УДК 538.9

А.В. Белоконь, А.С. Скалиух

ФГОУ ВПО «Южный федеральный университет» (Ростов-на-Дону)

ОБ ОПРЕДЕЛЯЮЩИХ СООТНОШЕНИЯХ В ТРЕХМЕРНЫХ МОДЕЛЯХ ПОЛЯРИЗАЦИИ

Abstract

The three-dimensional model of two-level continuous medium, allowing building three-dimensional constitutive equations between the polarization and electric field for polycrystalline ferroelectric materials as a system of ordinary differential equations is offered. Using the theory of Veisse and statistic Boltzmann the limited polarization in the particle of continuous medium of the first level is obtained. Taking into account the power losses at break pinning size, some power expression is obtained. That expression gives the possibility to obtain the system of partial differential equations. Symmetry of tensor of instantaneous permittivity allows transforming it to the system of ordinary differential equations, being the constitutive equations in differential form.

При разработке активных пьезокерамических структур одной из актуальных задач является проблема создания эффективных математических моделей необратимых процессов поляризации сегнетокерамических материалов, описывающих нелинейные процессы. Существует несколько подходов построения таких моделей, среди которых можно упомянуть методы теории пластичности [1], ориентационные модели [2], модели, связанные с методом Прейзаха [3]. Такие модели позволяют находить поля предварительной поляризации и остаточной деформации сегнетокерамических материалов и вместе с теорией приращения рассчитывать любые преобразователи с активными неоднородно поляризованными сегнетокерамическими элементами.

В настоящей работе предложена одна трехмерная модель двухуровневой сплошной среды, позволяющая построить трехмерные определяющие соотношения для поликристаллических сегнетоэлектрических материалов в виде системы обыкновенных дифференциальных уравнений.

Вывод предельной зависимости

Под частицей понимается бесконечно малый объем по сравнению с основным телом, содержащий в себе достаточно большое количество кристаллитов и, как следствие этого, – доменов. Каждая материальная частица макроконтинуума, который рассматривается как континуум первого уровня U_1, с учетом микроструктуры рассматриваемого материала представляет собой микроконтинуум или континуум второго уровня U_2. Микроструктура может быть представлена сегнетоэлектрическими доменами, под которыми будем понимать бесконечно малый по сравнению с частицей куб, получивший вследствие структурного фазового перехода спонтанную поляризацию p_s. Вектор спонтанной поляризации частицы уровня U_2 можно выразить в виде

$$\mathbf{p_s} = p_s \mathbf{e},$$

где p_s – величина, а $\mathbf{e}$ – единичный вектор направления спонтанной поляризации сегнетоэлектрика. Направление спонтанной поляризации отдельного домена можно изменить приложенным электрическим полем, но только в направлении соответствующих кристаллографических осей согласно классу симметрии данного сегнетоэлектрика. Такая реориентация осуществляется не произвольным полем, а лишь превышающим пороговый уровень, носящий название коэрцитивного поля.

Состояние, в котором частица континуума U_1 имеет хаотически ориентированные сегнетоэлектрические домены, будем называть начальным или неполяризованным и считать равной нулю ее поляризацию. Если на такую частицу воздействует электрическое поле, то ее поляризация равносильна средней равнодействующей входящих в нее доменов. Желая оценить количественно поляризованное состояние частицы континуума уровня U_1 путем учета поляризации каждой частицы континуума уровня U_2, мы приходим к понятию усреднения над совокупностью поляризаций доменов. Операцию усреднения будем обозначать $<\ldots>$. Будем также обозначать объем частицы континуума U_1 через $d\Omega$, а объем частицы континуума U_2 через $d\omega$, причем $d\Omega = \text{mes}\,\omega = \cup\,\omega$. Тот факт, что доменов рассматривается огромное количество, позволяет рассматривать их распределение в частице континуума уровня U_1 непрерывным образом, а простое суммирование заменить интегрированием. Тогда под поляризацией частицы континуума уровня U_1 понимается средняя сумма спонтанных поляризаций, входящих в нее доменов:

$$\mathbf{P_0} \equiv <\mathbf{p_S}> = \frac{p_s}{N}\sum_k (\mathbf{e})_k = \frac{p_s}{\text{mes}\,\omega}\int_\omega (\mathbf{e})\,d\omega .$$

