

DOI: 10.7242/1999-6691/2023.16.4.40
УДК 519.3

КОМПЬЮТЕРНАЯ ГОМОГЕНИЗАЦИЯ ПОРИСТЫХ ПЬЕЗОКЕРАМИК РАЗЛИЧНОЙ СЕГНЕТОЖЕСТКОСТИ ПРИ СЛУЧАЙНОЙ СТРУКТУРЕ ПОРИСТОСТИ И НЕОДНОРОДНОСТИ ПОЛЯ ПОЛЯРИЗАЦИИ

А.В. Наседкин, А.А. Наседкина, Я.В. Толмачева

Южный федеральный университет, Ростов-на-Дону, Российская Федерация

Обсуждаются задачи гомогенизации, в которых эффективные модули пористых пьезокерамических композитов устанавливаются с учетом неоднородности поля поляризации. Задачи гомогенизации решаются методом конечных элементов в пакете ANSYS на основе теории эффективных модулей и энергетического принципа Хилла. Для этого в статических задачах электроупругости на границе представительного объема задаются линейные по пространственным переменным перемещения и электрический потенциал, обеспечивающие для однородной среды сравнения постоянные поля напряжений и электрической индукции. После решения нескольких краевых задач при различных граничных условиях и определения средних по объему компонент напряжений и вектора электрической индукции вычисляется полный набор эффективных модулей пьезоэлектрического композита. Представительный объем пьезокомпозита формируется в виде регулярной конечно-элементной сетки из кубических элементов, причем поры считаются заполненными пьезоэлектрическим материалом с экстремально малыми модулями. Конечные элементы наделяются свойствами пор по простому случайному алгоритму. Неоднородное поле поляризации находится из решения задачи электростатики, моделирующей процесс поляризации представительного объема в упрощенной линейной постановке. Направлениями векторов поляризации задаются локальные системы координат для отдельных конечных элементов матрицы композита. Далее, при решении задач электроупругости, эти локальные системы ассоциируются с элементами пьезоэлектрической матрицы и позволяют пересчитать материальные свойства в соответствии с формулами преобразования компонент тензоров при поворотах систем координат. Кроме того, рассматриваются различные модели изменения материальных модулей от неполяризованного состояния до поляризованного в зависимости от значений вектора поляризации. Вычислительные эксперименты выполнены для трех видов пьезокерамик: сегнетомягкой PZT-5H, средне-сегнетожесткой PZT-4 и сегнетожесткой PZT-8. Проведено сравнение зависимостей эффективных модулей от пористости для разных законов неоднородности поляризации и для различных видов пьезокерамического материала матрицы композита.

Ключевые слова: пьезоэлектричество, пористый пьезокомпозит, пористость, неоднородная поляризация, сегнетожесткость, эффективный модуль, представительный объем, случайная пористость, метод конечных элементов

COMPUTER HOMOGENIZATION OF POROUS PIEZOCERAMICS OF DIFFERENT FERROHARDNESS WITH RANDOM POROUS STRUCTURE AND INHOMOGENEOUS POLARIZATION FIELD

A. V. Nasedkin, A. A. Nasedkina and Y. V. Tolmacheva

Southern Federal University, Rostov-on-Don, Russian Federation

The article is concerned with the homogenization problems, in which the effective moduli of porous piezoceramic composites are determined taking into account the inhomogeneity of the polarization field. The homogenization problems are solved by the finite element method in the framework of the theory of effective moduli and the Hill energy principle using the ANSYS package. To this end, in static problems of electroelasticity, the displacements and electric potential, which are linear in spatial variables, are specified on the boundary of a representative volume to provide constant stress and electric induction fields for a homogeneous reference medium. After solving a set of boundary value problems under different boundary conditions and determining the volume-averaged stress components and the electric induction vector, a complete set of effective moduli for the piezoelectric composite is calculated. A representative volume of the piezocomposite is created in the form of a regular finite element mesh consisting of cubic elements. Pores in the representative volume are assumed to be filled with a piezoelectric material with extremely small moduli. Finite elements with pore properties are selected according to a simple random algorithm. The inhomogeneous polarization field is found by solving an electrostatic problem, in which the polarization process in the representative volume is modeled based on a simplified linear formulation. The local coordinate systems for individual finite elements of the composite matrix are specified by the directions of the polarization vectors. In the following, when solving the problems of electroelasticity, these local coordinate systems associated with the elements of the piezoelectric matrix allow recalculating the material properties according to the formulas of transformation of the tensor components as the coordinate systems rotate. In addition, consideration is given to different models describing the change in the moduli of the material from an unpolarized state to a polarized one as a function of the polarization vector. Computational experiments were carried out for three types of piezoceramics: soft ferroelectric piezoceramics PZT-5H, piezoceramics PZT-4 of medium ferrohardness, and piezoceramics PZT-8 with higher degree of ferrohardness. The dependences of the effective moduli on porosity are compared for different laws of polarization inhomogeneity and different kinds of piezoceramic material of the composite matrix.

Key words: piezoelectricity, porous piezocomposite, porosity, inhomogeneous polarization, ferrohardness, effective modulus, representative volume element, random porosity, finite element method

1. Введение

Пьезокерамические материалы нашли широкое применение в современной промышленности, что выразилось в формировании специального направления — пьезоэлектрического приборостроения, в котором разнообразные устройства включают активные пьезоэлектрические элементы, превращающие электрическую энергию в механическую, и наоборот. При практическом использовании зачастую требуется

повышение эффективности устройств по каким-то отдельным параметрам. Для решения этих проблем разработано множество пьезокерамических материалов и композитов. В частности, оказалось, что для гидроакустики и устройств медицинского ультразвука эффективна пористая пьезокерамика [1–4], поскольку она имеет низкий акустический импеданс и высокие гидростатические показатели качества. Из-за своих высоких коэффициентов пьезочувствительности пористая пьезокерамика в последнее время стала рассматриваться в качестве перспективного активного материала в устройствах при получении возобновляемой или «зеленой» энергии [5–9].

Для создания пористой пьезокерамики разработано множество способов, большинство из них основано на спекании порошка ЦТС с выгорающими добавками (порообразователями). Так, можно отметить выжигание полимерных гранул (BURPS), создание полимерной пены, реакционный синтез, а также алкоксидные, криохимические способы и другие [1, 3, 4, 8–13]. При этом большинство известных технологий в большей степени предназначены для научно-исследовательских работ, а не для промышленного производства, поскольку не дают воспроизводимых результатов в разных партиях пористых пьезокерамических материалов. Например, экспериментальные данные из [4, 8–15], существенно различаются между собой, особенно в значениях пьезомодулей. Для продольного пьезомодуля d_{33}^{eff} имеются и качественные различия в зависимости от пористости. В большинстве из упомянутых выше работ отмечается, что с ростом пористости продольный пьезомодуль уменьшается, но в [3, 11, 16, 17] приведены данные, что значения этого пьезомодуля почти постоянны или слабо убывают при нарастании пористости. Причины таких отличий кроются, по-видимому, как в различии регламентов изготовления пористой пьезокерамики до спекания, так и в неодинаковости техник поляризации керамики, осуществляемых после спекания. Наконец, на экспериментальных данных могут сказываться методы измерения эффективных материальных модулей, поскольку они стандартизированы только для плотных пьезокерамик.

В настоящей работе анализ свойств пористых пьезокерамик проводится численно, с использованием методов эффективных модулей и конечных элементов [18], причем основное внимание уделяется влиянию типа упрощенных моделей неоднородной поляризации. Отметим, что плотная пьезокерамика стандартно считается однородно поляризованным материалом, но композитная, в частности пористая, пьезокерамика является неоднородно поляризованным материалом, и основной вопрос состоит в том, насколько существенна эта неоднородность. Поляризация, вообще говоря, процесс нелинейный, но известные нелинейные подходы [19–25] мало пригодны для практики, поскольку слишком сложны и требуют таких входных данных, для определения которых нужны отдельные прецизионные эксперименты. В связи с этим были предложены упрощенные подходы, основанные на линейном приближении процесса поляризации или на некотором предположении о неоднородности поля поляризации [7–9, 15, 26–31]. В этих работах в основном предполагается, что вектор поляризации может поворачиваться относительно основной оси поляризации, но не изменяется по модулю. Здесь же, в развитие подхода [26], рассматриваются модели учета неоднородности поля поляризации не только по направлению, но и по модулю, а также проводится комплексное сравнение всех исследуемых моделей. В отличие от [26], в обсуждаемой работе используется более корректное задание элементных систем координат для неоднородного поля поляризации, рассматриваются иные представительные объемы и программные реализации, проводится комплексный анализ шести моделей поляризации для разных видов пьезокерамик.

2. Методика определения эффективных модулей с учетом неоднородной поляризации

Для решения задачи гомогенизации пористого пьезоэлектрического композита его представительный объем Ω будем строить сразу в форме регулярной конечно-элементной сетки, расположенной в кубе с ребром L . Считаем, что объем Ω состоит из одинаковых по размеру кубических конечных элементов Ω_m^e : $\Omega = \cup_m \Omega_m^e$, $m = 1, 2, \dots, N$. Вдоль каждой оси декартовой системы координат $Ox_1x_2x_3$ располагается по n конечных элементов, и следовательно, $N = n^3$. Для пористой среды примем, что элементы $\Omega_m^e = \Omega_m^{e(1)}$, $l=1, 2$, имеют свойства или материальной пьезокерамической матрицы ($\Omega_k^e = \Omega_k^{e(1)}$), или пор ($\Omega_l^e = \Omega_l^{e(2)}$). Таким образом, поры считаются включениями с пренебрежимо малыми упругими жесткостями, пьезомодулями и с диэлектрической проницаемостью вакуума. После формирования структуры композита эти элементы можно исключать из модели, но здесь для удобства анализа распределения вектора напряженности электрического поля они сохраняются. Совокупность элементов матрицы материала обозначим как $\Omega^{(1)} = \cup_k \Omega_k^{e(1)}$, а совокупность элементов пор — $\Omega^{(2)} = \cup_k \Omega_k^{e(2)}$.

Для определения неоднородного поля остаточной поляризации $\mathbf{P} = \mathbf{P}(\mathbf{x})$ на первом этапе решим задачу электростатики для диэлектрического композита, моделирующую процесс поляризации пористого пьезоэлектрического материала в упрощенной линейной постановке. Предположим, что все конечные элементы являются диэлектрическими, причем множество $\Omega^{(1)}$ состоит из диэлектрических элементов неполяризованной пьезокерамики (1-я фаза), а множество $\Omega^{(2)}$ — из пор с диэлектрическими

проницаемостями вакуума (2-я фаза). Обе фазы считаем изотропными с диэлектрическими проницаемостями $\varepsilon_i^{(1)}$ и $\varepsilon_i^{(2)}$ соответственно. Пусть поверхности $x_3=L$ и $x_3=0$ объема Ω покрыты электродами пренебрежимо малой толщины. На $x_3=L$ электроды заземлены, а к электродам на $x_3=0$ подается электрический потенциал $V = LE_c$ со значением поля E_c , достаточным для поляризации однородного пьезокерамического материала.

Для представительного объема Ω методом конечных элементов (МКЭ) решим задачу электростатики относительно функции электрического потенциала φ :

$$\operatorname{div} \mathbf{D} = 0, \quad \mathbf{D} = \varepsilon_i \mathbf{E}, \quad \mathbf{E} = -\operatorname{grad} \varphi, \quad (1)$$

при следующих граничных условиях:

$$\varphi = LE_c, \quad x_3 = 0; \quad \varphi = 0, \quad x_3 = L. \quad (2)$$

Здесь: \mathbf{D} — вектор электрической индукции или вектор электрического смещения; \mathbf{E} — вектор напряженности электрического поля; $\varepsilon_i = \varepsilon_i^{(l)}$, $\mathbf{x} \in \Omega^{(l)}$, $l=1, 2$.

