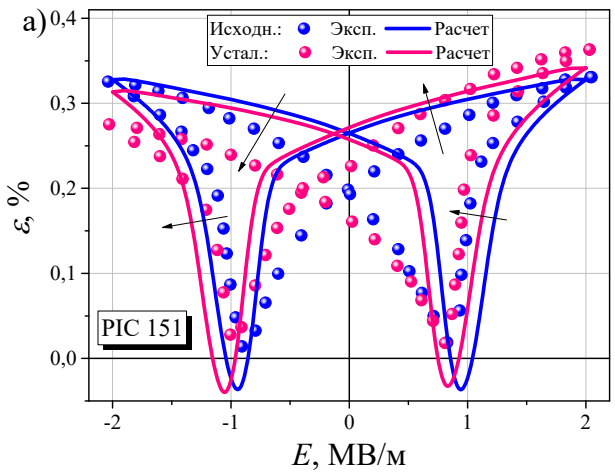


Рис. 15. Сравнение результатов КЭ расчетов электромеханического гистерезиса после усталости с экспериментом для PZT PIC 151

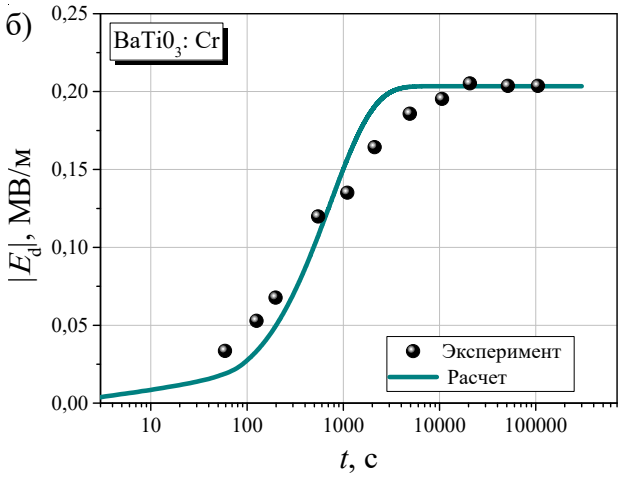


Рис. 16. Сравнение результатов КЭ расчетов эволюции поля смещения при старении с экспериментом для BaTiO3 (0,5% Cr-допинг)

Модель материала с учетом изменяющихся дефектов демонстрирует способность корректного описания процесса *старения* после предварительной поляризации (см. Рис. 17), а также эффект *деэйджинга*, связанный с уменьшением начального поля смещения при интенсивном циклическом нагружении.

Учет в модели дефектов позволил корректно описать наблюдаемое в экспериментах[8] изменение *формы поверхности переключения* после предварительной поляризации и последующей разгрузки для образцов из $BaTiO_3$ и поликристаллической пьезокерамики PZT-5H. Моделирование процессов рассматриваемого двухлучевого нагружения на основе КЭ гомогенизации для ЭПО поликристалла с использованием микроструктурной модели *без учета дефектов* (8)-(19) приводит к существенному количественному отличию от результатов эксперимента (Рис. 17). Использование модели *с учетом дефектов* (20)-(32) позволяет значительно улучшить точность прогнозов (см. Рис. 17).