Пусть частица континуума уровня U_1 характеризуется координатами (x^1, x^2, x^3), а частица континуума уровня U_2 (т.е. положение домена в этой частице) характеризуется сферическими координатами (ρ, φ, ψ). Легко видеть, что домены с разной координатой ρ, но одинаковыми координатами φ, ψ, дают один и тот же вклад в общую поляризацию частицы континуума уровня U_1. Это позволяет проводить усреднение не по всем трем координатам (ρ, φ, ψ), а только по двум последним. Для подсчета поляризации достаточно ввести в рассмотрение единичную сферу с центром в точке (x^1, x^2, x^3), направление оси спонтанной поляризации домена будет характеризоваться двумя углами φ, ψ, а операция усреднения сведется к интегрированию по этой сфере. Элементарные рассуждения показывают, что в начальном состоянии поляризация, полученная операцией усреднения спонтанных поляризаций всех доменов, равна нулю.

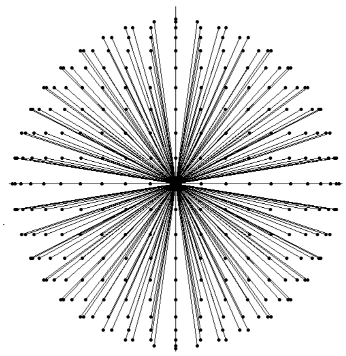

Рис. 1. Схема спонтанной поляризации домена

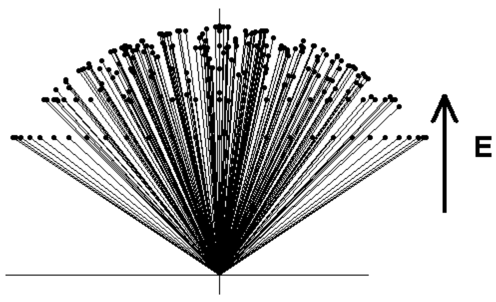

Рис. 2. Схема поляризации домена в электрическом поле

Действительно, в силу непрерывного и равномерного распределения доменов каждому из них найдется противоположно направленный, что и доказывает утверждение. Поставим в соответствие каждому домену отрезок, коллинеарный направлению его оси спонтанной поляризации. Все отрезки могут быть сведены в одну точку, как это показано на рис. 1. Прикладывая к частице электрическое поле, получаем, что домены меняют ориентацию спонтанной поляризации и располагаются в некотором конусе, угол раствора которого зависит от типа сегнетоэлектрика, как это изображено на рис. 2. Электрическое поле, действующее на частицу континуума уровня U_1, являясь первопричиной возникновения поляризации, считается неизменным внутри частицы, т.е. переключения доменов на него не оказывают влияния. Эта неизменность означает также, что его усредненное значение равно самому полю. Количество доменов, находящихся в частице континуума уровня U_1, равно числу отрезков, символизирующих заданную деформацию и выходящих на поверхность единичной сферы. В начальном состоянии число отрезков, выходящих на элемент сферы, пропорционально площади элемента,

$$dN = c\,dS\,,$$

где c – некоторый коэффициент. Принимаются два основных положения, на которых строится модель:

1. По теории Вейсса на процесс переключения доменов в частице континуума уровня U_1 оказывает влияние не истинное электрическое поле, а «эффективное» поле: $\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} = \mathbf{E} + \alpha\mathbf{P_0}$.
2. Согласно теореме Больцмана можно заключить, что в консервативном поле распределение осей доменов в частице отличается от их распределения при отсутствии этого поля на величину $e^{-\frac{U}{kT}}$, где U – потенциальная энергия диполя (домена) в поле $U = -\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \cdot \mathbf{p_s}$; k – постоянная Больцмана, T – температура.

В текущем состоянии количество доменов, выходящих своими осями на элемент сферы dS, будет определяться по формуле

$$dN = ce^{-\frac{U}{kT}}dS\,,$$

и для подсчета всех переключившихся доменов в частице достаточно провести интегрирование по сфере

$$N = c\int e^{\frac{\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}\cdot\mathbf{p_s}}{kT}}dS = c\int\limits_0^{2\pi} d\varphi \int\limits_0^{\pi} e^{\frac{\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}\cdot\mathbf{p_s}}{kT}} \sin\psi\, d\psi\,.$$