По полученному решению задачи (1), (2) в центральных точках конечных элементов $\Omega_k^e \subseteq \Omega^{(1)}$ вычислим векторы $\mathbf{P}_k^e = \mathbf{D}_k^e - \varepsilon_0 \mathbf{E}_k^e$, где $\varepsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{-12}$ Ф/м — диэлектрическая проницаемость вакуума. Считаем, что данные векторы с точностью до нормировки являются векторами поляризации пьезокерамического материала в элементе Ω_k^e . Таким образом, здесь принимается, что направление вектора остаточной поляризации совпадает с направлением индуцированной поляризации при воздействии на неполяризованный пьезокерамический материал электрического поля E_c в направлении оси Ox_3 . В силу данной гипотезы с конечными элементами $\Omega_k^e \subseteq \Omega^{(1)}$ можно ассоциировать элементные системы координат (ЭСК) $Ox_{k1}^e, Ox_{k2}^e, Ox_{k3}^e$ с осью Ox_{k3}^e , направленной вдоль вектора \mathbf{P}_k^e . Орты $\mathbf{i}_{k1}^e, \mathbf{i}_{k2}^e, \mathbf{i}_{k3}^e$ данной системы координат определяются по формулам:

$$\mathbf{i}_{k1}^e = \left\{ \frac{P_{k2}^e}{P_{k12}^e}, -\frac{P_{k1}^e}{P_{k12}^e}, 0 \right\}, \quad \mathbf{i}_{k2}^e = \left\{ \frac{P_{k1}^e P_{k3}^e}{P_{k12}^e P_k^e}, \frac{P_{k2}^e P_{k3}^e}{P_{k12}^e P_k^e}, -\frac{P_{k12}^e}{P_k^e} \right\}, \quad \mathbf{i}_{k3}^e = \left\{ \frac{P_{k1}^e}{P_k^e}, \frac{P_{k2}^e}{P_k^e}, \frac{P_{k3}^e}{P_k^e} \right\}, \quad (3)$$

где $P_{k12}^e = \sqrt{(P_{k1}^e)^2 + (P_{k2}^e)^2}$ при $P_{k12}^e \neq 0$, $P_k^e = |\mathbf{P}_k^e| = \sqrt{(P_{k1}^e)^2 + (P_{k2}^e)^2 + (P_{k3}^e)^2}$. Если же $P_{k12}^e = 0$, то вместо формул (3) примем, что орты $\mathbf{i}_{k1}^e, \mathbf{i}_{k2}^e, \mathbf{i}_{k3}^e$ ЭСК совпадают с ортами исходной декартовой системы координат $\mathbf{i}_1, \mathbf{i}_2, \mathbf{i}_3$.

Отметим, что для рассматриваемых далее трансверсально-изотропных пьезокерамических композитов существенными являются только направления векторов \mathbf{i}_{k3}^e , а ортогональные базисные векторы $\mathbf{i}_{k1}^e, \mathbf{i}_{k2}^e$ могут выбираться произвольно в плоскостях, перпендикулярных векторам \mathbf{i}_{k3}^e . Предлагаемый способ построения ортогональных базисов ЭСК один из возможных, он содержит конкретные формулы, которые можно использовать при программировании неоднородных свойств в представительных объемах пьезокерамических композитов.

Теперь при решении задачи гомогенизации можно учесть неоднородность поляризации пьезокерамики. Для этого в имеющейся сетке конечных элементов все элементы электростатики модифицируем в элементы с возможностями пьезоэлектрического анализа. Новым элементам присваиваем материальные свойства двух типов: конечным элементам 1-й фазы — свойства поляризованной пьезокерамики, элементам 2-й фазы — свойства пор. С конечными элементами пьезокерамического материала 1-й фазы связываются ЭСК $Ox_{k1}^e, Ox_{k2}^e, Ox_{k3}^e$, заданные найденными на предыдущем этапе векторами поляризации \mathbf{P}_k^e .

Далее для нахождения эффективных модулей решим задачи электроупругости для неоднородного представительного объема методами, описанными в [6, 18, 26, 29, 30, 32]. В качестве базовых воспользуемся модулями из стандартных определяющих соотношений электроупругости:

$$\mathbf{T} = \mathbf{c}^E \cdot \mathbf{S} - \mathbf{e}^T \cdot \mathbf{E}, \quad \mathbf{D} = \mathbf{e} \cdot \mathbf{S} + \boldsymbol{\varepsilon}^S \cdot \mathbf{E}, \quad (4)$$

где $\mathbf{T} = \{\sigma_{11}, \sigma_{22}, \sigma_{33}, \sigma_{23}, \sigma_{13}, \sigma_{12}\}$, $\mathbf{S} = \{\varepsilon_{11}, \varepsilon_{22}, \varepsilon_{33}, 2\varepsilon_{23}, 2\varepsilon_{13}, 2\varepsilon_{12}\}$ — массивы компонент напряжений σ_{ij} и деформаций ε_{ij} ; \mathbf{c}^E — 6×6 матрица упругих жесткостей $c_{\alpha\beta}^E$, измеренных при постоянном электрическом поле; \mathbf{e} — 3×6 матрица пьезомодулей $e_{j\beta}$; $\boldsymbol{\varepsilon}^S$ — 3×3 матрица диэлектрических проницаемостей ε_{ij}^S , измеренных при постоянных деформациях; $(\dots)^T$ — операция транспонирования матрицы; $(\dots) \cdot (\dots)$ —

операция умножения матрицы на вектор или на одномерный массив (или операция умножения двух матриц). В (4) и далее применяются обозначения Фойхта, в которых компонентам тензора упругих жесткостей 4-го ранга c_{ijkl}^E соответствуют компоненты матрицы $c_{\alpha\beta}^E$, компонентам тензора пьезомодулей 3-го ранга e_{jkl} — компоненты матрицы $e_{j\beta}$, а **T** и **S**, строго говоря, являются одномерными массивами или псевдовекторами, но не векторами, поскольку при переходе к другой системе координат их компоненты изменяются по тем же законам, что и компоненты тензоров 2-го ранга, а не компоненты векторов.

Отметим, что при учете неоднородной поляризации задачи гомогенизации решаются на конечно-элементной сетке, в которой каждый элемент поляризованной пьезокерамики имеет, вообще говоря, свои модули \mathbf{c}_k^{Ee} , \mathbf{e}_k^e , $\boldsymbol{\varepsilon}_k^{Se}$. В самом простом варианте, когда учитывается лишь изменение направления поля поляризации при одинаковых длинах векторов поляризации, эти модули можно найти по формулам пересчета тензорных коэффициентов при переходе от ЭСК $Ox_{k1}^e x_{k2}^e x_{k3}^e$ к основной или глобальной декартовой системе координат $Ox_1 x_2 x_3$:

$$\mathbf{c}_k^{Ee} = \mathbf{c}_{rk}^{Ee}, \quad \mathbf{e}_k^e = \mathbf{e}_{rk}^e, \quad \boldsymbol{\varepsilon}_k^{Se} = \boldsymbol{\varepsilon}_{rk}^{Se}, \quad (5)$$

$$\mathbf{c}_{rk}^{Ee} = \mathbf{H}_k^e \cdot \mathbf{c}_k^E \cdot \mathbf{H}_k^{eT}, \quad \mathbf{e}_{rk}^e = \mathbf{Q}_k^e \cdot \mathbf{e}_k \cdot \mathbf{H}_k^{eT}, \quad \boldsymbol{\varepsilon}_{rk}^{Se} = \mathbf{Q}_k^e \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_k^S \cdot \mathbf{Q}_k^{eT}, \quad (6)$$

где \mathbf{c}_{rk}^{Ee} , \mathbf{e}_{rk}^e , $\boldsymbol{\varepsilon}_{rk}^{Se}$ — матрицы модулей $\mathbf{c}^E = \mathbf{c}^{E(1)}$, $\mathbf{e} = \mathbf{e}^{(1)}$, $\boldsymbol{\varepsilon}^S = \boldsymbol{\varepsilon}^{S(1)}$ основной (1-й) пьезокерамической фазы композита в повернутой (rotate) ЭСК, пересчитанные для глобальной декартовой системы координат, \mathbf{Q}_k^e — матрица направляющих косинусов ($[\mathbf{Q}_k^e]_{ij} = q_{kij}^e = \mathbf{i}_i \cdot \mathbf{i}_{kj}^e = \cos(\mathbf{i}_i, \mathbf{i}_{kj}^e)$), а компоненты 6×6 матрицы \mathbf{H}_k^e выражаются через компоненты q_{kij}^e следующим образом [33]

$$H_{kij}^e = (q_{kij}^e)^2, \quad i, j = 1, 2, 3, \quad H_{k44}^e = q_{k22}^e q_{k33}^e + q_{k23}^e q_{k32}^e, \quad H_{k55}^e = q_{k11}^e q_{k33}^e + q_{k13}^e q_{k31}^e, \quad H_{k66}^e = q_{k11}^e q_{k22}^e + q_{k12}^e q_{k21}^e,$$

$$H_{ki4}^e = 2q_{ki2}^e q_{ki3}^e, \quad H_{ki5}^e = 2q_{ki1}^e q_{ki3}^e, \quad H_{ki6}^e = 2q_{ki1}^e q_{ki2}^e,$$

$$H_{k4i}^e = 2q_{k2i}^e q_{k3i}^e, \quad H_{k5i}^e = 2q_{k1i}^e q_{k3i}^e, \quad H_{k6i}^e = 2q_{k1i}^e q_{k2i}^e,$$

$$H_{k45}^e = q_{k21}^e q_{k33}^e + q_{k23}^e q_{k31}^e, \quad H_{k54}^e = q_{k12}^e q_{k33}^e + q_{k32}^e q_{k13}^e, \quad H_{k46}^e = q_{k31}^e q_{k22}^e + q_{k32}^e q_{k21}^e, \quad H_{k64}^e = q_{k13}^e q_{k22}^e + q_{k23}^e q_{k12}^e,$$

$$H_{k56}^e = q_{k11}^e q_{k32}^e + q_{k12}^e q_{k31}^e, \quad H_{k65}^e = q_{k11}^e q_{k23}^e + q_{k21}^e q_{k13}^e.$$

Если поле поляризации постоянно, то задачу (1), (2) решать не нужно, и в задаче гомогенизации все конечные элементы имеют или свойства равномерно поляризованного вдоль оси Ox_3 пьезокерамического материала, или свойства пор. Однородно поляризованная пьезокерамика, как известно, относится к гексагональной кристаллической системе с точечной группой симметрии $6mm$ и, таким образом, характеризуется 10-ю разными модулями. В подходе, описанном выше, материальные модули \mathbf{c}_k^{Ee} , \mathbf{e}_k^e , $\boldsymbol{\varepsilon}_k^{Se}$ конечных элементов 1-й фазы пьезокомпозита получались из исходных модулей $\mathbf{c}^E = \mathbf{c}^{E(1)}$, $\mathbf{e} = \mathbf{e}^{(1)}$, $\boldsymbol{\varepsilon}^S = \boldsymbol{\varepsilon}^{S(1)}$ только при пересчете тензорных коэффициентов по формулам (5), (6) при переходе от повернутых ЭСК к глобальной декартовой системе координат.

В том случае, когда вектор остаточной поляризации не достигает значения поляризации насыщения, материальные модули являются функциями этого вектора и тензора остаточной деформации. Оставляя в стороне исследование по определению такой зависимости, воспользуемся линейным приближением и будем считать, что модули \mathbf{c}_k^{Ee} , \mathbf{e}_k^e , $\boldsymbol{\varepsilon}_k^{Se}$ неоднородно поляризованной пьезокерамики есть линейные функции модуля вектора остаточной поляризации. Тогда можно принять линейное изменение материальных свойств частично поляризованной керамики от значений в деполаризованном состоянии (\mathbf{c}_i , $\mathbf{e}_i = 0$, $\boldsymbol{\varepsilon}_i$) до значений в состоянии насыщения: $\mathbf{c}^{E(1)}$, $\mathbf{e}^{(1)}$, $\boldsymbol{\varepsilon}^{S(1)}$. Именно, следуя [23, 26], будем использовать следующие зависимости:

$$\mathbf{c}_k^{Ee} = (1 - \chi_p) \mathbf{c}_i + \chi_p \mathbf{c}_{rk}^{Ee}, \quad \mathbf{e}_k^e = \chi_p \mathbf{e}_{rk}^e, \quad \boldsymbol{\varepsilon}_k^{Se} = (1 - \chi_p) \boldsymbol{\varepsilon}_i + \chi_p \boldsymbol{\varepsilon}_{rk}^{Se}, \quad (7)$$

$$\chi_p = \left| \frac{\mathbf{P}_k^e}{p_{sat}} \right|, \quad (8)$$

где p_{sat} — значение поляризации в состоянии насыщения, которое в рамках принятой модели определяется по формуле: $p_{sat} = (\varepsilon_i - \varepsilon_0) E_c$.

При подходе (6)–(8) допускается «сверхполяризация» пьезокерамического материала, поскольку при решении задачи электростатики (1), (2) для неоднородного материала с негладкими интерфейсными границами возможны особенности в полях электрического потенциала, напряженности электрического поля и электрической индукции. В этих ситуациях модуль вектора остаточной поляризации может превысить

значение, отвечающее поляризации состояния насыщения, что обычно не приемлемо. В связи с этим изменим формулу (8), исключив «сверхполяризацию» пьезокерамического материала:

$$\chi_p = \begin{cases} |\mathbf{P}_k^e|/P_{sat}, & |\mathbf{P}_k^e| \leq P_{sat}, \\ 1, & |\mathbf{P}_k^e| \geq P_{sat}. \end{cases} \quad (9)$$

Существует альтернативный подход, в котором используются линейные зависимости для модулей податливостей неоднородно поляризованной керамики \mathbf{s}_k^{Ee} , измеренных при постоянном электрическом поле, и для пьезомодулей \mathbf{d}_k^e и диэлектрических проницаемостей $\boldsymbol{\varepsilon}_k^{Te}$, измеренных при постоянном механическом напряжении [26]:

$$\mathbf{s}_k^{Ee} = (1 - \chi_p) \mathbf{s}_i + \chi_p \mathbf{s}_{rk}^{Ee}, \quad \mathbf{d}_k^e = \chi_p \mathbf{d}_{rk}^e, \quad \boldsymbol{\varepsilon}_k^{Te} = (1 - \chi_p) \boldsymbol{\varepsilon}_i + \chi_p \boldsymbol{\varepsilon}_{rk}^{Te}. \quad (10)$$

Здесь модули \mathbf{s}_{rk}^{Ee} , \mathbf{d}_{rk}^e , $\boldsymbol{\varepsilon}_{rk}^{Te}$, аналогично (6), получаются при пересчете исходных модулей $\mathbf{s}^E = \mathbf{s}^{E(1)}$, $\mathbf{d} = \mathbf{d}^{(1)}$, $\boldsymbol{\varepsilon}^T = \boldsymbol{\varepsilon}^{T(1)}$ при поворотах ЭСК; $\mathbf{s}_i = (\mathbf{c}_i)^{-1}$.

