

## MODELOS CONSTITUTIVOS NO LINEALES PARA MATERIALES FERROELÉCTRICOS - PIEZOELÉCTRICOS

**Ahmad E. Guennam y Bibiana M. Luccioni**

*CONICET, Instituto de Estructuras "Ing. Arturo M. Guzmán", Universidad Nacional de Tucumán, Av.  
Roca 1800, T4000ACR San Miguel de Tucumán, Argentina, eguennam@herrera.unt.edu.ar,  
<http://www.herrera.unt.edu.ar/ies>*

**Palabras Clave:** Granos, Conmutación de dominios, polarización espontánea, ferroeléctrico.

**Resumen.** La comprensión y caracterización del comportamiento de los materiales ferroeléctricos-piezoeléctricos mas allá del límite de comportamiento lineal, permiten extender el rango de trabajo con una consecuente mejora en el aprovechamiento de los mismos. Esto se debe a que, ampliando el rango de operación, los niveles de acoplamiento aumentan considerablemente respecto de los alcanzados en el rango lineal.

Motivado en esta observación, el presente trabajo presenta el estudio de modelos que permiten tener en cuenta la influencia de la conmutación de la polarización de dominios sobre las propiedades materiales y, en particular, sobre el acoplamiento electromecánico. Se presenta la implementación de dos modelos, uno fenomenológico y otro microelectromecánico. Dichos modelos permiten simular el comportamiento de materiales ferroeléctricos de interés práctico y captar aspectos característicos de su comportamiento. Se presentan curvas de histéresis, conmutación y deformaciones remanentes que se corresponden con observaciones experimentales.

## 1. INTRODUCCIÓN

En la actualidad, las cerámicas ferroeléctricas encuentran aplicación en diversas ramas tecnológicas. Por ejemplo, en sistemas microelectromecánicos, transductores, actuadores y sistemas de microposicionamiento.

Cuando los citados materiales ferroeléctricos se someten a elevados campos eléctricos o de tensiones, tienen lugar importantes fenómenos no lineales. Durante la fabricación de dispositivos con este tipo de materiales, se usan elevados niveles de campo eléctrico para generar el patrón de polarización inicial deseado y requerido por la aplicación y tipo de dispositivo. Durante la vida de servicio, los elevados niveles de campos electromecánicos pueden aparecer ya sea porque se desea extender el rango operacional de los dispositivos o bien como consecuencia de concentraciones locales relacionadas con la topología de los mismos.

Existen muchas aplicaciones de materiales piezoeléctricos-ferroeléctricos de interés práctico en las que son preponderantes los campos electromecánicos no uniformes. Ciertas configuraciones tales como apilados de múltiples discos o capas, electrodos interdigitales u otras formas complejas generan tensiones mecánicas y gradientes de potencial eléctrico elevados en zonas de discontinuidades, bordes o cambios de secciones, esquinas y puntas de electrodos.

El análisis de factibilidad y desempeño de dispositivos fabricados con materiales ferroeléctricos requiere medios para la predicción de los campos electromecánicos inhomogéneos en tales sistemas. En la mayoría de los casos, es sumamente difícil, cuando no imposible, conocer por medio de análisis simples, el patrón de polarización inicial.

Todo esto indica que la comprensión y capacidad de modelaje de fenómenos no lineales, en aplicaciones de materiales ferroeléctricos, resulta de gran utilidad tanto para el diseño, la modelación de las fases de construcción de las estructuras y dispositivos, como así también en simulaciones del funcionamiento durante la vida de servicio. Por lo tanto, son de gran utilidad los modelos constitutivos robustos y confiables, que capturen cuantitativamente los aspectos fundamentales del comportamiento de este tipo de materiales (Pathak y McMeeking, 2008).

## 2. BASE CONCEPTUAL MATERIAL

El comportamiento material es consecuencia de los fenómenos que ocurren a nivel microestructural. Para el estudio de un modelo constitutivo destinado a modelar dicho comportamiento, resulta útil explicar los fenómenos más relevantes que ocurren a nivel de la estructura cristalina del material.

En las aplicaciones tecnológicas de materiales ferroeléctricos es muy popular el uso de titanato de Bario  $PbTiO_3$  y Zirconato Titanato de Plomo  $Pb(Zr, Ti)O_3$  (PZT), cuya estructura cristalina es idéntica a la perovskita, esquematizada en la figura 1.

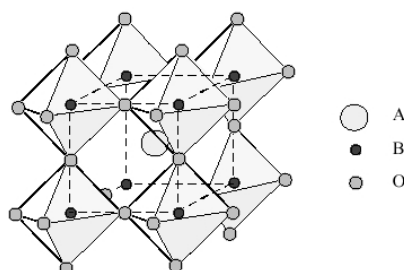


Figura 1: Estructura de la perovskita

Estos materiales, en la fase paraeléctrica, presentan una estructura cúbica, con el ión de Titanio en el centro, como se muestra a la izquierda de la figura 2. En este estado la celda posee alto nivel de simetría. En la fase ferroeléctrica, el ión central migra a una de las posiciones fijadas por los ejes cristalográficos, en consecuencia se generan deformaciones y polarizaciones que se denominan espontáneas. Se denomina variante cristalina, a cada una de las posibles configuraciones de las celdas unitarias que surgen al orientarse el ión de Titanio en cada una de las direcciones cristalográficas. De esta manera, la fase cúbica puede pasar a una configuración tetragonal o a una rombohédrica, con lo que se dice que disminuye el grado de simetría. La posición del ión central de Titanio está relacionada directamente con la polarización del material y la distorsión de la celda. En la fase ferroeléctrica, el movimiento del ion de Titanio de un eje cristalográfico a otro se denomina conmutación.