Для подсчета полной поляризации частицы континуума уровня U_1 надо провести усреднение спонтанных поляризаций доменов, составляющих частицу

$$\mathbf{P_0} = \frac{\mathbf{P_0^*}}{N} = \frac{c}{N}\int e^{\frac{\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}\cdot\mathbf{p_s}}{kT}}\mathbf{p_s}dS = c\int\limits_0^{2\pi} d\varphi \int\limits_0^{\pi} e^{\frac{\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}\cdot\mathbf{p_s}}{kT}}\mathbf{p_s} \sin\psi\, d\psi\,.$$

Подставляя сюда выражение для N, получим

$$\mathbf{P_0} = \frac{c\int\limits_0^{2\pi} d\varphi \int\limits_0^{\pi} e^{\frac{\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}\cdot\mathbf{p_s}}{kT}}\mathbf{p_s} \sin\psi\, d\psi}{c\int\limits_0^{2\pi} d\varphi \int\limits_0^{\pi} e^{\frac{\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}\cdot\mathbf{p_s}}{kT}} \sin\psi\, d\psi}\,.$$

Выведенная формула определяет поляризацию после переключений всех доменов в частице континуума уровня U_1 при условии, что переключения доменов не зависят от величины эффективного поля, между ними нет никаких электрических и механических взаимодействий и, кроме того, отсутствуют любые другие механизмы, препятствующие их переключению. Поэтому полученное выражение определяет наиболее выгодный случай переключения доменов в эффективном поле и носит название «предельного», или «ангистерезисного», а для обозначения этой поляризации применяется символ «∞».

$$\mathbf{P}_\infty = \frac{c\int\limits_0^{2\pi} d\varphi \int\limits_0^{\pi} e^{\frac{\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}\cdot\mathbf{p_s}}{kT}}\, \mathbf{p_s} \sin\psi\, d\psi}{c\int\limits_0^{2\pi} d\varphi \int\limits_0^{\pi} e^{\frac{\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}\cdot\mathbf{p_s}}{kT}} \sin\psi\, d\psi}.$$

Вывод энергетического соотношения

В реальных процессах наблюдаются не только переключения доменов и, как следствие этого, движение доменных стенок, но и ситуации, когда электрическое поле деформирует стенки доменов, но не перемещает их. Энергия, необходимая для поворота домена, равна разности энергий домена в двух состояниях:

$$\Delta U_{\text{pin}} = c_*(\mathbf{p}_\mathbf{s}^{'} - \mathbf{p_s}) \cdot d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}.$$

Постоянную c_* найдем из условия переключения домена на максимальный угол, т.е. на 180^0,

$$U_\pi = 2c_* p_s \,|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \,|.$$

Полагая, что подобные соотношения справедливы для любого домена, усредним его по объему частицы континуума уровня U_1, получим

$$< U_\pi = -2 < c_* p_s \,|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \,|>= U_\pi.$$

Тогда энергию слома запирающей стенки можно выразить в виде

$$\Delta U_{\text{pin}} = \frac{< U_\pi > d\mathbf{p_s} \cdot d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}{2 p_s \,|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \,|},$$

где $d\mathbf{p}_s = \mathbf{p}_s^{'} - \mathbf{p}_s$. В дальнейшем нас будет интересовать средняя по объему частицы энергия, поэтому получаем

$$< \Delta U_{\text{pin}} >= \left\langle \frac{< U_\pi > d\mathbf{p_s} \cdot d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}{2 p_s \,|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \,|} \right\rangle = \frac{< U_\pi > d\mathbf{P_0} \cdot d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}{2 p_s \,|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \,|}.$$

Ясно, что механизмы запирания в разных точках керамики будут различны, поэтому количество запертых стенок будет меняться от одной частицы к другой. Пусть n обозначает среднюю плотность запертых стенок доменов в частице, для которых энергия слома выражается по предыдущей формуле. Тогда энергия, затрачиваемая на слом запертых сторон в частице, чтобы вызвать поляризацию $d\mathbf{P_0}$, определяется как

$$< \Delta U_{\text{pin}} >= n \frac{< U_\pi > d\mathbf{P_0} \cdot d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}{2 p_s \,|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \,|}.$$

Полная же энергия в произвольном макрообъеме Ω находится интегрированием:

$$\Delta U = \int\limits_\Omega < \Delta U_{pin} > d\Omega = \int\limits_\Omega n \frac{< U_\pi > d\mathbf{P_0} \cdot d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}{2 p_s \,|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \,|} d\Omega.$$

Лемма. Для любого приращения эффективного электрического поля тензор $\dfrac{d\mathbf{P_0}}{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}$ является симметричным.