Поскольку модули из наборов $\{\mathbf{c}^E, \mathbf{e}, \boldsymbol{\varepsilon}^S\}$ и $\{\mathbf{s}^E, \mathbf{d}, \boldsymbol{\varepsilon}^T\}$ связаны между собой известными соотношениями ($\mathbf{s}^E = (\mathbf{c}^E)^{-1}$, $\mathbf{d} = \mathbf{e} \cdot \mathbf{s}^E$, $\boldsymbol{\varepsilon}^T = \boldsymbol{\varepsilon}^S + \mathbf{d} \cdot \mathbf{e}^T$), то, определив один из наборов материальных модулей, найдем значения модулей для другого набора. Между тем, модели (7) и (10) не эквивалентны, и вопрос о наилучшем подходе для отыскания модулей неоднородно поляризованной пьезокерамики при данных упрощенных моделях остается пока открытым. Модель (10), более сложная для вычислений, но она базируется на пьезомодулях $d_{i\alpha}$, наиболее важных для многих практических приложений. При этом и (7), и (10) реализуемы в пакете ANSYS с использованием программ на языке APDL, если для пьезоэлектрического анализа конечные элементы электростатики модифицировать, а именно изменить как их элементные системы координат, так и значения их материальных модулей.

При всех описанных выше подходах к моделированию неоднородной поляризации задача гомогенизации о нахождении эффективных модулей жесткостей $c_{\alpha\beta}^{Eeff}$, эффективных пьезомодулей $e_{j\beta}^{eff}$, и эффективных диэлектрических проницаемостей ε_{jj}^{Seff} может быть решена однотипным образом. Для этого прибегнем к методу эффективных модулей в обычной формулировке. Подробное изложение метода и его обоснование, связанное с энергетическими критериями и принципом Хилла, представлено в [18, 29, 32, 34]. Поэтому здесь приведем только результирующие формулы для случая, когда исходные фазы обладают максимальным классом анизотропии *btm*. Считаем, что геометрия представительного объема не изменяет класс физической анизотропии, и в результате гомогенная среда также имеет класс анизотропии *btm* с десятью эффективными модулями c_{11}^{Eeff} , c_{12}^{Eeff} , c_{13}^{Eeff} , c_{33}^{Eeff} , e_{31}^{eff} , e_{33}^{eff} , e_{15}^{eff} , ε_{11}^{Seff} , ε_{33}^{Seff} , подлежащими нахождению.

Примем, что в объеме Ω выполняются дифференциальные уравнения линейной статической теории пьезоэлектричества, в которые, помимо определяющих соотношений (4), входят также следующие полевые уравнения:

$$\sigma_{ij,j} = 0, \quad D_{j,j} = 0, \quad \varepsilon_{ij} = (u_{i,j} + u_{j,i})/2, \quad E_i = -\varphi_{,i}, \quad (11)$$

где u_i — компоненты вектора перемещений. Тогда для отыскания эффективных свойств пьезокерамических композитов достаточно решить пять краевых задач, состоящих из уравнений (4), (11) со специальными граничными условиями.

Задача I. Задано линейное смещение внешних границ Γ объема Ω в направлении оси x_1 :

$$u_i = x_1 \delta_{1i} S_0, \quad \varphi = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma \Rightarrow c_{1j}^{Eeff} = \langle \sigma_{jj} \rangle / S_0, \quad j = 1, 2, 3, \quad e_{31}^{eff} = \langle D_3 \rangle / S_0; \quad (12)$$

Задача II. Задано линейное смещение внешних границ объема Ω в направлении оси x_3 :

$$u_i = x_3 \delta_{3i} S_0, \quad \varphi = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma \Rightarrow c_{j3}^{Eeff} = \langle \sigma_{jj} \rangle / S_0, \quad j = 1, 2, 3, \quad e_{33}^{eff} = \langle D_3 \rangle / S_0; \quad (13)$$

Задача III. Задан линейный сдвиг внешних границ объема Ω по осям x_2 и x_3 :

$$u_i = (x_3 \delta_{2i} + x_2 \delta_{3i}) S_0 / 2, \quad \varphi = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma \Rightarrow c_{44}^{Eeff} = \langle \sigma_{23} \rangle / S_0, \quad e_{15}^{eff} = \langle D_2 \rangle / S_0; \quad (14)$$

Задача IV. На внешних границах объема Ω задан линейный по x_1 электрический потенциал:

$$u_i = 0, \quad \varphi = -x_1 E_0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma \Rightarrow e_{15}^{eff} = -\langle \sigma_{13} \rangle / E_0, \quad \varepsilon_{11}^{Seff} = \langle D_1 \rangle / E_0; \quad (15)$$

Задача V. На внешних границах объема Ω задан линейный по x_3 электрический потенциал:

$$u_i = 0, \quad \varphi = -x_3 E_0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma \Rightarrow e_{3j}^{eff} = -\langle \sigma_{jj} \rangle / E_0, \quad j = 1, 3, \quad \varepsilon_{33}^{S,eff} = \langle D_3 \rangle / E_0. \quad (16)$$

Здесь: $\langle \dots \rangle = (1/|\Omega|) \int_{\Omega} (\dots) d\Omega$; δ_{ij} — символ Кронекера; S_0, E_0 — произвольные ненулевые постоянные,

характеризующие макроскопические значения деформаций и напряженности электрического поля, соответственно. Как видно из (12)–(16), в совокупности определяется полный набор из 10-ти эффективных модулей пьезокерамического композита, причем одни и те же пьезомодули находятся по два раза и с точностью до погрешности численных методов должны иметь одинаковые значения [34].

3. Численные результаты

Расчеты эффективных модулей проводились методом конечных элементов в пакете ANSYS с использованием специально разработанных программ на языке APDL. Представительные объемы выглядели как регулярные решетки из $N_{el} = n^3$ геометрически одинаковых конечных элементов в форме кубиков, где n — число элементов вдоль каждой из осей декартовой системы координат. Элементы 2-й фазы выбирались внутри представительного объема стохастическим методом исходя из заданного процентного значения пористости: $p = (|\Omega^{(2)}|/|\Omega|) \cdot 100\%$. Для этого применялся следующий алгоритм:

- вначале всем элементам присваиваются материальные свойства первой фазы;
- далее выполняется цикл от 1 до требуемого числа конечных элементов — пор $N_{el}^{(2)} = [pN_{el}/100]$, где [...] — ближайшее целое число. Первый оператор внутри цикла имеет метку, и по нему в заданном диапазоне значений от 1 до N_{el} генератором случайных чисел ANSYS на основе равномерного распределения элементу присваивается текущий номер. Если этот элемент принадлежит 1-й фазе, то его свойства заменяются свойствами 2-й фазы. В противном случае внутри цикла осуществляется переход на оператор, которому присвоена метка.

Как известно [18, 26, 30], структура представительного объема может существенно сказываться на значениях эффективных модулей. Однако здесь основная задача исследования состояла в анализе влияния на эффективные модули основных видов пьезокерамик типов моделей неоднородности полей поляризации. Поэтому и был выбран описанный выше алгоритм формирования представительного объема. Он не гарантирует связности объемов $\Omega^{(1)}$ и $\Omega^{(2)}$, однако при малой пористости объем матрицы материала $\Omega^{(1)}$ в результате работы алгоритма, как правило, оказывается связанным, а поры из объема $\Omega^{(2)}$ обычно являются закрытыми. Очевидно, что простой случайный метод не подходит для моделирования представительных объемов высокопористых композитов, такие материалы требуют отдельных исследований. По этим причинам в данной работе расчеты проводились только до 70% пористости, причем результаты для средней и большой пористости контролировались следующим образом: при фиксированных входных данных проводилось по три расчета со случайно построенными представительными объемами. Анализировались различия между полученными результатами, при близких величинах вычислялось их среднее значение.

Для конечно-элементного решения задач электростатики и электроупругости использовались 8-узловые гексаэдральные элементы SOLID5 с опциями, соответственно, электростатического и пьезоэлектрического анализа. Размер объема $n = 45$ обеспечил достаточную сходимость результатов при измельчении конечно-элементной сетки и их слабую зависимость от случайного выбора конечных элементов 2-й фазы — пор.

Отметим, что кубический представительный объем поддерживает класс анизотропии $4mm$, тогда как пьезокерамика обладает физической анизотропией класса $6mm$. У этих классов нулевые модули одинаковы, и выполняются равенства, характерные для трансверсально-изотропной среды: $c_{11}^E = c_{22}^E, c_{13}^E = c_{23}^E, c_{44}^E = c_{55}^E, e_{31} = e_{32}, \varepsilon_{11}^S = \varepsilon_{22}^S$. Если принять, что случайный выбор пористых конечных элементов не оказывает существенного влияния на анизотропию эффективных модулей, то гомогенная среда будет иметь класс анизотропии $4mm$, и материальные свойства по осям x_1 и x_2 будут одинаковыми. В общем случае произвольной анизотропии гомогенной среды требуется решать задачи (11), (4) с линейными главными граничными условиями девять раз: три задачи на растяжение вдоль оси $x_j, j = 1, 2, 3$; три задачи на сдвиг по граням, параллельным плоскостям $x_k x_l, x_l x_k, l \neq k$; три задачи о действии электрического поля в направлении оси x_j . Однако для среды класса $4mm$ задачу на растяжение вдоль оси x_2 , задачу на сдвиг по граням, параллельным плоскостям $x_1 x_3, x_3 x_1$, и задачу о действии электрического поля вдоль оси x_2 можно не решать, поскольку они дадут такие же эффективные модули, что и задачи с граничными условиями (12), (14) и (15) соответственно. Тем не менее, для среды класса $4mm$, вообще говоря, равенство

$c_{66}^{E\text{eff}} \neq (c_{11}^{E\text{eff}} - c_{12}^{E\text{eff}})/2$, характерное для сред класса $6mm$, не обязано выполняться. Поэтому для нахождения эффективного модуля $c_{66}^{E\text{eff}}$ требуется еще одно решение задачи (11), (4) — на сдвиг по граням, параллельным плоскостям x_1x_2 , x_2x_1 . При тестовых расчетах для композитов с максимальной пористостью 70% решалось девять задач гомогенизации с анализом всех материальных модулей. Результаты расчетов показали, что гомогенная среда практически сохраняет класс анизотропии $6mm$, в том числе с приемлемой точностью выполняется равенство $c_{66}^{E\text{eff}} = (c_{11}^{E\text{eff}} - c_{12}^{E\text{eff}})/2$, что позволяет вместо девяти раз решать только пять раз задачу гомогенизации (11), (4) с граничными условиями (12)–(16).

Рассмотрено три вида пьезокерамики различной сегнетожесткости: сегнетомягкая пьезокерамика PZT-5Н, пьезокерамика средней сегнетожесткости PZT-4 и сегнетожесткая пьезокерамика PZT-8. Данные по материальным модулям для этих пьезокерамических материалов при нулевой пористости $p = 0$ (не считая естественной пористости) приведены в таблице 1. Отметим, что классификация пьезокерамик по сегнетожесткости относится не к механической жесткости, а к их электрическим и электромеханическим свойствам. Сегнетомягкие пьезокерамики отличаются большими диэлектрическими проницаемостями и большими (по абсолютной величине) пьезомодулями, по сравнению с сегнетожесткими керамиками. Разные виды пьезокерамик ориентированы на разнообразные применения и характеризуются также значениями добротностей, температурной стабильностью, возможностями работы при сильных механических воздействиях и другими свойствами, которые в настоящей работе не анализируются. Для пьезоэлектрических конечных элементов объема $\Omega^{(2)}$, моделирующих поры, использовались значения модулей: $c_{\alpha\beta}^{E(2)} = \kappa c_{\alpha\beta}^{E(1)}$, $e_{j\alpha}^{(2)} = \kappa e_{j\alpha}^{(1)}$, $\kappa = 1 \cdot 10^{-10}$, $\varepsilon_{jj}^{S(2)} = \varepsilon_0$.