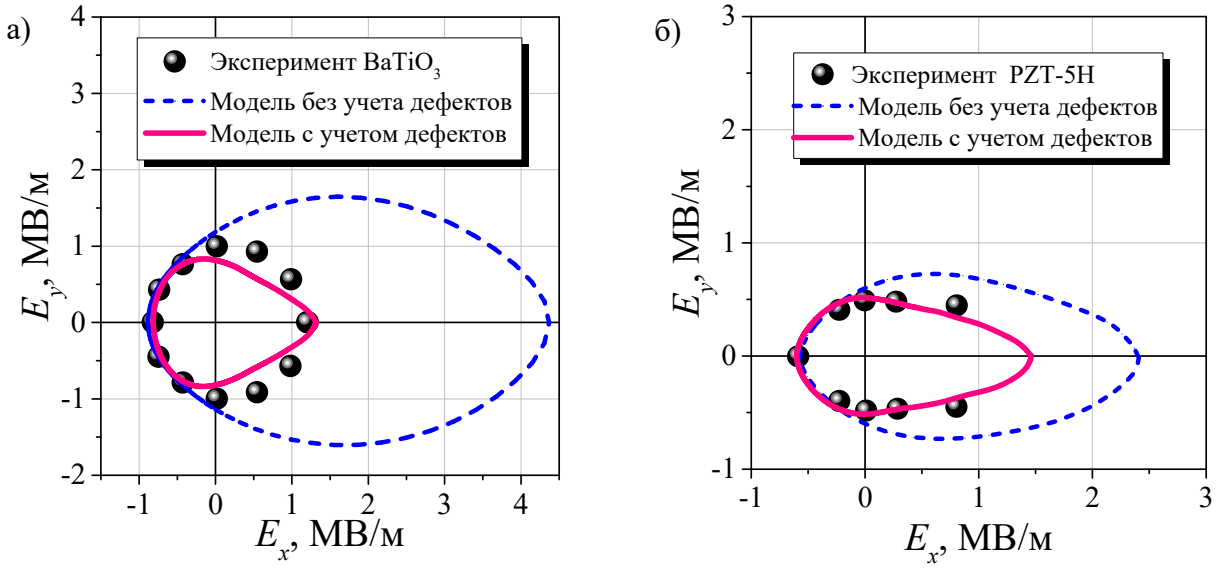


Рис. 17. Сравнение результатов расчетов формы поверхностей переключений после предварительной поляризации с экспериментальными данными для: а) $BaTiO_3$ и б) PZT-5H

[8] Shieh J., Huber J.E., Fleck N.A. An evaluation of switching criteria for ferroelectrics under stress and electric field // Acta Materialia. 2003. № 20 (51). С. 6123–6137.

В диссертации произведено систематическое исследование *влияния ориентации дефектов* на форму петель гистерезиса. Результаты расчетов с использованием микроструктурной модели монокристалла с неизменяющимися полярными дефектами показали, что проекция осредненного в пределах рассматриваемого объема материала направления поляризации дефектов на направление поля определяет горизонтальное *смещение* петли гистерезиса. При нулевой осредненной (скомпенсированной) поляризации дефектов локальная разориентация (пространственная неоднородность) направления поляризации дефектов приводит к искажению формы петли гистерезиса в виде *среза* петли гистерезиса без изменения местоположения ее центра.

Наличие пространственно упорядоченных полярных дефектов заданной концентрации позволяет создать внутреннее смещающее электрическое поле, способствующее сохранению устойчивого монодоменного состояния и достижению больших остаточных деформаций. Таким образом, открывается возможность управления и целенаправленного изменения электромеханических свойств сегнетоэлектроупругих материалов путем контролируемого создания дефектов структуры, представляющего один из способов *доменной инженерии*.

В заключении сформулированы основные результаты работы, выводы и рекомендации.

Публикации по материалам диссертации

Статьи в журналах, рекомендованных ВАК РФ *или индексируемых в* Scopus / WoS

1. Семенов А.С. Микроструктурная модель сегнетоэлектроупругого материала с учетом эволюции дефектов // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. – 2021. – Т. 14, № 1. – С. 32-57.
2. Семенов А.С. Микромеханическая модель поликристаллического сегнетоэлектроупругого материала с учетом дефектов // Прикладная механика и техническая физика. – 2019. – Т. 60, № 6. – С. 173-191.
3. Lobanov S.M., Semenov A.S. Finite-element modeling of ferroelectric material behavior at morphotropic phase boundaries between tetragonal, rhombohedral and orthorhombic phases // Journal of Physics: Conference Series. – 2019. – Vol. 1236, – P. 012062.
4. Semenov A., Trapp J., Nöthe M., Eberhardt O., Kieback B., Wallmersperger T. Thermo-electro-mechanical modeling of spark plasma sintering processes accounting for grain boundary diffusion and surface diffusion // Computational mechanics. – 2021. – Vol. 67. – P. 401-416.
5. Семенов А.С., Лобанов С.М. Моделирование реономного поведения сегнетоэлектроупругих материалов при циклическом нагружении // Журнал технической физики. – 2018, – Т. 88, № 10. – С. 1526-1532.
6. Lobanov S.M., Semenov A.S. Modeling of nonlinear behavior of polyrcystalline lead-free piezoceramics with a content of tetragonal, rhombohedral and orthorhombic phases under cyclic loading // Procedia Structural Integrity. – 2017. – Vol. 6. – P. 90–94.