Доказательство вытекает из положительности квадратичной формы $d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \cdot \dfrac{d\mathbf{P_0}}{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}} \cdot d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}$, вытекающей, в свою очередь, из положительности подинтегрального выражения в предыдущем равенстве (энергия для слома запирающих сторон всегда положительна, даже если изменить направление процесса).

Далее оценим работу поля в поляризационном процессе, которая в общем случае может быть представлена следующей зависимостью:

$$\Delta A = \int_{\Omega} \mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \cdot d\mathbf{P} d\Omega \ .$$

Очевидны следующие преобразования:

$$\Delta A = \int_{\Omega} d(\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \cdot \mathbf{P}) d\Omega - \int_{\Omega} \mathbf{P} \cdot d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} d\Omega = \Delta A_1 + \Delta A_2 \, .$$

Первый интеграл представляют собой полный дифференциал работы эффективного электрического поля. Если рассмотреть циклический процесс, когда полная и пластическая поляризация возвращаются к своим начальным значениям, то

$$A_1 = \oint \Delta A_1 = 0 \, ,$$

а работа в круговом процессе за один цикл

$$A = \oint \Delta A = \oint \Delta A_1 + \oint \Delta A_2 = \oint \Delta A_2 \ .$$

Поэтому за потери в циклическом процессе отвечает второй интеграл. При этом если вместо полной поляризации взять остаточную, то погрешность будет ничтожно мала. Действительно, остаточная поляризация на порядок больше индуцированной, поэтому полная поляризация почти равна остаточной.

В идеальном случае, когда рассматривается движение стенок без их взаимного влияния, имеем «идеальные» потери, описываемые предыдущим выражением, в котором надо заменить $\mathbf{P}_0$ на $\mathbf{P}_\infty$, т.е.

$$\Delta A_\infty = \int_{\Omega} \mathbf{P}_\infty \cdot d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} d\Omega \ .$$

Теперь можно сформулировать энергетический баланс: реальные потери складываются из потерь в идеальном (предельном) случае и затраты энергии, необходимой для слома запертых сторон доменов, $\Delta A_2 = \Delta A_\infty + \Delta U$.

Вывод системы дифференциальных уравнений

Учитывая произвольность области интегрирования и $d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}$, можно получить следующее равенство:

$$\mathbf{P_0} = \mathbf{P}_\infty - k \frac{d\mathbf{P_0}}{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}} \cdot \frac{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}{|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}\, |} \, ,$$

где $k = n \dfrac{< U_\pi >}{2 p_s}$. Переходя к дифференцированию по реальному полю, после некоторых преобразований получаем

$$\mathbf{P}_\infty - \mathbf{P_0} = \left[k \frac{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}{|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}\, |} - \alpha(\mathbf{P}_\infty - \mathbf{P_0}) \right] \cdot \frac{d\mathbf{P_0}}{d\mathbf{E}} \, .$$

Теорема. Для любого приращения электрического поля $\mathbf{E}$ тензор $\dfrac{d\mathbf{P_0}}{d\mathbf{E}}$ является симметричным тензором второго ранга.

Доказательство элементарно, если воспользоваться условиями леммы. Эта теорема позволяет переписать предыдущую систему уравнений в виде

$$\mathbf{P}_\infty - \mathbf{P_0} = \frac{d\mathbf{P_0}}{d\mathbf{E}} \cdot \left[k \frac{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}{|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \,|} - \alpha(\mathbf{P}_\infty - \mathbf{P_0}) \right].$$

Для дальнейшего вводится вектор полной поляризации

$$\mathbf{P} = \mathbf{P_e} + \mathbf{P_0},$$

а индуцированная поляризация представляется как часть разности между максимально возможной и остаточной,

$$\mathbf{P_e} = c(\mathbf{P}_\infty - \mathbf{P_0}).$$

Переходя к дифференцированию по реальному электрическому полю, после некоторых преобразований получаем

$$\left(\mathbf{I} + \frac{c\alpha}{1-c} \frac{d\mathbf{P}_\infty}{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}} \right) \cdot (\mathbf{P}_\infty - \mathbf{P}) = \frac{d\mathbf{P}}{d\mathbf{E}} \cdot \left[k \frac{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}{|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \,|} - \frac{\alpha}{1-c} (\mathbf{P}_\infty - \mathbf{P}) \right] - c \frac{d\mathbf{P}_\infty}{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}} \cdot \left[k \frac{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}{|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \,|} - \frac{\alpha}{1-c} (\mathbf{P}_\infty - \mathbf{P}) \right]$$