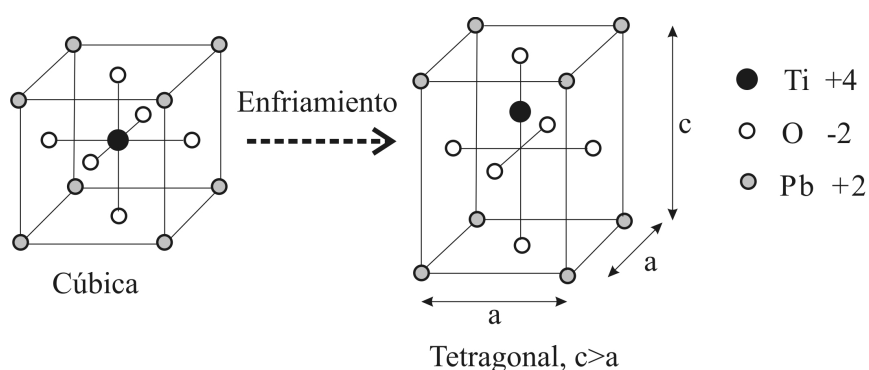


Figura 2: Celda unitaria de PZT. Pasaje de Cúbica a Tetragonal al enfriarse por debajo de la temperatura de Curie.

Por lo general, las cerámicas ferroeléctricas están formadas por una colección de granos. Antes de ser polarizadas, la red cristalina dentro de cada grano tiene zonas en las que las celdas están polarizadas en la misma dirección y se diferencian a su vez de las vecinas. Estas regiones se denominan dominios y en un material virgen, se orientan aleatoriamente. Esto da lugar a un efecto macroscópico de polarización y deformaciones remanentes nulas.

Cuando se aplica un campo eléctrico externo, dichos dominios se orientan originando polarización y deformación macroscópicas.

El nombre ferroeléctrico se utiliza por analogía con el comportamiento exhibido por los materiales ferromagnéticos cuando se someten a campos magnéticos variables. La figura 3 muestra curvas de deformación y desplazamiento eléctrico obtenidas experimentalmente en probetas de PZT-5H sometidas a un campo eléctrico cíclico. Allí se observa que para valores bajos de campo eléctrico, las deformaciones son prácticamente nulas. Sin embargo, una vez que el campo eléctrico alcanza un valor crítico, el material se polariza en la dirección del campo eléctrico. En coincidencia, aparece el acoplamiento electromecánico.

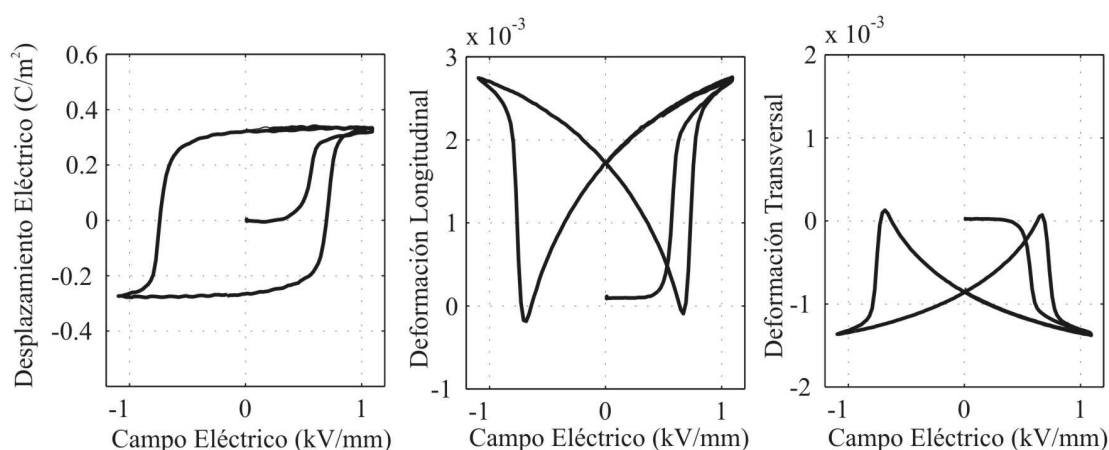


Figura 3: Respuesta de una probeta de PZT-5H a un campo eléctrico cíclico (Ghandi, 1998).

En un material ferroeléctrico, la conmutación de dominios produce deformaciones y polarización remanentes. Cuando las cargas aplicadas (campo eléctrico o tensiones mecánicas) no pueden producir más conmutaciones, el material alcanza un estado de saturación. Por otra parte, el proceso de conmutación conserva el volumen. Según Hwang et al. (1995), la conmutación se produce cuando el trabajo realizado por los campos locales, durante un evento de conmutación dado, excede el valor crítico.

La región que separa dos dominios se denomina pared de dominio. La pared que separa dominios en los que la polarización es opuesta se denomina pared  $180^\circ$  y el resto de las paredes se denominan no- $180^\circ$ . En el caso de fase tetragonal las paredes no- $180^\circ$  son paredes de  $90^\circ$ , mientras que para la fase romboédrica las paredes no- $180^\circ$  pueden ser de  $71^\circ$  o de  $109^\circ$ . La celda unitaria de una estructura cristalina tetragonal es un prisma recto de base cuadrada de lado  $a$  y altura  $c$ , con  $c > a$  (Figura 2). Se denomina *eje c* al eje cristalográfico en el que se encuentra el ión de Titanio.

Cuando se produce conmutación, se dice que hay movimiento de las paredes de dominio. Los cambios en la polarización están afectados tanto por el movimiento de las paredes de dominio a  $180^\circ$  como por las no- $180^\circ$ . Mientras que los cambios en las deformaciones sólo están afectados por el movimiento de las paredes no- $180^\circ$ . Los campos eléctricos producen movimientos de paredes de dominio del tipo  $180^\circ$  y también del tipo no- $180^\circ$ . Las tensiones mecánicas producen sólo movimiento de las paredes tipo no- $180^\circ$ , esto se muestra en la figura 4.