7. Semenov A., Melnikov B. Interactive rheological modeling in elasto-visco-plastic finite element analysis // Procedia Engineering. – 2016. – Vol. 165. – P. 1748-1756.
8. Semenov A.S., Trapp J., Nöthe M., Eberhardt O., Wallmersperger T., Kieback B. Experimental and numerical analysis of the initial stage of field-assisted sintering // Journal of Materials Science. – 2017. – Vol. 52, № 3. – P. 1486-1500.
9. Stark S., Semenov A.S., Balke H. On the boundary conditions for the vector potential formulation in electrostatics // International Journal for Numerical Methods in Engineering. – 2015. – Vol. 102, No. 11. – P. 1704-1732.
10. Ивашов И.В., Семенов А.С. Влияние граничных условий на берегах трещины на процесс разрушения поликристаллической пьезокерамики // Инженерно-строительный журнал. – 2014. Т. 51, № 7. – С. 5-15.
11. Semenov A.S., Liskowsky A.C., Neumeister P., Balke H. Effective computational methods for the modeling of ferroelectroelastic hysteresis behavior // Proc. IUTAM «Multiscale Modelling of Fatigue, Damage and Fracture in Smart Materials Systems», M. Kuna (Ed.). IUTAM Bookseries. – 2011. – Vol. 24. – P. 43-53.
12. Roth S., Neumeister P., Semenov A.S., Balke H. Finite element simulation of the non-remanent straining ferroelectric material behavior based on the electrostatic scalar potential – Convergence and stability // Proc. IUTAM «Multiscale Modelling of Fatigue, Damage and Fracture in Smart Materials Systems», IUTAM Bookseries. M. Kuna (Ed.). – 2011. – Vol. 24. – P. 55-66.
13. Осипова Н.Г., Семенов А.С. Моделирование нелинейного поведения пьезокерамики тетрагональной структуры на основе методов конечно-элементной гомогенизации // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. – 2011. – Т. 134, №4. – С. 56-64.
14. Semenov A.S., Liskowsky A.C., Balke H. Return mapping algorithms and consistent tangent operators in ferroelectroelasticity // International Journal for Numerical Methods in Engineering. – 2010. – Vol. 81. – P. 1298–1340.
15. Semenov A.S., Liskowsky A., Balke H. Vector potential formulation for the three-dimensional finite element analysis of nonlinear electromechanical problems // Behavior and Mechanics of Multifunctional and Composite Materials. Ed. M.J. Dapino. Proceeding of SPIE. – 2007. – Vol. 6526. – P. 65260A1-65260A12.
16. Semenov A.S., Kessler H., Liskowsky A., Balke H. On a vector potential formulation for 3D electromechanical finite element analysis // Communications in Numerical Methods in Engineering. – 2006. – Vol. 22. – P. 357-375.

Публикации, не индексируемые в Scopus / WoS

17. Семенов А.С. Моделирование поведения сегнетопьезокерамики при сложном непропорциональном нагружении на основе микроструктурной модели // Упругость и неупругость. Материалы Межд. научн. симпозиума по проблемам механики деформируемых тел, посвященного 110-летию со дня рождения А.А. Ильюшина / Под ред. Г.Л. Бровко, Д.В. Георгиевского, И.Н. Молодцова. — М.: Изд-во Моск. ун-та. – 2021. – С. 512-519.

18. Семенов А.С. Микроструктурные и феноменологические модели гистерезисного поведения сегнетоэлектроупругих материалов с учетом дефектов // Сборник трудов «XII Всероссийский съезд по фундаментальным проблемам теоретической и прикладной механики». – 2019. – Том 3. Механика деформируемого твердого тела. Уфа: РИЦ БашГУ. – С. 367-369.

19. Лобанов С.М., Семенов А.С. Моделирование нелинейного поведения бессвинцовых пьезокерамик в различных сегнетоэлектрических фазах // Труды шестого межд. молодежн. симпозиума «Физика бессвинцовых пьезоактивных и родственных материалов». Ростов-на-Дону: Изд-во Южного федерального университета. – 2017. – Т. 2. – С. 81-84.

20. Pudeleva O., Semenov A., Melnikov B. Multiscale finite element modeling of nonlinear behavior of polycrystalline piezoceramics with account of tetragonal and rhombohedral phases // Procedia Structural Integrity. – 2017. – Vol. 6. – P. 309-315.