Введем следующие обозначения:

$$\mathbf{P}_\infty - \mathbf{P_0} = \mathbf{A}, \quad k \frac{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}}{|\, d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}} \,|} - \frac{\alpha}{1-c} \mathbf{A} = \mathbf{N}, \quad \mathbf{I} + \frac{c\alpha}{1-c} \frac{d\mathbf{P}_\infty}{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}} = \mathbf{B}, \quad c \frac{d\mathbf{P}_\infty}{d\mathbf{E}^{\mathbf{ef}}} = \mathbf{D}, \quad \mathbf{B} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{D} \cdot \mathbf{N} = \mathbf{b}.$$

Тогда систему уравнений можно переписать в виде

$$\frac{d\mathbf{P}}{d\mathbf{E}} \cdot \mathbf{N} = \mathbf{b},$$

что в декартовой системе координат можно представить как

$$\begin{cases} \dfrac{\partial P_1}{\partial E_1} N_1 + \dfrac{\partial P_1}{\partial E_2} N_2 + \dfrac{\partial P_1}{\partial E_3} N_3 = b_{1,} \\ \dfrac{\partial P_2}{\partial E_1} N_1 + \dfrac{\partial P_2}{\partial E_2} N_2 + \dfrac{\partial P_2}{\partial E_3} N_3 = b_2, \\ \dfrac{\partial P_3}{\partial E_1} N_1 + \dfrac{\partial P_3}{\partial E_2} N_2 + \dfrac{\partial P_3}{\partial E_3} N_3 = b_3. \end{cases}$$

Полученная система является квазилинейной и может быть сведена к системе обыкновенных дифференциальных уравнений [4]:

$$\begin{cases} \dfrac{dE_1}{ds} = \dfrac{N_1}{\sqrt{N_1^2 + N_2^2 + N_3^2}}, \quad \dfrac{dE_2}{ds} = \dfrac{N_2}{\sqrt{N_1^2 + N_2^2 + N_3^2}}, \quad \dfrac{dE_3}{ds} = \dfrac{N_3}{\sqrt{N_1^2 + N_2^2 + N_3^2}}, \\ \dfrac{dP_1}{ds} = \dfrac{b_1}{\sqrt{N_1^2 + N_2^2 + N_3^2}}, \quad \dfrac{dP_2}{ds} = \dfrac{b_2}{\sqrt{N_1^2 + N_2^2 + N_3^2}}, \quad \dfrac{dP_3}{ds} = \dfrac{b_3}{\sqrt{N_1^2 + N_2^2 + N_3^2}}. \end{cases}$$

Если направление электрического поля не меняется, а в качестве параметра взять его модуль, то первые три уравнения можно не рассматривать, остальные же описывают приращение компонент поляризации в зависимости от модуля поля. Если к тому же ось ординат направить по направлению поля, получим одномерную модель, которая в точности совпадает с моделью, разработанной авторами работы [5].

Полученная система может быть использована для формулировки определяющих соотношений в приращениях.

Библиографический список

1. Landis C.M. Fully coupled, multi-axial, symmetric constitutive laws for polycrystalline ferroelectric ceramics / C.M. Landis// Journal of the Mechanics and Physics of Solids. – 2002– № 50. – P. 127–152.

2. Chen X. Micromechanics simulation of ferroelectric polarization switching / X. Chen, D.N. Fang, R.C. Hwang // Acta mater. – 1997. – Vol. 45. – № 8. – P. 3181–3189.

3. Fuzi, J. Two Preisach type vector hysteresis models / J. Fuzi// Physica B. – 2004. – № 343 – P. 159–163.

4. Петровский И.Г. Лекции по теории обыкновенных дифференциальных уравнений/ И.Г. Петровский. – Наука, 1970. – 280 с.

5. Smith R.C. Domain Wall Model for Hysteresis in Piezoelectric Materials / R.C. Smith, Z. A. Ounaies // Journal of Intelligent Material Systems and Structures. –2000. – Vol. 11. – № 1. – P. 62–79.

Авторы выражают благодарность РФФИ за финансовую поддержку.

Получено 2.09.2008