Таблица 1. Модули плотных пьезокерамик разной сегнетожесткости

	c_{11}^E , ГПа	c_{12}^E , ГПа	c_{13}^E , ГПа	c_{33}^E , ГПа	c_{44}^E , ГПа	e_{31} , Кл/м ²	e_{33} , Кл/м ²	e_{15} , Кл/м ²	$\varepsilon_{11}^S/\varepsilon_0$	$\varepsilon_{33}^S/\varepsilon_0$
PZT-5H	126	79,5	84,1	117	23,0	-6,5	23,3	17,0	1700	1470
PZT-4	139	77,8	74,3	115	25,6	-5,2	15,1	12,7	730	635
PZT-8	147	81,1	81,0	132	31,0	-3,1	13,9	10,3	900	560

При решении задачи электростатики пьезокерамика в неполяризованном состоянии рассматривалась как изотропный материал. Ее модули жесткости находились по формулам осреднения Хилла поликристаллического трансверсально изотропного материала с модулями жесткости $c_{\alpha\beta}^E$ и модулями податливости $s_{\alpha\beta}^E$ ($\mathbf{s}^E = (\mathbf{c}^E)^{-1}$) [35]:

$$K_F = (2c_{11}^E + c_{33}^E + 2(c_{12}^E + 2c_{13}^E))/9, \quad \mu_F = (7c_{11}^E + 2c_{33}^E - 5c_{12}^E - 4c_{13}^E + 12c_{44}^E)/30, \quad (17)$$

$$K_R = (2s_{11}^E + s_{33}^E + 2(s_{12}^E + 2s_{13}^E))^{-1}, \quad \mu_R = 15 / (2(7s_{11}^E + 2s_{33}^E - 5s_{12}^E - 4s_{13}^E + 3s_{44}^E)), \quad (18)$$

$$K_H = (K_F + K_R)/2, \quad \mu_H = (\mu_F + \mu_R)/2, \quad c_{i11} = K_H + 4\mu_H/3, \quad c_{i12} = K_H - \mu_H, \quad 2\mu_H/3, \quad c_{i44} = \mu_H. \quad (19)$$

Аналогичное осреднение модулей диэлектрических проницаемостей ε_{jj}^T дает формулу:

$$\varepsilon_{i11} = \varepsilon_{i33} = (2\varepsilon_{11}^T + \varepsilon_{33}^T)/3.$$

Отметим, что данных по свойствам неполяризованной пьезокерамики довольно мало, и для них наблюдается достаточно сильный разброс. Более простые формулы осреднения для упругих модулей изотропной неполяризованной керамики предложены в [36, 37]. Для модуля Юнга E_i в [36] приведена оценка: $E_{RoM}^E \leq E_i \leq E_{RoM}^D$, где $E_{RoM}^E = (2/s_{11}^E + 1/s_{33}^E)/3$, $E_{RoM}^D = (2/s_{11}^D + 1/s_{33}^D)/3$ — значения модулей Юнга, рассчитанные по правилу смесей (Rule of Mixtures) из модулей податливости поляризованной пьезокерамики при постоянном электрическом поле (индекс E) и при постоянной электрической индукции (индекс D): $s_{11}^D = s_{11}^E - d_{31}^2/\varepsilon_{33}^T$, $s_{33}^D = s_{33}^E - d_{33}^2/\varepsilon_{33}^T$. В [36] для неполяризованной керамики предложены также эмпирические формулы модуля Юнга E_i^* и коэффициента Пуассона ν_i^* : $E_i^* = 2/(s_{11}^E + s_{11}^D)$, $\nu_i^* = -(s_{12}^E/s_{11}^E + s_{13}^E/\sqrt{s_{11}^E s_{33}^E})/2$.

Осреднение Хилла (17)–(19) представляется более обоснованным, чем формулы из [36, 37]. Этот подход соответствует представлению о неполяризованной керамике с доменной структурой, в которой направления спонтанной поляризации доменов хаотически распределены. При этом у каждого отдельного домена материальные свойства считаются совпадающими с материальными свойствами поляризованной

пьезокерамики после поворота локальной системы координат так, чтобы вектор спонтанной поляризации домена совпадал по направлению с вектором поляризации результирующего пьезокерамического материала. Кроме того, осреднение Хилла в целом коррелирует с формулами из [36, 37]. Например, для пьезокерамики PZT-5Н со свойствами из таблицы 1 имеем следующие значения: $E_i = 9K_H\mu_H / (3K_H + \mu_H) = 60,8$ ГПа, $E_{RoM}^E = 56,1$ ГПа, $E_{RoM}^D = 83,4$ ГПа, $E_i^* = 64,8$ ГПа, $\nu_i = E_i / (2\mu_H) - 1 = 0,39$, $\nu_i^* = 0,37$. Таким образом, $E_{RoM}^E \leq E_i \leq E_i^* \leq E_{RoM}^D$, $\nu_i \approx \nu_i^*$.

Далее, на примере сегнетомягкой пьезокерамики PZT-5Н, рассмотрим шесть моделей поляризации:

1-я: однородно поляризованная пьезокерамика;

2-я: неоднородно поляризованная пьезокерамика с модулями (5), (6), то есть неоднородная поляризация только по направлениям Ox_{k3}^e ЭСК;

3-я: неоднородно поляризованная пьезокерамика с модулями (6), (7), (8), то есть неоднородная поляризация при поворотах ЭСК и изменениях модулей согласно определяющим соотношениям с пьезомодулями $e_{i\alpha}$ и с возможностями «сверхполяризации»;

4-я: неоднородно поляризованная пьезокерамика с модулями (6), (7), (9), то есть неоднородная поляризация при поворотах ЭСК и изменениях модулей согласно определяющим соотношениям с пьезомодулями $e_{i\alpha}$ без «сверхполяризации»;

5-я: неоднородно поляризованная пьезокерамика с модулями (6), (10), (8), то есть неоднородная поляризация при поворотах ЭСК и изменениях модулей согласно определяющим соотношениям с пьезомодулями $d_{i\alpha}$ и с возможностями «сверхполяризации»;

6-я: неоднородно поляризованная пьезокерамика с модулями (6), (10), (9), то есть неоднородная поляризация при поворотах ЭСК и изменениях модулей согласно определяющим соотношениям с пьезомодулями $d_{i\alpha}$ и без «сверхполяризации».

Проанализируем, как зависят от пористости относительные эффективные модули, которые обозначим через $r(...)$. Например, $r(c_{\alpha\beta}^E) = c_{\alpha\beta}^{E,eff} / c_{\alpha\beta}^E$ — отношение величины эффективного модуля жесткости $c_{\alpha\beta}^{E,eff} = c_{\alpha\beta}^{E,eff}(p)$ к величине $c_{\alpha\beta}^E = c_{\alpha\beta}^{E(1)}$ аналогичного модуля для плотной пьезокерамики, и так далее. Результаты содержатся в таблице 2 и рисунки 1–3. На рисунках представлены зависимости от пористости относительных эффективных модулей и показателей качества для сегнетомягкой пьезокерамики PZT-5Н, для которой, по-видимому, имеется наибольшее число экспериментальных данных. Кривые с номерами 1–6 соответствуют численным результатам для моделей 1–6. Таким образом, на рисунках демонстрируются отклики на изменение пористости относительных эффективных коэффициентов: кривые 1 для 1-й модели — однородно поляризованной пьезокерамики; кривые 2 для 2-й модели — пьезокерамики с неоднородной поляризацией только по направлениям ЭСК, и так далее. Более полные численные значения относительных эффективных модулей для этих же шести моделей приведены в таблице 2.

Таблица 2. Относительные значения модулей пьезокерамики PZT-5Н при различной пористости

Модель поляризации	$p, \%$	$r(c_{11}^E)$	$r(c_{12}^E)$	$r(c_{13}^E)$	$r(c_{33}^E)$	$r(c_{44}^E)$	$r(e_{31})$	$r(e_{33})$	$r(e_{15})$	$r(\epsilon_{11}^S)$	$r(\epsilon_{33}^S)$
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
1-я	10	0,83	0,80	0,79	0,81	0,87	0,81	0,89	0,86	0,90	0,89
	20	0,66	0,61	0,60	0,64	0,73	0,63	0,77	0,72	0,80	0,78
	30	0,51	0,44	0,42	0,48	0,60	0,46	0,65	0,58	0,69	0,67
	40	0,37	0,29	0,27	0,33	0,47	0,30	0,52	0,44	0,59	0,56
	50	0,24	0,17	0,16	0,21	0,33	0,16	0,39	0,31	0,47	0,46
	60	0,14	0,08	0,08	0,12	0,21	0,05	0,25	0,19	0,35	0,35
	70	0,06	0,03	0,03	0,05	0,10	-0,01	0,12	0,09	0,23	0,23
2-я	10	0,83	0,80	0,79	0,81	0,86	0,78	0,89	0,86	0,89	0,89
	20	0,67	0,61	0,59	0,63	0,72	0,57	0,78	0,72	0,78	0,78
	30	0,51	0,44	0,42	0,47	0,59	0,37	0,66	0,58	0,68	0,67
	40	0,37	0,29	0,27	0,33	0,45	0,19	0,54	0,44	0,57	0,57
	50	0,24	0,17	0,15	0,21	0,32	0,05	0,40	0,31	0,45	0,46
	60	0,14	0,08	0,07	0,12	0,20	-0,04	0,25	0,19	0,33	0,34
	70	0,06	0,03	0,03	0,05	0,09	-0,07	0,12	0,09	0,21	0,23

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
3-я	10	0,83	0,80	0,79	0,81	0,86	0,71	0,86	0,81	0,93	0,94
	20	0,66	0,60	0,59	0,63	0,72	0,46	0,74	0,66	0,84	0,84
	30	0,50	0,43	0,41	0,47	0,59	0,26	0,62	0,51	0,74	0,74
	40	0,36	0,28	0,26	0,33	0,45	0,10	0,49	0,37	0,63	0,63
	50	0,23	0,16	0,14	0,21	0,32	-0,01	0,35	0,24	0,51	0,51
	60	0,13	0,07	0,07	0,12	0,20	-0,05	0,21	0,13	0,38	0,39
	70	0,05	0,03	0,02	0,05	0,09	-0,05	0,09	0,05	0,24	0,25
4-я	10	0,83	0,80	0,79	0,81	0,86	0,70	0,91	0,84	0,91	0,90
	20	0,66	0,60	0,59	0,64	0,73	0,44	0,80	0,69	0,81	0,79
	30	0,50	0,43	0,42	0,47	0,59	0,23	0,68	0,53	0,72	0,69
	40	0,36	0,28	0,26	0,33	0,46	0,07	0,54	0,39	0,62	0,59
	50	0,23	0,16	0,15	0,21	0,33	-0,03	0,38	0,25	0,50	0,49
	60	0,13	0,08	0,07	0,12	0,20	-0,06	0,22	0,14	0,38	0,38
	70	0,05	0,03	0,02	0,05	0,10	-0,05	0,09	0,05	0,24	0,26
5-я	10	0,83	0,80	0,79	0,81	0,86	0,71	0,87	0,81	0,97	0,97
	20	0,66	0,60	0,59	0,63	0,72	0,46	0,75	0,66	0,89	0,88
	30	0,50	0,43	0,41	0,47	0,59	0,25	0,63	0,51	0,79	0,78
	40	0,35	0,27	0,26	0,33	0,45	0,09	0,50	0,37	0,69	0,67
	50	0,23	0,16	0,14	0,21	0,32	-0,01	0,36	0,24	0,56	0,55
	60	0,13	0,07	0,07	0,12	0,20	-0,06	0,21	0,13	0,42	0,43
	70	0,05	0,03	0,02	0,05	0,09	-0,05	0,09	0,05	0,27	0,28
6-я	10	0,83	0,80	0,79	0,81	0,86	0,67	0,91	0,84	0,92	0,88
	20	0,66	0,61	0,59	0,63	0,73	0,40	0,79	0,68	0,84	0,77
	30	0,50	0,43	0,41	0,46	0,59	0,20	0,65	0,52	0,75	0,67
	40	0,36	0,28	0,26	0,32	0,45	0,06	0,50	0,38	0,66	0,57
	50	0,23	0,16	0,14	0,21	0,32	-0,03	0,34	0,24	0,55	0,48
	60	0,13	0,08	0,07	0,12	0,20	-0,07	0,20	0,13	0,42	0,38
	70	0,05	0,03	0,03	0,05	0,09	-0,06	0,08	0,05	0,27	0,26

Поведение относительных эффективных модулей жесткости от пористости отражает рисунок 1а, где показаны зависимости относительного модуля $r(c_{33}^E)$. Как видно, с увеличением пористости эффективные модули жесткости становятся меньше, что вполне естественно. Кроме того, у всех шести моделей учета поляризации кривые I – b практически совпадают, причем относительная разница в значениях модулей при одной и той же пористости не превосходит 5%. Таким образом, учет неоднородности поля поляризации оказывает лишь незначительное влияние на величины эффективных модулей $c_{33}^{E,eff}$. Как можно заключить по данным таблицы 2, модули $r(c_{11}^E)$, $r(c_{12}^E)$, $r(c_{13}^E)$, и $r(c_{44}^E)$ качественно ведут себя подобно модулю $r(c_{33}^E)$, то есть убывают с ростом пористости, и их кривые I – b накладываются на эти же кривые модуля $r(c_{33}^E)$. При этом относительные эффективные модули жесткости $r(c_{12}^E)$ и $r(c_{13}^E)$ уменьшаются в наибольшей степени, а относительные модули $r(c_{44}^E)$ реагируют слабее и до 60%-ной пористости демонстрируют почти линейное поведение.