21. Ивашов И.В., Лобанов С.М., Семенов А.С. Моделирование нелинейного поведения поликристаллических сегнетоэлектроупругих материалов на основе метода конечно-элементной гомогенизации // Труды Пятого Межд. междисциплинарного молодежн. симпозиума «Физика бессвинцовых пьезоактивных и родственных материалов». Ростов-на-Дону: Изд-во Южного федерального университета. – 2016. – Т. 1. – С. 234-237.

22. Семенов А.С., Бальке Х., Мельников Б.Е. Моделирование поликристаллической пьезокерамики методом конечно-элементной гомогенизации // Морские Интеллектуальные Технологии. – 2011, №3. – С. 109-115.

23. Ле-Захаров С.А., Мельников Б.Е., Семенов А.С. Моделирование поведения сегнетоэлектроупругих материалов с использованием реологических моделей // Морские Интеллектуальные Технологии. – 2011, №3. – С. 87-91.

24. Семенов А.С., Бальке Х., Вальмерспергер Т. Феноменологическое описание и численное моделирование неупругого деформирования сегнетопьезокерамики при сложном электромеханическом воздействии // Механика деформируемого твердого тела. Вестник Нижегородского университета. – 2011, № 4 (4). – С. 1763-1765.

25. Семенов А.С., Мельников Б.Е. Моделирование процессов неупругого деформирования сегнетоэластиков // Проблемы прочности, пластичности и устойчивости в механике деформируемого твердого тела: Материалы 7 Межд. научн. симпозиума, посвященного 80-летию со дня рождения В.Г. Зубчанинова. Тверь: ТГТУ. – 2011. – С. 197-202.

26. Semenov A.S., Liskowsky A.C., Neumeister P., Balke H. Effective computational methods for the solution of 3D ferroelectroelastic problems under complex loading // PAMM. – 2010. – Vol. 10. – P. 383-384.

27. Семенов А.С., Лисковски А.Ч., Ноймайстер П., Бальке Х., Ле-Захаров С.А., Додонов П.А., Мельников Б.Е. Эффективные методы решения нелинейных краевых задач сегнетоэлектроупругости // Морские Интеллектуальные Технологии. – 2010. №1. – С. 55-61.

28. Алексеев С.В., Грудинин А.Н., Семенов А.С. Идентификация параметров сегнетоэлектроупругих материалов на основе применения методов оптимизации // Неделя науки СПбГПУ. Мат. межд. конф. СПб. Изд-во Политехн. ун-та. – 2010. – Т. 5. – С. 75-76.

29. Курлов Д.В., Семенов А.С. Анализ эволюции приобретенной анизотропии пьезоэлектрических модулей поликристаллической сегнетопьезокерамики при сложном непропорциональном электромеханическом нагружении // Неделя науки СПбГПУ. Мат. межд. конф. СПб. – 2010. – Т. 5. – С. 77-78.

30. Semenov A.S., Liskowsky A.C., Balke H. Comparison of vector and scalar potential formulation in computational ferroelectroelasticity // Proc. 2nd GAMM-Seminar on Multiscale Material Modelling. Stuttgart. – 2008. – P. 30-32.

31. Liskowsky A.C., Semenov A.S., Neumeister P., Balke H. Evaluation of the influence of initial residual microfield distributions on the ferroelectroelastic material behavior // Proc. 2nd GAMM-Seminar on Multiscale Material Modelling. Stuttgart. – 2008. – P. 24-26.

32. Semenov A., Liskowsky A., Balke H. Vector potential formulation for 3D nonlinear finite element analysis of fully coupled electro-mechanical problems // Proc. 19th Chemnitz FEM-Symposium. Chemnitz. – 2006. – P. 30.

33. 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, R.M. McMeeking et al. (Eds.), Proc. of the 2005 MRS Spring Meeting Proceedings. – 2005. – Vol. 881E. – P. CC4.2.

Подписано в печать 14.03.2022. Формат 60×84/16. Печать цифровая
Усл. печ. л. 2,0. Тираж 100. Заказ ???.

Отпечатано с готового оригинал макета, предоставленного автором
в Издательско-полиграфическом центре Политехнического университета Петра Великого.
195251, Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29.
Тел.: (812) 552-77-17; 550-40-14.