En este trabajo se considerará que las configuraciones de baja simetría corresponden exclusivamente a la fase tetragonal, es decir con conmutaciones de  $90^\circ$  y  $180^\circ$ . Sin embargo, muchas de las consideraciones pueden ser extendidas al caso de otros tipos de cristales, como por ejemplo romboédricos, siendo necesario incluir consideraciones particulares para cada caso.

### 3. MODELOS CONSTITUTIVOS

En general, el modelado de la respuesta constitutiva ferroeléctrica no lineal presenta grandes desafíos. Como puede observarse en la figura 3, estos materiales presentan, además del acoplamiento electromecánico, fenómenos como histéresis, memoria, anisotropía y saturación.

Las aplicaciones tecnológicas de piezocerámicos basan los cálculos y predicciones en propiedades constitutivas macroscópicas.

En términos generales, las leyes constitutivas deben representar la respuesta en función de la historia de carga. En particular, para el caso de materiales ferroeléctricos se busca la historia de

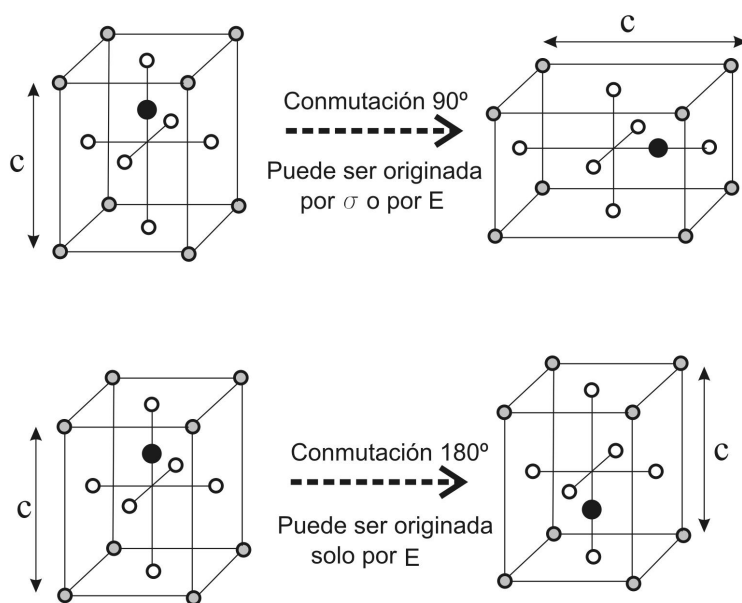


Figura 4: Conmutaciones en PZT.

las deformaciones y desplazamiento eléctrico dados por la historia de las tensiones mecánicas y campo eléctrico.

En búsqueda de modelos constitutivos que aborden este tema, se puede encontrar en la literatura un amplio espectro de propuestas y trabajos relacionados. Los primeros estudios relativos a la conmutación de dominios en materiales ferroeléctricos estaban basados en la hipótesis de que cada grano o cristal podía estar polarizado, solamente, en una de las variantes permitidas por la estructura cristalina (Hwang et al., 1998). Posteriormente aparecieron en la literatura propuestas inspiradas en modelos desarrollados para plasticidad de metales. Estos últimos contemplan conmutación incremental y, por lo tanto, pueden representar estados intermedios de polarización y deformaciones.

Siguiendo las explicaciones de Kushnir y Rabinovitch (2008), los modelos constitutivos se pueden clasificar en dos grupos: fenomenológicos y microelectromecánicos. La descomposición aditiva de las deformaciones y desplazamiento eléctrico en dos partes es común a ambos tipos de modelos (Landis, 2004). Por una parte, hay una respuesta piezoeléctrica lineal caracterizada por el desplazamiento reversible e independiente de la velocidad de aplicación de las cargas, de los iones de la celda unitaria. Y, por otro lado, aparece una respuesta ferroeléctrica no lineal caracterizada por la conmutación de la dirección de polarización espontánea y, para el caso de conmutación no-180°, por la reorientación del eje *c* de la celda unitaria (Figura 4). Las ecuaciones constitutivas 1 y 2 representan matemáticamente este aspecto,

$$\epsilon_{ij} = S_{ijkl}^E \sigma_{kl} + d_{kij} E_k + \epsilon_{ij}^R \tag{1}$$

$$D_i = d_{ikl} \sigma_{kl} + \kappa_{ij}^\sigma E_j + P_i^R \tag{2}$$

donde  $S_{ijkl}^E$  es el tensor de flexibilidad mecánica medido a campo eléctrico constante,  $\kappa_{ij}^\sigma$  es el tensor de permitividad dieléctrica medido a tensión mecánica constante,  $d_{kij}$  es el tensor piezoeléctrico,  $\epsilon_{ij}^R$  y  $P_i^R$  son los tensores de deformación y polarización remanentes respectivamente,  $\epsilon_{ij}$  es el tensor de deformación total,  $D_i$  es la polarización total,  $\sigma_{kl}$  es el tensor de tensiones y  $E_i$  es el campo eléctrico.

#### 4. MODELOS CONSTITUTIVOS FENOMENOLÓGICOS

Estos modelos se centran en representar la respuesta del material sin modelar explícitamente los mecanismos subyacentes (Ghandi, 1998). Usan resultados experimentales como bases y lineamientos y, de esta manera, se pueden calibrar para alcanzar correlación con los mismos. Por lo general, incluyen un número relativamente pequeño de variables internas en comparación con el número de granos que componen el punto material. El pequeño número de variables contribuye a la eficiencia del modelo. Es por eso que dichos modelos despiertan gran interés en aplicaciones ingenieriles.