Относительные эффективные коэффициенты диэлектрической проницаемости $r(\epsilon_{33}^S)$ как функции пористости показаны на рисунке 1б. Диэлектрические проницаемости падают с ростом пористости у всех моделей поляризации, что согласуется с известными данными для диэлектрических композитов. Однако они снижаются медленнее, чем модули жесткости, а относительная разница между значениями $r(\epsilon_{33}^S)$ у различных моделей поляризации уже более существенна и для пористости 40–60% доходит до 20%. У модели 1 (однородно поляризованной пьезокерамики) и у модели 2 (пьезокерамики с неоднородной поляризацией только по направлениям ЭСК) значения эффективных коэффициентов диэлектрической проницаемости практически совпадают и с ростом пористости убывают почти линейно. Эффективные

коэффициенты диэлектрической проницаемости $r(\epsilon_{33}^S)$ у моделей 3–5 больше, чем у моделей 1 и 2. Кривые 3 и 5 лежат выше, чем, соответственно, кривые 4 и 6. Таким образом, учет возможностей «сверхполяризации» понижает значения эффективных модулей диэлектрической проницаемости. Поведение относительных эффективных коэффициентов диэлектрической проницаемости $r(\epsilon_{11}^S)$ качественно похоже на поведение коэффициентов $r(\epsilon_{33}^S)$, что следует из таблицы 2. Небольшие отличия между значениями $r(\epsilon_{11}^S)$ и $r(\epsilon_{33}^S)$ связаны с разными значениями модулей ϵ_{11}^S и ϵ_{33}^S , а также с формулами расчета диэлектрических проницаемостей в моделях 2–6 при переходе от неполяризованной изотропной керамики к трансверсально изотропной поляризованной пьезокерамике.

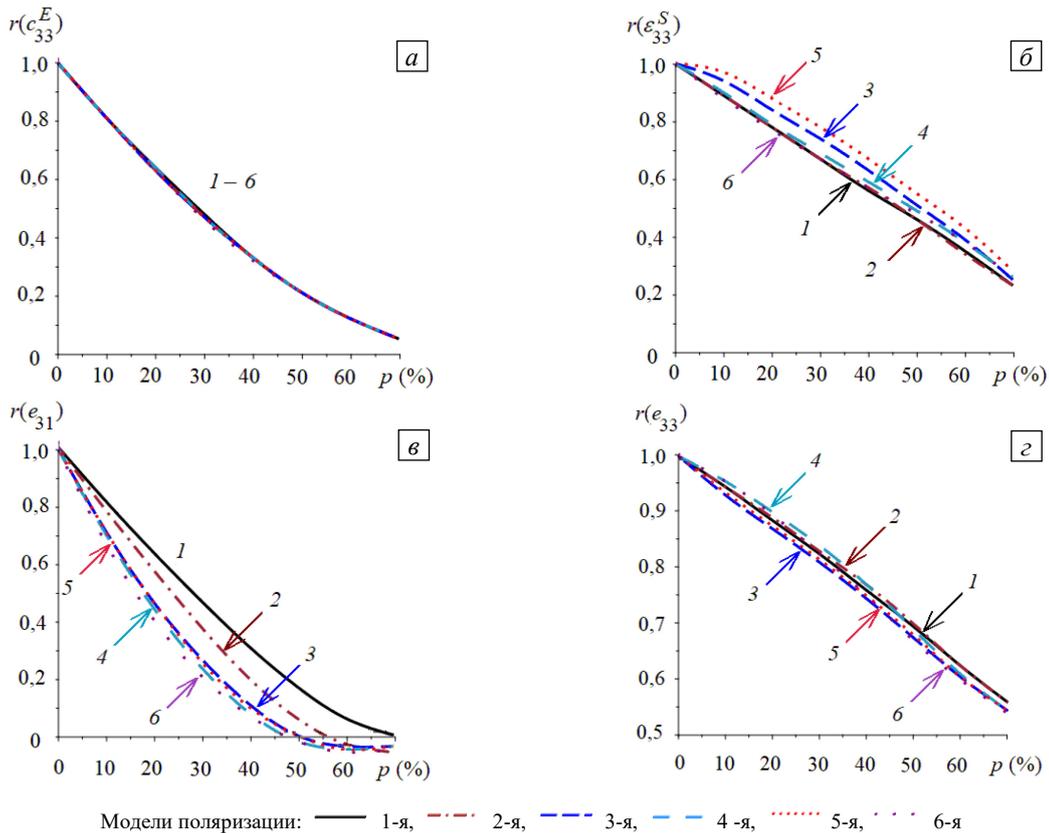


Рис. 1. Зависимости от пористости относительного модуля жесткости $r(c_{33}^E)$ (а), относительного модуля диэлектрической проницаемости $r(\epsilon_{33}^S)$ (б) и относительных пьезомодулей $r(e_{31})$ (в), $r(e_{33})$ (г)

Зависимости относительных эффективных пьезомодулей $r(e_{31})$, $r(e_{33})$ от пористости показаны на рисунках 1в, г. Их величины также снижаются с ростом пористости, но характеры пьезомодулей $r(e_{31})$ у разных моделей поляризации существенно различаются. У модели 1 (однородно поляризованной керамики) при фиксированной пористости величина $r(e_{31})$ — наибольшая из всех; далее по степени убывания идут $r(e_{31})$ у моделей 2 и 3–6, причем кривые $r(e_{31})$ моделей 3–6 не так значительно отличаются друг от друга, как графики $r(e_{31})$ моделей 1 и 2. Относительная разница в значениях $r(e_{31})$ для различных моделей может достигать сотен процентов и становится особенно значительной при большой пористости. Впрочем, значения поперечного пьезомодуля для плотной керамики PZT-5Н изначально довольно малы: $e_{31} = -6,5$ Кл/м² и, например, величина $r(e_{31}) = -0,01$ означает, что эффективный поперечный пьезомодуль принимает еще меньшее значение: $e_{31} = 0,065$ Кл/м². Естественно, что такие малые величины определяются численно с относительно большой погрешностью и поэтому являются наименее точными. Интересно, что при пористости, большей 50%, эффективный поперечный пьезомодуль e_{31}^{eff} при неоднородных полях поляризации (см. модели 3–6) может менять знак, а у моделей 1 и 2 этот эффект наблюдается при большей пористости. В этой связи следует отметить, что малые положительные значения пьезомодуля e_{31} наблюдаются у плотных пьезокерамик вида РbTiO₃ со специальными оксидными добавками [38–40], и малые

положительные эффективные пьезомодули e_{31}^{eff} при отрицательных значениях пьезомодулей e_{31} исходной плотной пьезокерамики получены ранее в [26, 41, 42]. Пьезокерамики вида $PbTiO_3$ с $e_{31} > 0$ с физической точки зрения рассматривались в [38, 40], а численные результаты с $e_{31}^{eff} > 0$ при $e_{31} < 0$ у моделей с неоднородной поляризацией можно объяснить учетом поворотов векторов поляризации и связанного с этим изменения модулей, что, естественно, влияет на эффективные электромеханические свойства как в направлении поля поляризации, так и в перпендикулярных направлениях.

В пьезоэлектричестве при математическом моделировании и при расчетах обычно используется набор модулей $\{c^E, e, \epsilon^S\}$. Однако для оценки эффективности работы пьезоустройств зачастую важны иные параметры: пьезомодули определяющих соотношений других форм, коэффициенты электромеханической связи, показатели качества и другое. Так, понятие пьезоэффекта изначально связывалось с определяющими соотношениями вида:

$$\mathbf{S} = \mathbf{s}^E \cdot \mathbf{T} + \mathbf{d}^T \cdot \mathbf{E}, \quad \mathbf{D} = \mathbf{d} \cdot \mathbf{T} + \boldsymbol{\epsilon}^T \cdot \mathbf{E}, \quad (20)$$

и с коэффициентами пропорциональности $d_{i\alpha}$ из этих формул, которые в соответствии с величинами, входящими в левые части (20) называются пьезомодулями заряда (D) или деформации (S). При некоторых приложениях важными характеристиками работы пьезоустройств служат коэффициенты пьезочувствительности $g_{i\alpha}$ (пьезомодули электрического напряжения (E) или деформации (S)), входящие в определяющие соотношения $\mathbf{S} = \mathbf{s}^D \cdot \mathbf{T} + \mathbf{g}^T \cdot \mathbf{D}$, $\mathbf{E} = -\mathbf{g} \cdot \mathbf{T} + \boldsymbol{\beta}^T \cdot \mathbf{D}$, где $\mathbf{g} = \boldsymbol{\beta}^T \cdot \mathbf{d}$, $\boldsymbol{\beta}^T = (\boldsymbol{\epsilon}^T)^{-1}$. Аналогичные величины вводятся и для эффективных модулей пьезокомпозита: $\mathbf{d}^{eff} = \mathbf{e}^{eff} \cdot (\mathbf{c}^{E,eff})^{-1}$, $\mathbf{g}^{eff} = (\boldsymbol{\epsilon}^{T,eff})^{-1} \cdot \mathbf{d}^{eff}$, $\boldsymbol{\epsilon}^{T,eff} = \boldsymbol{\epsilon}^{S,eff} + \mathbf{d}^{eff} \cdot \mathbf{e}^{effT}$.

На рисунке 2 для сегнетомягкой пьезокерамики PZT-5Н показаны зависимости от пористости относительных эффективных пьезомодулей заряда $r(d_{31})$, $r(d_{33})$ и коэффициентов пьезочувствительности $r(g_{31})$, $r(g_{33})$. Их графики представляют наибольший интерес, поскольку именно эти пьезомодули являются важнейшими параметрами, характеризующими эффективность работы пьезоэлектрических материалов при многих промышленных применениях.

Как отмечалось ранее, все десять эффективных модулей пористой пьезокерамики ($c_{11}^{E,eff}$, $c_{12}^{E,eff}$, $c_{13}^{E,eff}$, $c_{33}^{E,eff}$, $c_{44}^{E,eff}$, e_{31}^{eff} , e_{33}^{eff} , e_{15}^{eff} , $\epsilon_{11}^{S,eff}$, $\epsilon_{33}^{S,eff}$) с ростом пористости убывают по абсолютной величине. Однако

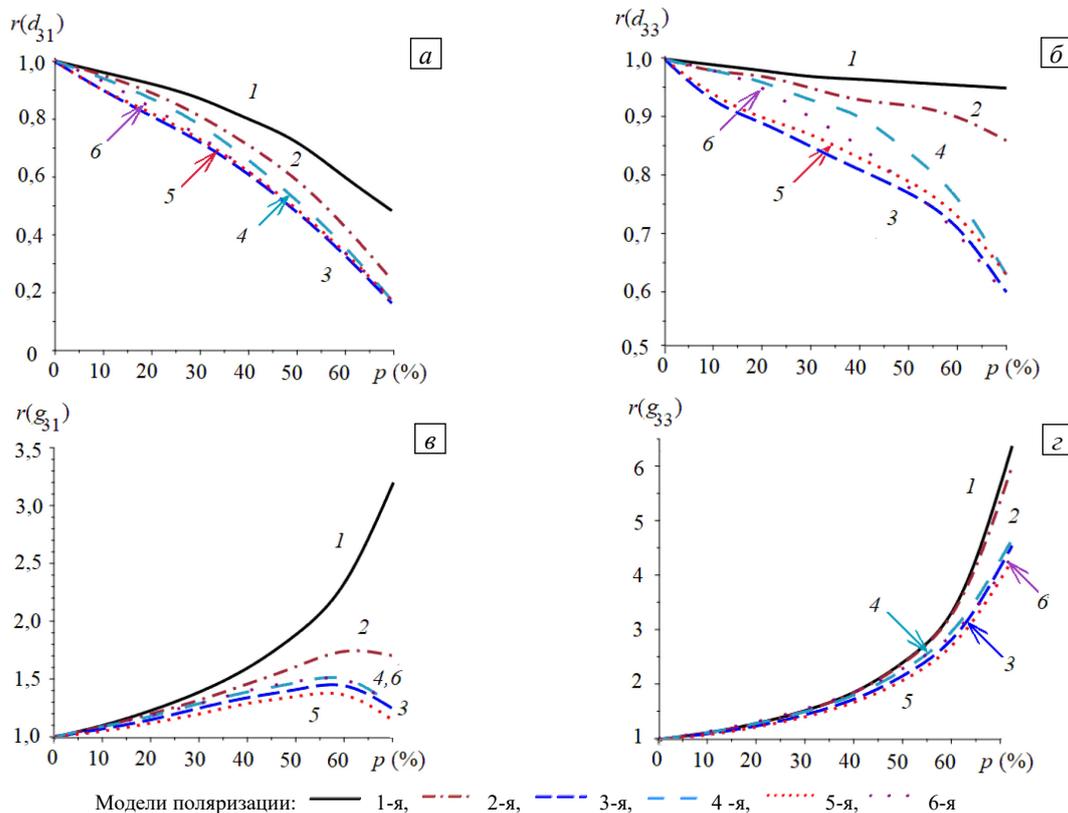


Рис. 2. Зависимости от пористости относительных пьезомодулей $r(d_{31})$ (а), $r(d_{33})$ (б), $r(g_{31})$ (в) и $r(g_{33})$ (г)

поперечный и продольный пьезокоэффициенты заряда находятся по формулам $d_{31}^{eff} = e_{31}^{eff} (s_{11}^{E,eff} + s_{12}^{E,eff}) + e_{33}^{eff} s_{13}^{E,eff}$, $d_{33}^{eff} = 2e_{31}^{eff} s_{13}^{E,eff} + e_{33}^{eff} s_{33}^{E,eff}$, где $s_{\alpha\beta}^{E,eff}$ — коэффициенты матрицы эффективных модулей податливостей, обратной к матрице эффективных модулей жесткости $c_{\alpha\beta}^{E,eff}$. Поэтому с ростом пористости эффективные коэффициенты податливостей по абсолютной величине становятся больше, и в итоге пьезомодули d_{31}^{eff} , d_{33}^{eff} определяются через уменьшающиеся по абсолютной величине пьезомодули $|e_{31}^{eff}|$, e_{33}^{eff} и увеличивающиеся податливости $s_{11}^{E,eff}$, $|s_{12}^{E,eff}|$, $|s_{13}^{E,eff}|$, $s_{33}^{E,eff}$. В результате поведение пьезомодулей d_{31}^{eff} , d_{33}^{eff} зависит от скорости убывания одних модулей и скорости роста других.