Una limitación de este tipo de modelos es que se ve penalizada la capacidad de captar comportamientos bajo condiciones de carga complejas y multiaxiales (Kamlah y Jiang (1999); Kamlah y Tsakmakis (1999); Hwang y McMeeking (1999); Landis (2002)).

Estos modelos se basan en la definición de funciones para los potenciales termodinámicos. Al elegir la forma de dicha función, es deseable incluir suficientes términos para capturar todos los efectos materiales relevantes, pero, al mismo tiempo, reducir los parámetros que deben ser determinados experimentalmente. Las variables internas principales de este tipo de modelos son la deformación  $\epsilon_{ij}^R$  y la polarización  $P_i^R$  remanentes.

Las componentes de este tipo de teorías o modelos son, por un lado la expresión de la energía libre, en segundo lugar, la definición de la superficie de conmutación y finalmente una regla de flujo. A su vez, se puede usar teoría de deformación o teoría de flujo con o sin endurecimiento. Si se usa endurecimiento, el mismo puede ser isótropo, cinemático o una combinación de ambos. La superficie de conmutación, que define el estado de carga  $(s_{ij}, E_i)$  puede dar lugar a la respuesta no lineal. Debido a que las deformaciones remanentes producidas por la conmutación ferreoléctrica son de corte puro, se considera que la superficie de conmutación es función del tensor desviador de tensiones  $s_{ij} = \sigma_{ij} - \delta_{ij}\sigma_{kk}/3$ .

El centro de la superficie de conmutación en el espacio de tensiones desviadoras y campo eléctrico es  $(s_{ij}^c, E_i^c)$ , y la desviación del punto de carga respecto del centro de dicha superficie se definen como sigue:

$$\hat{s}_{ij} = s_{ij} - s_{ij}^c \quad (3)$$

$$\hat{E}_i = E_i - E_i^c$$

En general, la superficie de conmutación se expresa de la siguiente manera:

$$G(\hat{s}_{ij}, \hat{E}_i, \epsilon_{ij}^r, P_i^r) - G_c \leq 0 \quad (4)$$

Se desea que el modelo capte la saturación en la conmutación de dominios, lo que se logra incluyendo alguna forma de endurecimiento. Debido a que se deben alcanzar ciclos de histéresis estables, se descarta la presencia de endurecimiento isótropo, por lo tanto  $G_c$  se mantiene constante.

La evolución del centro de la superficie de conmutación depende de las variables internas y de la ley de endurecimiento cinemático,

$$\dot{s}_{ij}^c = h_s(\epsilon_{ij}^r)\dot{\epsilon}_{ij}^r \quad (5)$$

$$\dot{E}_i^c = h_e(P_i^r)\dot{P}_i^r$$

Como aproximación, se usa la regla de normalidad,

$$\dot{\epsilon}_{ij}^r = \dot{\lambda} \frac{\partial G}{\partial \sigma_{ij}} \quad (6)$$

$$\dot{P}_i^r = \dot{\lambda} \frac{\partial G}{\partial E_i}$$

En el caso de endurecimiento no nulo, para la determinación del parámetro  $\dot{\lambda}$  se plantea la condición de consistencia durante el proceso de conmutación:

$$\frac{\partial G}{\partial \hat{\sigma}_{ij}} \dot{\hat{\sigma}}_{ij} + \frac{\partial G}{\partial \hat{E}_i} \dot{\hat{E}}_i + \frac{\partial G}{\partial \epsilon_{ij}^r} \dot{\epsilon}_{ij}^r + \frac{\partial G}{\partial P_i^r} \dot{P}_i^r = 0 \quad (7)$$

A partir de las ecuaciones 4, 5 y 7, se obtiene la siguiente expresión para el cálculo del parámetro  $\dot{\lambda}$ :

$$\dot{\lambda} = \frac{\frac{\partial G}{\partial \hat{\sigma}_{ij}} \dot{\hat{\sigma}}_{ij} + \frac{\partial G}{\partial \hat{E}_i} \dot{\hat{E}}_i}{\frac{\partial G}{\partial \hat{\sigma}_{ij}} h_s + \frac{\partial G}{\partial \hat{E}_i} h_e - \frac{\partial G}{\partial \epsilon_{ij}^r} \frac{\partial G}{\partial \hat{\sigma}_{ij}} - \frac{\partial G}{\partial P_i^r} \frac{\partial G}{\partial \hat{E}_i}} \quad (8)$$

Se describe a continuación el modelo fenomenológico implementado y analizado en este trabajo.

Cocks y McMeeking (1999) usaron  $G^2 = \alpha \hat{s}_e^2 + \left| \hat{E}_i \right|^2$  como superficie de conmutación, donde  $\hat{s}_e = \sqrt{\frac{3}{2} \hat{s}_{ij} \hat{s}_{ij}}$ . Observaciones experimentales indican que la aplicación de un campo eléctrico desde el estado inicial no polarizado, es capaz de introducir una deformación remanente. Para incluir este aspecto, Huber y Fleck (2001) incluyen el término de acoplamiento  $\hat{s}_{ij} \hat{E}_i P_j^r$  en la función  $G$ , cuya expresión es:

$$G^2 = \alpha \hat{s}_e^2 + \left| \hat{E}_i \right|^2 + \beta \hat{s}_{ij} \hat{E}_i P_j^r \quad (9)$$

Las constantes escalares  $\alpha$  y  $\beta$  se introducen para mantener consistencia dimensional y permitir ajustar el modelo con mediciones experimentales.

Los escalares  $h_s$  y  $h_e$  de las expresiones 5 se eligen de manera tal de obtener elevado endurecimiento cuando se alcanza la saturación,

$$h_s(\epsilon_r) = h_{0s} \left( 1 - \frac{\frac{I_2}{4} \left( 3 - \left( \frac{I_3}{I_2} \right)^3 \right)}{\epsilon_{sat}} \right)^{-n_s} \quad (10)$$

$$h_e(P_r) = h_{0e} \left( 1 - \frac{|P_i^r|}{P_{sat}} \right)^{-n_e} \quad (11)$$

donde  $I_2$  e  $I_3$  son los invariantes de tensor  $\epsilon_{ij}^r$ .

En general, las propiedades materiales que aparecen en las expresiones 1 y 2, dependen directamente del estado de polarización del material. En el marco del modelo fenomenológico implementado en este trabajo y de acuerdo a lo expresado por Landis (2002), se considera que

los tensores  $S_{ijkl}^E$  y  $\kappa_{ij}^\sigma$  son isótropos, mientras que el tensor piezoeléctrico se determina con la expresión 12.

$$d_{kij} = \frac{P^r}{P_0} \left[ d_{33} n_k n_i n_j + d_{31} n_k \alpha_{ij} + \frac{1}{2} d_{15} (n_i \alpha_{jk} - n_j \alpha_{ik}) \right] \quad (12)$$

donde,

$$P^r = \sqrt{P_i^r P_i^r} \quad (13)$$

$$n_i = \frac{P_i^r}{P^r} \quad (14)$$

$$\alpha_{ij} = \delta_{ij} - n_i n_j \quad (15)$$

#### 4.1. Implementación numérica

Los siguientes pasos describen sintéticamente el algoritmo utilizado para la integración numérica de las ecuaciones constitutivas descritas. Se trata de un algoritmo de tipo explícito o de avance directo. Por ello se debe trabajar con pasos de tiempo suficientemente pequeños para evitar que la solución se aparte de la respuesta teórica.

1. Inicialización de variables.
2. Incrementación de  $\sigma_{ij}$  y  $E_i$ .
3. Cálculo de la función de conmutación G y sus derivadas.
4. Cálculo del factor plástico  $\dot{\lambda}$  (Expresión 8).
5. Cálculo de los incrementos de las componentes del tensor de deformaciones y polarización remanentes  $\dot{\epsilon}_{ij}^{Rem}$  y  $\dot{P}_i^{Rem}$  (Expresión 6).
6. Determinación del endurecimiento cinemático y actualización del centro de la superficie de conmutación (Expresión 5).
7. Cálculo de las componentes de deformación y polarización remanentes.
8. Cálculo de las propiedades constitutivas (Expresión 12).
9. Cálculo de las componentes de deformación y polarización totales (Expresiones 1 y 2).

#### 4.2. Ejemplo de aplicación

A continuación, se presentan los resultados obtenidos con el modelo fenomenológico implementado. Los parámetros usados para el mismo se detallan en la tabla 1.

En la tabla 2 se detallan las propiedades materiales utilizadas. Se analiza en primer lugar, la respuesta del material sin restricciones mecánicas. Se aplica en este caso, un campo eléctrico cíclico sinusoidal de amplitud  $3(MV/m)$  en la dirección  $x_3$ . La simulación comienza a partir del estado inicial virgen, es decir con polarización y deformaciones remanentes nulas. La figura 5 muestra el desplazamiento eléctrico en la dirección  $x_3$  en función del campo eléctrico aplicado.

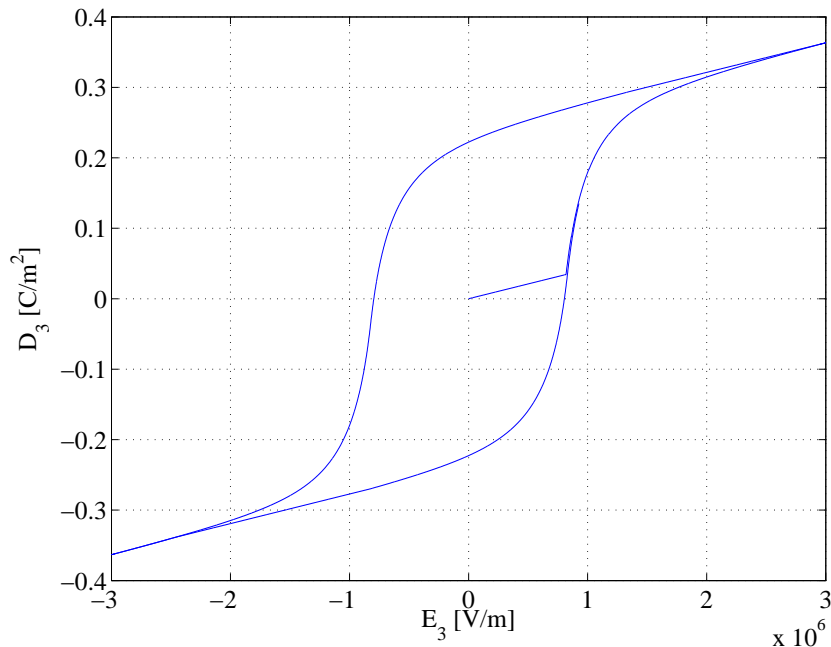


Parámetro	Valor
$\alpha(m^4C^{-2})$	0.0011
$\beta(m^4C^{-2})$	0.2
$h_{0e}(10^5F^{-1}m)$	714
$h_{0e}(GPa)$	620
$n_e$	1.4
$n_e$	1.4
$G_c(MV/m)$	0.82
$\epsilon_{sat}(\%)$	0.465
$P_{sat}(C/m^2)$	0.24

Tabla 1: Parámetros del modelo fenomenológico

Propiedad material	Valor
$\nu$	0.31
Módulo de corte $G(GPa)$	20.8
$\kappa^\sigma(10^{-8}F/m)$	2.0
$d_{33}(10^{-12}mV^{-1})$	2206
$d_{31}(10^{-12}mV^{-1})$	-1103
$d_{15}(10^{-12}mV^{-1})$	2760

Tabla 2: Propiedades materiales

Figura 5: Desplazamiento eléctrico  $D_3$  en función del campo eléctrico aplicado en dirección  $x_3$  - Modelo fenomenológico.