Как видно по кривым рисунка 2а, б, все относительные эффективные пьезомодули заряда $r(d_{31})$ и $r(d_{33})$ с ростом пористости снижаются, но просматривается достаточно сильная зависимость от модели поляризации. Наибольшие значения наблюдаются у однородно поляризованной пьезокерамики (кривые 1), причем $r(d_{33})$ почти постоянен. Несколько ниже располагаются кривые 2 для пьезокерамики с неоднородной поляризацией только по направлениям ЭСК. Наименьшие значения $r(d_{31})$, $r(d_{33})$ дает модель 3, и несколько большие — модель 5.

Эффективные коэффициенты пьезочувствительности определяются по формулам: $g_{31}^{eff} = d_{31}^{eff} / \epsilon_{33}^{T,eff}$, $g_{33}^{eff} = d_{33}^{eff} / \epsilon_{33}^{T,eff}$. Поскольку эффективные диэлектрические проницаемости $\epsilon_{33}^{T,eff}$ убывают с ростом пористости почти также, как и диэлектрические проницаемости $\epsilon_{33}^{S,eff}$, то неудивительно, что относительные эффективные коэффициенты пьезочувствительности $r(g_{31})$, $r(g_{33})$ растут с увеличением пористости (см. Рис. 2в, г). Наибольшие значения отвечают модели 1 — однородно поляризованной пьезокерамике, далее следуют кривые модели 2, наименьшие значения $r(g_{31})$, $r(g_{33})$ при модели 5, и несколько большие — при модели 3.

Отметим также, что пьезомодули d_{31}^{eff} и g_{31}^{eff} остаются отрицательными при пористости до 70% даже в тех ситуациях из рисунка 1в, когда относительный пьезомодуль $r(e_{31})$ меняет знак с положительного на отрицательный, а следовательно пьезомодуль e_{31}^{eff} становится положительным. Этот же эффект имеет место и для плотных пьезокерамик вида $PbTiO_3$ с добавками [40], когда $e_{31} > 0$, но более важные для большинства приложений поперечные пьезомодули d_{31} и g_{31} сохраняют при этом привычные для пьезокерамик знаки: $d_{31} < 0$, $g_{31} < 0$.

На рисунке 3 для сегнетомягкой пьезокерамики PZT-5Н показаны зависимости от пористости относительных показателей качества: гидростатического пьезокоэффициента $r(d_h)$ и гидростатического показателя качества $r(HFOM)$. Соответствующие величины для плотной пьезокерамики определяются по формулам $d_h = d_{33} + 2d_{31}$, $HFOM = d_h g_h$, $g_h = d_h / \epsilon_{33}^T$ и аналогично вычисляются эти эффективные показатели для пьезокомпозитной среды. Как видно по графикам, величины $r(d_h)$ и $r(HFOM)$ существенно увеличиваются с ростом пористости, причем наиболее чувствительна к ней модель 2, а наименее (при пористости до 60%) — модель 1.

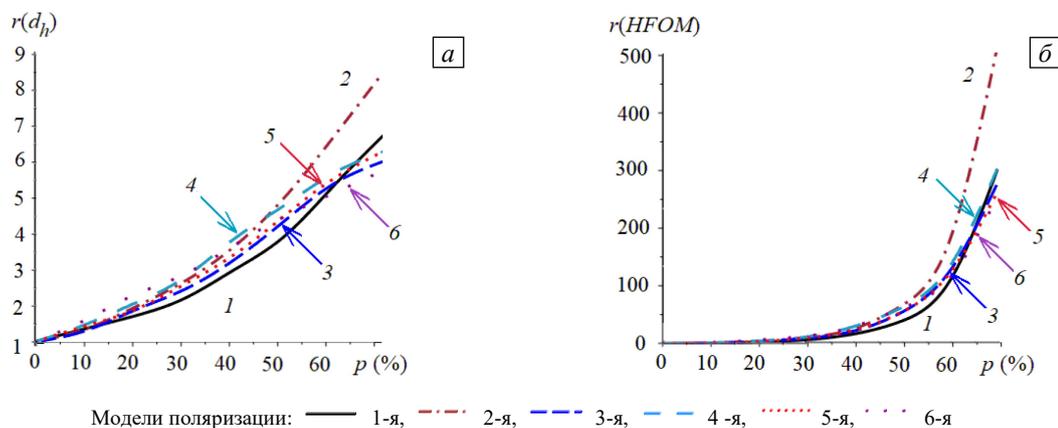


Рис. 3. Зависимости от пористости относительных показателей качества $r(d_h)$ (а) и $r(HFOM)$ (б)

Рост показателя $r(d_h) = (d_{33}^{eff} + 2d_{31}^{eff}) / (d_{33} + 2d_{31})$ для пористой пьезокерамики при убывающих величинах d_{33}^{eff} , $|d_{31}^{eff}|$ хорошо известен из литературы [4, 14, 15] и объясняется тем, что значения поперечных пьезомодулей d_{31}^{eff} , d_{31} отрицательны, а продольных d_{33}^{eff} , d_{33} — положительны.

Как отмечалось во введении, экспериментальные данные по материальным модулям пористой пьезокерамики характеризуются сильным разбросом, причем отличия наблюдаются даже у одних и тех же составов пьезокомпозиатов. Основные качественные расхождения имеет эффективный пьезомодуль d_{33}^{eff} . С одной стороны, он практически постоянен [3, 11, 16, 17], с другой, зависит от пористости [4, 7, 8, 12–15]. Также по-разному по отношению к пористости ведет себя эффективный пьезомодуль $|d_{31}^{eff}|$.

Результаты, приведенные на рисунках 2, 3, показывают, что большинству экспериментальных данных [4, 7, 8, 12–15] в наилучшей степени соответствуют модели учета неоднородной поляризации 3 и 5, в которых модули неоднородно поляризованной сегнетомягкой пьезокерамики PZT-5Н зависят как от направления вектора поляризации, так и от его модуля. Модель 5 представляется наиболее обоснованной, поскольку в ее основе лежат определяющие соотношения (20), в которых используются пьезомодули $d_{i\alpha}$, фигурирующие в классических формулировках прямого и обратного пьезоэффекта, кроме того, интенсивные (\mathbf{S} , \mathbf{D}) и экстенсивные (\mathbf{T} , \mathbf{E}) поля присутствуют в разных частях этих уравнений.

Однако данным [3] по независимости от пористости пьезомодуля d_{33}^{eff} лучше соответствуют модель 1 однородной поляризации и модель 2, когда поляризация неоднородна только в направлении вектора поляризации Ox_{k3} . Если еще принять во внимание отмеченное в [3] сильное падение величины эффективного пьезомодуля $|d_{31}^{eff}|$ с ростом пористости, то можно заключить, что данные из [3] в наилучшей степени описывает модель 2.

Для сравнения аналогичные расчеты эффективных модулей проведены для пористых керамик с пьезокерамической матрицей средней сегнетожесткости из PZT-4 и со сегнетожесткой пьезокерамической матрицей из PZT-8, при этом модули плотных керамик брались из таблицы 1. Сравнение результатов для трех видов пьезокерамик (PZT-5Н, PZT-4, PZT-8) показало, что отвечающие им относительные эффективные модули $r(c_{\alpha\beta}^{E,eff})$, $r(e_{i\alpha}^{eff})$ и $r(\epsilon_{ii}^{S,eff})$ мало отличаются друг от друга. Наибольшая разница выявлена у эффективного пьезомодуля e_{31}^{eff} и диэлектрической проницаемости $\epsilon_{11}^{S,eff}$ (в меньшей степени).

Зависимости от пористости относительных эффективных пьезомодулей заряда $r(d_{31})$ и $r(d_{33})$ у керамик, отнесенных к моделям 1 и 5, для трех пьезокерамических матриц показаны на рисунке 4. Как видно, кривые 1–3 и 4–6 близки между собой, то есть относительные эффективные модули слабо зависят от сегнетожесткости пьезокерамической матрицы. При этом для сегнетомягкой матрицы из PZT-5Н значения относительных пьезомодулей $r(d_{31})$ и $r(d_{33})$ минимальны по сравнению с аналогичными значениями для пьезокерамик PZT-4 и PZT-8 как у модели 1 (однородная поляризация), так и у модели 5 (неоднородная поляризация). Естественно, что у моделей с разными матрицами близкими оказываются также значения относительных пьезомодулей $r(g_{31})$, $r(g_{33})$ и факторов качества $r(d_h)$, $r(HFOM)$. Однако максимумы и минимумы этих параметров у пьезоматериалов с разными моделями поляризации и пьезокерамических матрицах с различной сегнетожесткостью могут отличаться. Например, у моделей 1 и 5 относительные модули пьезочувствительности $r(g_{31})$ и $r(g_{33})$ для пьезокерамической матрицы из PZT-5Н

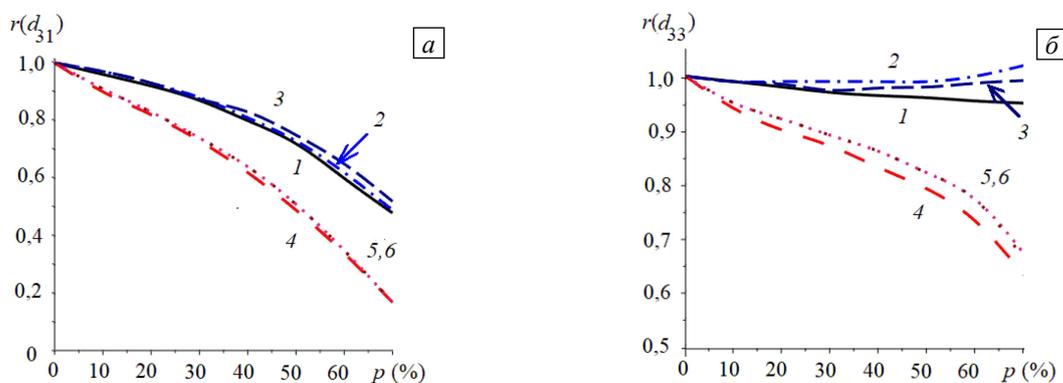


Рис. 4. Зависимости от пористости относительных пьезомодулей $r(d_{31})$ (а), $r(d_{33})$ (б) при различных моделях поляризации пьезоматериалов с различными керамическими матрицами: модель 1 (кривые 1–3), модель 5 (кривые 4–6); пьезокерамические матрицы: PZT-5Н (кривые 1, 4), PZT-4 (кривые 2, 5), PZT-8 (кривые 3, 6)

максимальны, а у модели 1 значения факторов качества $r(d_h)$ и $r(HFOM)$ минимальны для композита с сегнетожесткой пьезокерамической матрицей из PZT-8. В то же время $r(d_h)$ и $r(HFOM)$ у модели 5 практически одинаковы для всех трех пьезокерамических матриц и при пористости до 50% превосходят по величине аналогичные значения у модели 1.

5. Заключение

Итак, в настоящей работе представлены различные упрощенные модели, позволяющие вычислять методом конечных элементов полный набор эффективных модулей пористой пьезокерамики в предположении возможной неоднородности поля поляризации пьезокерамического материала в окрестности пор. Гетерогенность поля поляризации определяется по предварительному решению задачи электростатики, моделирующему результат процесса поляризации. Рассмотрено шесть приближенных моделей расчета модулей пьезокерамического материала в окрестности пор исходя из распределения вектора напряженности электрического поля в задаче электростатики. Далее, с целью отыскания эффективных модулей композита, решаются краевые задачи электроупругости в представительном объеме, состоящем из пьезокерамической матрицы с неоднородными модулями и случайно распределенного набора пор.