La figura 6 muestra la deformación  $\epsilon_{33}$  en función del campo eléctrico aplicado en la dirección  $x_3$ . Esta curva es característica de los materiales ferroeléctricos y normalmente recibe el nombre de curva *mariposa*. Claramente refleja la dependencia del acoplamiento electromecánico con la polarización. Puede observarse el comportamiento histerético y la presencia de una po-

larización remanente al anularse el campo eléctrico. La respuesta inicial es lineal.

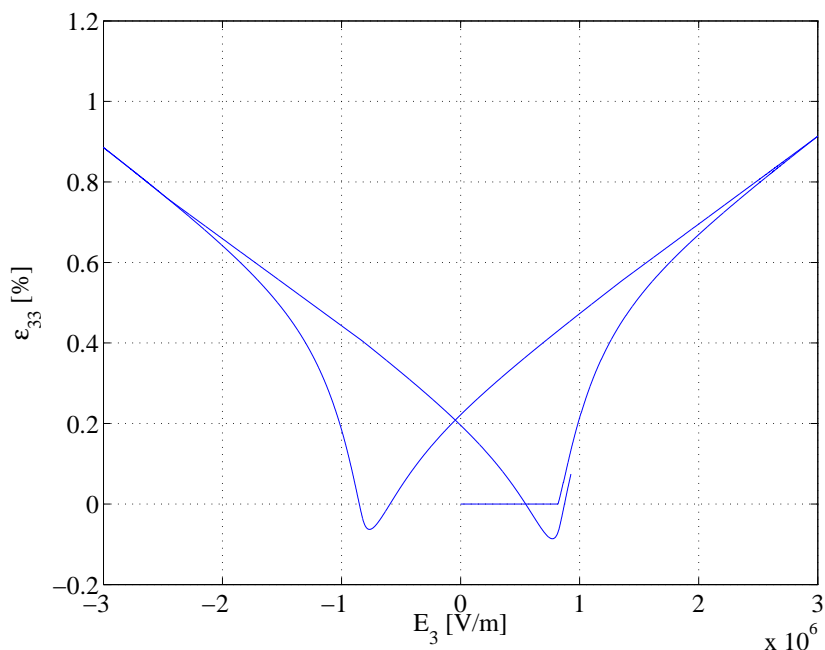


Figura 6: Deformación  $\epsilon_{33}$  en función del campo eléctrico  $E_3$ .

Luego de haber polarizado el material con la aplicación del campo eléctrico, se aplicó una tensión de compresión en la dirección 3, de amplitud ( $50 \text{ MPa}$ ) y modulada con una sinusoide. La figura 7 muestra la polarización total y remanente en función de la tensión aplicada. Como puede observarse, la compresión mecánica no puede eliminar la polarización remanente, ya que no puede producir conmutaciones  $180^\circ$ .

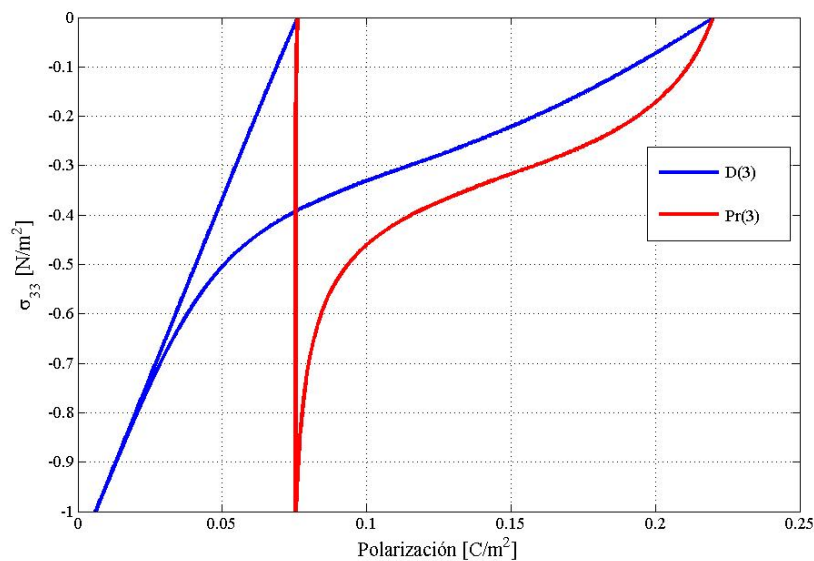


Figura 7: Polarización total y remanente en función de la tensión de compresión  $\sigma_{33}$ .

## 5. MODELOS CONSTITUTIVOS MICROELECTROMECAÑICOS

En estos modelos, el punto material es representado por un conjunto de granos cuya orientación espacial se distribuye, generalmente, en forma aleatoria. El estado de los dominios y la respuesta de cada grano se calculan separadamente, luego se determina la respuesta del punto material promediando la de todos los granos. También se pueden tener en cuenta las interacciones entre los granos y la dependencia con la velocidad de sollicitaciones en general, ya sean cargas, deformaciones mecánicas, campos o cargas eléctricas (Hwang et al. (1995); Lu et al. (1999); Huber et al. (1999); Kamlah et al. (2005)). La principal desventaja de los modelos microelectromecánicos es la ineficiencia computacional, pudiendo ser ésta mitigada mediante el reemplazo de la gran cantidad de granos, distribuidos aleatoriamente, por un conjunto determinístico más pequeño (Kushnir y Rabinovitch, 2008).

### 5.1. Formulación del modelo

La formulación de este tipo de modelos se basa en un enfoque de plasticidad para cristales, definiendo como variables internas a las fracciones de volumen de cada variante cristalina.

La descomposición aditiva de las deformaciones y de la polarización se expresa de la siguiente manera:

$$\epsilon_{ij} = \epsilon_{ij}^L + \epsilon_{ij}^R \quad (16)$$

$$D_i = D_i^L + P_i^R \quad (17)$$

De forma análoga a los fenómenos de deslizamientos múltiples para cristales metálicos, se producen progresivas conversiones de una variante cristalina a otra. Con el objetivo de simplificar el análisis, se consideran como válidas las siguientes suposiciones:

1. El cristal tiene una fracción de volumen  $c^I$  de cada variante cristalina  $I$ . Para el caso de cristales tetragonales, existe un total de 6 variantes.
2. Dentro del cristal se consideran uniformes, tanto el campo eléctrico  $E_i$  como la tensión mecánica  $\sigma_{ij}$ .
3. Tanto las partes lineales como remanentes de las deformaciones y desplazamiento eléctrico se calculan en base a promedios en el volumen del cristal.

Estas suposiciones simplifican el análisis cinemático y de las propiedades materiales, abstraéndose de la configuración específica de los dominios dentro del cristal.

En virtud de las suposiciones anteriores, las partes lineales de la deformación  $\epsilon_{ij}^L$  y desplazamiento eléctrico promediados  $D_i^L$  pueden expresarse de la siguiente manera:

$$\epsilon_{ij}^L = \sum_{I=1}^{I=M} \left[ c^I \epsilon_{ij}^{L(I)} \right] = S_{ijkl}^E \sigma_{kl} + d_{kij} E_k \quad (18)$$

$$D_i^L = \sum_{I=1}^{I=M} \left[ c^I D_i^{L(I)} \right] = d_{ikl} \sigma_{kl} + \kappa_{ik}^\sigma E_k \quad (19)$$

Debido a que las  $\sigma_{ij}$  y  $E_i$  son uniformes dentro del cristal, se tienen las siguientes expresiones para los tensores constitutivos del mismo:

$$S_{ijkl}^E = \sum_{I=1}^{I=M} \left[ c^I S_{ijkl}^{E(I)} \right] \quad (20)$$

$$d_{ijk} = \sum_{I=1}^{I=M} \left[ c^I d_{ijk}^{(I)} \right] \quad (21)$$

$$\kappa_{ij}^\sigma = \sum_{I=1}^{I=M} \left[ c^I \kappa_{ij}^{\sigma(I)} \right] \quad (22)$$

Cada una de las  $M$  variantes cristalinas puede transformarse en una de las  $(M - 1)$  variantes restantes, lo que da un total de  $N = M(M - 1)$  transformaciones. Para el caso de cristales tetragonales con seis variantes cristalinas hay un total de  $N = 30$  transformaciones posibles, entre conmutaciones de  $90^\circ$  y  $180^\circ$ . Cada transformación  $\alpha$  está caracterizada por:

- La deformación asociada a la transformación, cuya magnitud  $\gamma^\alpha$  es la diferencia entre la deformación espontánea correspondiente a las dos variantes involucradas en la transformación.
- La diferencia en la polarización,  $P^\alpha$ .

El cambio en la fracción de volumen  $c^I$  de la variante cristalina  $I$  es promovido por la activación de varios sistemas  $\alpha$  de transformación, esto se expresa de la siguiente manera:

$$\dot{c}^I = \sum_{\alpha=1}^N A^{I\alpha} \dot{f}^\alpha \quad (23)$$

donde  $A^{I\alpha}$  es una matriz poblada de -1, +1 y 0, para tener en cuenta la influencia de cada sistema de conmutación  $\alpha$  en la concentración de cada variante de dominio.

Se debe tener en cuenta que  $0 \leq c^I \leq 1$ . Si un sistema de conmutación tiende a violar esta condición, el mismo debe desactivarse.

Siguiendo a [Huber et al. \(1999\)](#), los incrementos de conmutación  $\dot{f}^\alpha$  producen incrementos de deformación y polarización remanentes ( $\dot{\epsilon}_{ij}^R, \dot{P}_i^R$ ), estos se determinan sumando las contribuciones de todos los sistemas de conmutación activos y se expresan de la siguiente manera:

$$\dot{\epsilon}_{ij}^R = \sum_{\alpha} \dot{f}^\alpha \mu_{ij}^\alpha \gamma^\alpha \quad (24)$$

$$\dot{P}_i^R = \sum_{\alpha} \dot{f}^\alpha s_i^\alpha P^\alpha \quad (25)$$

donde

$$\mu_{ij}^\alpha = \frac{1}{2} (s_i^\alpha n_j^\alpha + s_j^\alpha n_i^\alpha) \quad (26)$$

es el tensor unitario de orientación de Schmid, que describe corte simple en la dirección  $s_i^\alpha$  en el plano de normal unitaria  $n_i^\alpha$ . Los vectores  $s_i^\alpha$  y  $n_i^\alpha$  están relacionados con los ejes de la red cristalina y el tipo de anisotropía de la celda unitaria ([Kamlah et al., 2005](#)).

Como explica Landis (2004), una notable diferencia entre la teoría de deslizamiento en plasticidad y la de conmutación de dominios es que en esta última ninguna concentración puede ser menor a cero y, al mismo tiempo, la suma de todas debe ser uno. Los incrementos de conmutación  $f^\alpha$  dependen íntimamente de las concentraciones de las variantes cristalinas.