Полученные зависимости от пористости эффективных модулей для основных видов пьезокерамик позволяют выбрать модель учета неоднородности поляризации, наиболее соответствующую экспериментальным данным, если таковые имеются. Например, в случае пористых пьезокерамик, для которых эксперимент выдает достаточно сильно убывающие пьезомодули $|d_{31}^{eff}|$ и d_{33}^{eff} , можно рекомендовать использование моделей 3 и 5 с неоднородной поляризацией при поворотах ЭСК и при изменениях модулей с возможностями «сверхполяризации». Если же экспериментальный пьезомодуль d_{33}^{eff} слабо снижается с ростом пористости или почти постоянен, то более подходящими являются модели 1 и 2 (с однородной поляризацией или с неоднородной поляризацией только по направлениям ЭСК).

Также обнаружено, что зависимости от пористости относительных значений эффективных модулей мало отличаются для рассмотренных пьезокерамических матриц с различной сегнетожесткостью, поэтому сформулированные выводы о предпочтительности той или иной модели учета неоднородной поляризации справедливы как для пьезокерамик средней сегнетожесткости, так и для сегнетомягких и сегнетожестких пьезокерамик.

Дальнейшее уточнение методов расчета эффективных модулей пористых пьезокерамических материалов может быть связано с переходом к представительным объемам, более адекватно отражающим основные особенности микроструктуры пористости, а также к применению усложненных моделей поляризации. Это, однако, требует отдельных обширных исследований. Наконец отметим, что объяснение причин большого разброса экспериментальных данных по эффективным модулям пористой пьезокерамики является актуальной проблемой, и ее решение, по-видимому, должно учитывать материаловедческие вопросы, отражающие основные этапы физико-технологических процессов изготовления пористых пьезокерамик.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда в рамках проекта № 22-11-00302 (<https://rscf.ru/project/22-11-00302/>) в Южном федеральном университете.

Литература

1. *Levassort F., Holc J., Ringgaard E., Bove T., Kosec M., Lethiecq M.* Fabrication, modelling and use of porous ceramics for ultrasonic transducer applications // *J. Electroceram.* 2007. Vol. 19. P. 127-139. <http://dx.doi.org/10.1007/s10832-007-9117-3>
2. *Ringgaard E., Lautzenhiser F., Bierregaard L.M., Zawada T., Molz E.* Development of porous piezoceramics for medical and sensor applications // *Materials.* 2015. Vol. 8. P. 8877-8889. <http://dx.doi.org/10.3390/ma8125498>
3. *Rybyanets A.N.* Porous piezoceramics: theory, technology, and properties // *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* 2011. Vol. 58. P. 1492-1507. <http://dx.doi.org/10.1109/TUFFC.2011.1968>
4. *Zeng T., Dong X.L., Chen S.H., Yang H.* Processing and piezoelectric properties of porous PZT ceramics // *Ceram. Int.* 2007. Vol. 33. P. 395-399. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ceramint.2005.09.022>
5. *Do T.B., Nasedkin A., Oganeyan P., Soloviev A.* Multilevel modeling of 1-3 piezoelectric energy harvester based on porous piezoceramics // *J. Appl. Comput. Mech.* 2023. Vol. 9. P. 763-774. <http://dx.doi.org/10.22055/jacm.2023.42264.3900>
6. *Nasedkin A.V., Oganeyan P.A., Soloviev A.N.* Analysis of Rosen type energy harvesting devices from porous piezoceramics with great longitudinal piezomodulus // *ZAMM.* 2021. Vol. 101. e202000129. <http://dx.doi.org/10.1002/zamm.202000129>
7. *Roscow J.I., Lewis R.W.C., Taylor J., Bowen C.R.* Modelling and fabrication of porous sandwich layer barium titanate with improved piezoelectric energy harvesting figures of merit // *Acta Mater.* 2017. Vol. 128. P. 207-217. <http://dx.doi.org/10.1016/j.actamat.2017.02.029>
8. *Roscow J.I., Zhang Y., Krašny M.J., Lewis R.W.C., Taylor J., Bowen C.R.* Freeze cast porous barium titanate for enhanced piezoelectric energy harvesting // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2018. Vol. 51. 225301. <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6463/aab81>
9. *Yan M., Xiao Z., Ye J., Yuan X., Li Z., Bowen C., Zhang Y., Zhang D.* Porous ferroelectric materials for energy technologies: current status and future perspectives // *Energy Environ. Sci.* 2021. Vol. 14. P. 6158-6190. <http://dx.doi.org/10.1039/d1ee03025f>

10. *Mercadelli E., Galassi C.* How to make porous piezoelectrics? Review on processing strategies // *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* 2021. Vol. 68. P. 217-228. <http://dx.doi.org/10.1109/TUFFC.2020.3006248>
11. *Tan J., Li Z.* Microstructures dielectric and piezoelectric properties of unannealed and annealed porous 0.36BiScO₃-0.64PbTiO₃ ceramics // *J. Mater. Sci.* 2016. Vol. 51. P. 5092-5103. <http://dx.doi.org/10.1007/s10853-016-9812-z>
12. *Yang A.K., Wang C.A., Guo R., Huang Y.* Microstructure and electrical properties of porous PZT ceramics fabricated by different methods // *J. Am. Ceram. Soc.* 2010. Vol. 93. P. 1984-1990. <http://dx.doi.org/10.1111/j.1551-2916.2010.03684.x>
13. *Zhang H.L., Li J.-F., Zhang B.-P.* Microstructure and electrical properties of porous PZT ceramics derived from different pore-forming agents // *Acta Mater.* 2007. Vol. 55. P. 171-181. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2006.07.032>
14. *Bowen C.R., Perry A., Lewis A.C.F., Kara H.* Processing and properties of porous piezoelectric materials with high hydrostatic figures of merit // *J. Eur. Ceram. Soc.* 2004. Vol. 24. P. 541-545. [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(03\)00194-8](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(03)00194-8)
15. *Lewis R.W.C., Dent A.C.E., Stevens R., Bowen C.R.* Microstructural modelling of the polarization and properties of porous ferroelectrics // *Smart Mater. Struct.* 2011. Vol. 20. 085002. <https://doi.org/10.1088/0964-1726/20/8/085002>
16. *Li J.F., Takagi K., Ono M., Pan W., Watanabe R., Almajid A., Taya M.* Fabrication and evaluation of porous piezoelectric ceramics and porosity-graded piezoelectric actuators // *J. Am. Ceram. Soc.* 2003. Vol. 86. P. 1094-1098. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2003.tb03430.x>
17. *Hikita K., Yamada K., Nishioka M., Ono M.* Piezoelectric properties of the porous PZT and the porous PZT composite with silicone rubber // *Ferroelectrics.* 1983. Vol. 49. P. 265-272. <https://doi.org/10.1080/00150198308244698>
18. *Nasedkin A.V., Shevtsova M.S.* Improved finite element approaches for modeling of porous piezocomposite materials with different connectivity // *Ferroelectrics and superconductors: Properties and applications* / Ed. I.A. Parinov. New York: Nova Science Publ., 2011. P. 231-254.
19. *Cheng J., Wang B., Du S.* A statistical model for predicting effective electroelastic properties of polycrystalline ferroelectric ceramics with aligned defects // *Int. J. Solids Struct.* 2000. Vol. 37. P. 4763-4781. [https://doi.org/10.1016/S0020-7683\(99\)00179-1](https://doi.org/10.1016/S0020-7683(99)00179-1)
20. *Landis C.M., Wang J., Sheng J.* Micro-electromechanical determination of the possible remanent strain and polarization states in polycrystalline ferroelectrics and the implications for phenomenological constitutive theories // *J. Intell. Mater. Syst. Struct.* 2004. Vol. 15. P. 513-525. <https://doi.org/10.1177/1045389X04041653>
21. *Schwaab H., Grunbichler H., Supancic P., Kamlah M.* Macroscopical non-linear material model for ferroelectric materials inside a hybrid finite element formulation // *Int. J. Solids Struct.* 2012. Vol. 49. P. 457-469. <https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2011.10.015>
22. *Shindo Y., Narita F., Hirama M.* Electromechanical field concentrations near the electrode tip in partially poled multilayer piezo-film actuators // *Smart Mater. Struct.* 2009. Vol. 18. 085020. <https://doi.org/10.1088/0964-1726/18/8/085020>
23. *Skaliukh A.S., Soloviev A.N., Oganessian P.A.* Modeling of piezoelectric elements with inhomogeneous polarization in ACELAN // *Ferroelectrics.* 2015. Vol. 483. P. 95-101. <https://doi.org/10.1080/00150193.2015.1059138>
24. *Stark S., Neumeister P., Balke H.* A hybrid phenomenological model for ferroelectroelastic ceramics. Part I: Single phased materials // *J. Mech. Phys. Solids.* 2016. Vol. 95. P. 774-804. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jmps.2016.02.015>
25. *Uetsuji Y., Hata T., Oka T., Kuramae H., Tsuchiya K.* Multiscale simulation of domain switching behavior in polycrystalline ferroelectric materials // *Comput. Mater. Sci.* 2015. Vol. 106. P. 100-110. <http://dx.doi.org/10.1016/j.commatsci.2015.03.035>
26. *Gerasimenko T.E., Kurbatova N.V., Nadolin D.K., Nasedkin A.V., Nasedkina A.A., Oganessian P.A., Skaliukh A.S., Soloviev A.N.* Homogenization of piezoelectric composites with internal structure and inhomogeneous polarization in ACELAN-COMPOS finite element package // *Wave Dynamics, Mechanics and Physics of Microstructured Metamaterials* / Ed. M.A. Sumbatyan. Springer Cham, 2019. P. 113-131. https://doi.org/10.1007/978-3-030-17470-5_8
27. *Martínez-Ayuso G., Friswell M.I., Khodaparast H.H., Roscow J.I., Bowen C.R.* Electric field distribution in porous piezoelectric materials during polarization // *Acta Mater.* 2019. Vol. 173. P. 332-341. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2019.04.021>
28. *Nan C.W., Weng G.J.* Influence of polarization orientation on the effective properties of piezoelectric composites // *J. Appl. Phys.* 2000. Vol. 88. P. 416-423. <https://doi.org/10.1063/1.373675>
29. *Наседкин А.В., Нассар М.Э.* Численный анализ эффективных свойств неоднородно поляризованной пористой пьезокерамики с легированными никелем стенками пор с учетом влияния объемных долей металла и пор // *Вычисл. мех. сплош. сред.* 2021. Т. 14, № 2. С. 190-202. <https://doi.org/10.7242/1999-6691/2021.14.2.16>
30. *Наседкин А.В., Шевцова М.С.* Моделирование эффективных модулей для различных типов пористых пьезокерамических материалов // *Вестник ДГТУ.* 2013. Т. 13, № 3-4. С. 16-26.
31. *Zhang Y., Roscow J., Lewis R., Khanbareh H., Topolov V.Y., Xie M., Bowen C.R.* Understanding the effect of porosity on the polarisation-field response of ferroelectric materials // *Acta Mater.* 2018. Vol. 154. P. 100-112. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2018.05.007>
32. *Odegard G.M.* Constitutive modeling of piezoelectric polymer composites // *Acta Mater.* 2004. Vol. 52. P. 5315-5330. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2004.07.037>
33. *Лехницкий С.Г.* Теория упругости анизотропного тела. М.: Наука, 1977. 416 с.
34. *Наседкин А.В., Наседкина А.А., Нассар М.Э.* Гомогенизация пористых пьезокомпозигов с экстремальными свойствами на границах пор методом эффективных модулей // *Известия РАН. МТТ.* 2020. № 6. С. 82-92. <https://doi.org/10.31857/S057232992005013X>
35. *Шермергор Т.Д.* Теория упругости микроненнооднородных сред. М.: Наука, 1977. 400 с.
36. *Bowen C.R., Dent A.C., Stevens R., Cain M.G., Avent A.* A new method to determine the un-poled elastic properties of ferroelectric materials // *Sci. Technol. Adv. Mater.* 2017. Vol. 18. P. 253-263. <https://doi.org/10.1080/14686996.2017.1302274>
37. *Dent A.C., Bowen C.R., Stevens R., Cain M.G., Stewart M.* Effective elastic properties for unpoled barium titanate // *J. Eur. Ceram. Soc.* 2007. Vol. 27. P. 3739-3743. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2007.02.031>
38. *Ikegami S., Ueda I., Nagata T.* Electromechanical properties of PbTiO₃ ceramics containing La and Mn // *J. Acoust. Soc. Am.* 1971. Vol. 50. P. 1060-1066. <https://doi.org/10.1121/1.1912729>

39. Nasedkin A., Nassar M.E. Numerical characterization of a piezoelectric composite with hollow metal fillers including new figures of merit, pore shape effects, and distinct piezoceramic types // *Int. J. Mech. Mater. Des.* 2022. Vol. 18. P. 611-631. <https://doi.org/10.1007/s10999-022-09595-9>
40. Topolov V.Y., Bowen C.R., Bisegna P. Piezo-active composites: Microgeometry–sensitivity relations. Springer Cham, 2018. 202 p. <https://doi.org/10.1007/978-3-319-93928-5>
41. Challagulla K.S., Venkatesh T.A. Electromechanical response of piezoelectric foams // *Acta Mater.* 2012. Vol. 60. P. 2111-2127. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2011.12.036>
42. Nguyen B.V., Challagulla K.S., Venkatesh T.A., Hadjiloizi D.A., Georgiades A.V. Effects of porosity distribution and porosity volume fraction on the electromechanical properties of 3-3 piezoelectric foams // *Smart Mater. Struct.* 2016. Vol. 25. 125028. <https://doi.org/10.1088/0964-1726/25/12/125028>

References

1. Levassort F., Holc J., Ringgaard E., Bove T., Kosec M., Lethiecq M. Fabrication, modelling and use of porous ceramics for ultrasonic transducer applications. *J. Electroceram.*, 2007, vol. 19, pp. 127-139. <http://dx.doi.org/10.1007/s10832-007-9117-3>
2. Ringgaard E., Lautzenhiser F., Bierregaard L.M., Zawada T., Molz E. Development of porous piezoceramics for medical and sensor applications. *Materials*, 2015, vol. 8, pp. 8877-8889. <http://dx.doi.org/10.3390/ma8125498>
3. Rybyanets A.N. Porous piezoceramics: theory, technology, and properties. *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*, 2011, vol. 58, pp. 1492-1507. <http://dx.doi.org/10.1109/TUFFC.2011.1968>
4. Zeng T., Dong X.L., Chen S.H., Yang H. Processing and piezoelectric properties of porous PZT ceramics. *Ceram. Int.*, 2007, vol. 33, pp. 395-399. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ceramint.2005.09.022>
5. Do T.B., Nasedkin A., Oganessian P., Soloviev A. Multilevel modeling of 1-3 piezoelectric energy harvester based on porous piezoceramics. *J. Appl. Comput. Mech.*, 2023, vol. 9, pp. 763-774. <http://dx.doi.org/10.22055/jacm.2023.42264.3900>
6. Nasedkin A.V., Oganessian P.A., Soloviev A.N. Analysis of Rosen type energy harvesting devices from porous piezoceramics with great longitudinal piezomodulus. *ZAMM*, 2021, vol. 101, e202000129. <http://dx.doi.org/10.1002/zamm.202000129>
7. Roscow J.I., Lewis R.W.C., Taylor J., Bowen C.R. Modelling and fabrication of porous sandwich layer barium titanate with improved piezoelectric energy harvesting figures of merit. *Acta Mater.*, 2017, vol. 128, pp. 207-217. <http://dx.doi.org/10.1016/j.actamat.2017.02.029>
8. Roscow J.I., Zhang Y., Krašny M.J., Lewis R.W.C., Taylor J., Bowen C.R. Freeze cast porous barium titanate for enhanced piezoelectric energy harvesting. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2018, vol. 51, 225301. <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6463/aabc81>
9. Yan M., Xiao Z., Ye J., Yuan X., Li Z., Bowen C., Zhang Y., Zhang D. Porous ferroelectric materials for energy technologies: current status and future perspectives. *Energy Environ. Sci.*, 2021, vol. 14, pp. 6158-6190. <http://dx.doi.org/10.1039/d1ee03025f>
10. Mercadelli E., Galassi C. How to make porous piezoelectrics? Review on processing strategies. *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.*, 2021, vol. 68, pp. 217-228. <http://dx.doi.org/10.1109/TUFFC.2020.3006248>
11. Tan J., Li Z. Microstructures dielectric and piezoelectric properties of unannealed and annealed porous 0.36BiScO₃-0.64PbTiO₃ ceramics. *J. Mater. Sci.*, 2016, vol. 51, pp. 5092-5103. <http://dx.doi.org/10.1007/s10853-016-9812-z>
12. Yang A.K., Wang C.A., Guo R., Huang Y. Microstructure and electrical properties of porous PZT ceramics fabricated by different methods. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2010, vol. 93, pp. 1984-1990. <http://dx.doi.org/10.1111/j.1551-2916.2010.03684.x>
13. Zhang H.L., Li J.-F., Zhang B.-P. Microstructure and electrical properties of porous PZT ceramics derived from different pore-forming agents. *Acta Mater.*, 2007, vol. 55, pp. 171-181. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2006.07.032>
14. Bowen C.R., Perry A., Lewis A.C.F., Kara H. Processing and properties of porous piezoelectric materials with high hydrostatic figures of merit. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2004, vol. 24, pp. 541-545. [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(03\)00194-8](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(03)00194-8)
15. Lewis R.W.C., Dent A.C.E., Stevens R., Bowen C.R. Microstructural modelling of the polarization and properties of porous ferroelectrics. *Smart Mater. Struct.*, 2011, vol. 20, 085002. <https://doi.org/10.1088/0964-1726/20/8/085002>
16. Li J.F., Takagi K., Ono M., Pan W., Watanabe R., Almajid A., Taya M. Fabrication and evaluation of porous piezoelectric ceramics and porosity-graded piezoelectric actuators. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2003, vol. 86, pp. 1094-1098. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2003.tb03430.x>
17. Hikita K., Yamada K., Nishioka M., Ono M. Piezoelectric properties of the porous PZT and the porous PZT composite with silicone rubber. *Ferroelectrics*, 1983, vol. 49, pp. 265-272. <https://doi.org/10.1080/00150198308244698>
18. Nasedkin A.V., Shevtsova M.S. Improved finite element approaches for modeling of porous piezocomposite materials with different connectivity. *Ferroelectrics and superconductors: Properties and applications*, ed. I.A. Parinov. New York, Nova Science Publ., 2011. Pp. 231-254.
19. Cheng J., Wang B., Du S. A statistical model for predicting effective electroelastic properties of polycrystalline ferroelectric ceramics with aligned defects. *Int. J. Solids Struct.*, 2000, vol. 37, pp. 4763-4781. [https://doi.org/10.1016/S0020-7683\(99\)00179-1](https://doi.org/10.1016/S0020-7683(99)00179-1)
20. Landis C.M., Wang J., Sheng J. Micro-electromechanical determination of the possible remanent strain and polarization states in polycrystalline ferroelectrics and the implications for phenomenological constitutive theories. *J. Intell. Mater. Syst. Struct.*, 2004, vol. 15, pp. 513-525. <https://doi.org/10.1177/1045389X04041653>
21. Schwaab H., Grunbichler H., Supancic P., Kamlah M. Macroscopical non-linear material model for ferroelectric materials inside a hybrid finite element formulation. *Int. J. Solids Struct.*, 2012, vol. 49, pp. 457-469. <https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2011.10.015>
22. Shindo Y., Narita F., Hiramama M. Electromechanical field concentrations near the electrode tip in partially poled multilayer piezo-film actuators. *Smart Mater. Struct.*, 2009, vol. 18, 085020. <https://doi.org/10.1088/0964-1726/18/8/085020>
23. Skaliukh A.S., Soloviev A.N., Oganessian P.A. Modeling of piezoelectric elements with inhomogeneous polarization in ACELAN. *Ferroelectrics*, 2015, vol. 483, pp. 95-101. <https://doi.org/10.1080/00150193.2015.1059138>
24. Stark S., Neumeister P., Balke H. A hybrid phenomenological model for ferroelectroelastic ceramics. Part I: Single phased materials. *J. Mech. Phys. Solids*, 2016, vol. 95, pp. 774-804. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jmps.2016.02.015>

25. Uetsuji Y., Hata T., Oka T., Kuramae H., Tsuchiya K. Multiscale simulation of domain switching behavior in polycrystalline ferroelectric materials. *Comput. Mater. Sci.*, 2015, vol. 106, pp. 100-110. <http://dx.doi.org/10.1016/j.commatsci.2015.03.035>
26. Gerasimenko T.E., Kurbatova N.V., Nadolin D.K., Nasedkin A.V., Nasedkina A.A., Oganessian P.A., Skaliukh A.S., Soloviev A.N. Homogenization of piezoelectric composites with internal structure and inhomogeneous polarization in ACELAN-COMPOS finite element package. *Wave Dynamics, Mechanics and Physics of Microstructured Metamaterials*, ed. M.A. Sumbatyan. Springer Cham, 2019. Pp. 113-131. https://doi.org/10.1007/978-3-030-17470-5_8
27. Martínez-Ayuso G., Friswell M.I., Khodaparast H.H., Roscow J.I., Bowen C.R. Electric field distribution in porous piezoelectric materials during polarization. *Acta Mater.*, 2019, vol. 173, pp. 332-341. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2019.04.021>
28. Nan C.W., Weng G.J. Influence of polarization orientation on the effective properties of piezoelectric composites. *J. Appl. Phys.*, 2000, vol. 88, pp. 416-423. <https://doi.org/10.1063/1.373675>
29. Nasedkin A.V., Nassar M.E. Numerical analysis of the effective properties of inhomogeneously polarized porous piezoelectric ceramics with Ni-doped pore walls considering the influence of volume fractions of metal and pores. *Vychisl. mekh. splosh. sred – Computational Continuum Mechanics*, 2021, vol. 14, no. 2, pp. 190-202. <https://doi.org/10.7242/1999-6691/2021.14.2.16>
30. Nasedkin A.V., Shevtsova M.S. Effective moduli simulation for various types of porous piezoceramic materials. *Vestnik Vestnik DGTU – Vestnik of Don State Technical University*, 2013, vol. 13, no. 3-4, pp. 16-26.
31. Zhang Y., Roscow J., Lewis R., Khanbareh H., Topolov V.Y., Xie M., Bowen C.R. Understanding the effect of porosity on the polarisation-field response of ferroelectric materials. *Acta Mater.*, 2018, vol. 154, pp. 100-112. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2018.05.007>
32. Odegard G.M. Constitutive modeling of piezoelectric polymer composites. *Acta Mater.*, 2004, vol. 52, pp. 5315-5330. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2004.07.037>
33. Lekhnitskii S.G. *Theory of elasticity of an anisotropic elastic body*. Holden-Day, San Francisco, CA, 1963. 404 p.
34. Nasedkin A.V., Nasedkina A.A., Nassar M.E. Homogenization of porous piezocomposites with extreme properties at pore boundaries by effective moduli method. *Mech. Solids*, 2020, vol. 55, pp. 827-836. <https://doi.org/10.3103/S0025654420050131>
35. Shermegor T.D. *Teoriya uprugosti mikroneodnorodnykh sred* [The theory of elasticity of microinhomogeneous environments]. Moscow, Nauka, 1977. 400 p.
36. Bowen C.R., Dent A.C., Stevens R., Cain M.G., Avent A. A new method to determine the un-poled elastic properties of ferroelectric materials. *Sci. Technol. Adv. Mater.*, 2017, vol. 18, pp. 253-263. <https://doi.org/10.1080/14686996.2017.1302274>
37. Dent A.C., Bowen C.R., Stevens R., Cain M.G., Stewart M. Effective elastic properties for unpoled barium titanate. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2007, vol. 27, pp. 3739-3743. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2007.02.031>
38. Ikegami S., Ueda I., Nagata T. Electromechanical properties of PbTiO₃ ceramics containing La and Mn. *J. Acoust. Soc. Am.*, 1971, vol. 50, pp. 1060-1066. <https://doi.org/10.1121/1.1912729>
39. Nasedkin A., Nassar M.E. Numerical characterization of a piezoelectric composite with hollow metal fillers including new figures of merit, pore shape effects, and distinct piezoceramic types. *Int. J. Mech. Mater. Des.*, 2022, vol. 18, pp. 611-631. <https://doi.org/10.1007/s10999-022-09595-9>
40. Topolov V.Y., Bowen C.R., Bisegna P. *Piezo-active composites: Microgeometry–sensitivity relations*. Springer Cham, 2018. 202 p. <https://doi.org/10.1007/978-3-319-93928-5>
41. Challagulla K.S., Venkatesh T.A. Electromechanical response of piezoelectric foams. *Acta Mater.*, 2012, vol. 60, pp. 2111-2127. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2011.12.036>
42. Nguyen B.V., Challagulla K.S., Venkatesh T.A., Hadjiloi D.A., Georgiades A.V. Effects of porosity distribution and porosity volume fraction on the electromechanical properties of 3-3 piezoelectric foams. *Smart Mater. Struct.*, 2016, vol. 25, 125028. <https://doi.org/10.1088/0964-1726/25/12/125028>

Поступила в редакцию 01.06.2023; после доработки 11.08.2023; принята к опубликованию 19.08.2023

Сведения об авторах

Наседкин Андрей Викторович, дфмн, проф., зав. каф., Южный федеральный университет (ЮФУ), 344090, г. Ростов-на-Дону, ул. Мильчакова, д. 8а; e-mail: nasedkin@math.sfedu.ru

Наседкина Анна Андреевна, кфмн, доц., ЮФУ; e-mail: aanasedkina@sfedu.ru

Толмачева Яна Владимировна, асп., ЮФУ; e-mail: ymolchanova@sfedu.ru