Las fracciones incrementales de volumen  $f^\alpha$  son las variables cinemáticas fundamentales del proceso de conmutación. A continuación se deriva la fuerza impulsora como una fuerza termodinámicamente conjugada de  $f^\alpha$ . En un balance energético entran en juego, por un lado, la energía disponible, asociada a la aplicación de la tensión mecánica y campo eléctrico, y, por otro lado, las energías disipadas por el movimiento de las paredes de dominios y la energía electroelástica acumulada en el sólido. De esta manera, la energía disipada es la diferencia entre la energía total suministrada y la acumulada en el sistema y se expresa con la siguiente ecuación:

$$\dot{w}^D = \dot{w} - \dot{w}^S \quad (27)$$

donde  $\dot{w}_D$  es la velocidad de disipación por unidad de volumen del cristal.

La energía suministrada al sistema se expresa de la siguiente manera:

$$\dot{w} = \sigma_{ij} \dot{\epsilon}_{ij} + E_i \dot{D}_i = \sigma_{ij} (\dot{\epsilon}_{ij}^L + \dot{\epsilon}_{ij}^R) + E_i (\dot{D}_i^L + \dot{D}_i^R) \quad (28)$$

La energía almacenada se expresa de la siguiente manera:

$$w^S = \frac{1}{2} (\sigma_{ij} \epsilon_{ij}^L + E_k D_k^L) \quad (29)$$

siendo su derivada temporal,

$$\dot{w}^S = \frac{1}{2} (\sigma_{ij} \dot{\epsilon}_{ij}^L + \dot{\sigma}_{ij} \epsilon_{ij}^L + E_k \dot{D}_k^L + \dot{E}_k D_k^L) \quad (30)$$

Usando las ecuaciones constitutivas,

$$\epsilon_{ij}^L = S_{ijkl}^E \sigma_{kl} + d_{kij} E_k \quad (31)$$

$$D_i^L = d_{ikl} \sigma_{kl} + \kappa_{ik}^\sigma E_k \quad (32)$$

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl}^D (\epsilon_{kl} - \epsilon_{kl}^R) - h_{kij} (D_k - P_k^R) \quad (33)$$

$$E_i = -h_{ikl} (\epsilon_{kl} - \epsilon_{kl}^R) + \beta_{ik}^\epsilon (D_k - P_k^R) \quad (34)$$

y trabajando algebraicamente, se obtiene finalmente:

$$\dot{w}^S = \sigma_{ij} \dot{\epsilon}_{ij}^L + E_i \dot{D}_i^L - \frac{1}{2} \sigma_{ij} (\dot{S}_{ijkl}^E \sigma_{kl} + \dot{d}_{kij} E_k) - \frac{1}{2} E_i (\dot{d}_{ikl} \sigma_{kl} + \dot{\kappa}_{ik}^\sigma E_k) \quad (35)$$

Reemplazando las expresiones 35 y 28 en 27, se obtiene:

$$\dot{w}^D = \sigma_{ij} \dot{\epsilon}_{ij}^R + E_i \dot{D}_i^R + \frac{1}{2} \sigma_{ij} (\dot{S}_{ijkl}^E \sigma_{kl} + \dot{d}_{kij} E_k) + \frac{1}{2} E_i (\dot{d}_{ikl} \sigma_{kl} + \dot{\kappa}_{ik}^\sigma E_k) \quad (36)$$

Las correspondientes derivadas temporales de  $S_{ijkl}^E$ ,  $d_{ijk}$  y  $\kappa_{ij}^\sigma$  se obtienen reemplazando  $c^I$  por  $\dot{c}^I$  en las ecuaciones 20, 21 y 22. Introduciendo esto en la expresión 36 y teniendo en cuenta

la ecuación 23, se obtiene finalmente la siguiente expresión para el incremento de la energía disipada:

$$\dot{w}^D = \sum_{\alpha=1}^N \dot{f}^{\alpha} \left[ \sigma_{ij} \left( \frac{1}{2} \tilde{\epsilon}_{ij}^{\alpha} + \mu_{ij}^{\alpha} \gamma^{\alpha} \right) + E_i \left( \frac{1}{2} \tilde{D}_i^{\alpha} + s_i^{\alpha} P^{\alpha} \right) \right] = \sum_{\alpha=1}^N \dot{f}^{\alpha} G^{\alpha} \quad (37)$$

donde:

$$\tilde{\epsilon}_{ij}^{\alpha} = \sum_I A^{I\alpha} \left[ s_{ijkl}^{E(I)} \sigma_{kl} + d_{kij}^{(I)} E_k \right] \quad (38)$$

$$\tilde{D}_i^{\alpha} = \sum_I A^{I\alpha} \left[ d_{ikl}^{(I)} \sigma_{kl} + \kappa_{ik}^{\sigma(I)} E_k \right] \quad (39)$$

Se acostumbra llamar a  $G^{\alpha}$  fuerza impulsora,

$$G^{\alpha} = \sigma_{ij} \left( \frac{1}{2} \tilde{\epsilon}_{ij}^{\alpha} + \mu_{ij}^{\alpha} \gamma^{\alpha} \right) + E_i \left( \frac{1}{2} \tilde{D}_i^{\alpha} + s_i^{\alpha} P^{\alpha} \right) \quad (40)$$

Esta variable representa la energía disipada en el movimiento de las paredes de dominio, al transformarse una unidad de volumen de cristal desde una variante a la otra, a causa de activarse el sistema de transformación  $\alpha$ . El sistema de transformación está potencialmente activo cuando  $G^{\alpha}$  alcanza el valor crítico  $G_c^{\alpha}$  (Huber et al., 1999).

Para la determinación de  $\dot{f}^{\alpha}$  se usa un modelo dependiente del tiempo (*rate-dependent*) de tipo Perzyna,

$$\dot{f}^{\alpha} = \begin{cases} B^{\alpha} \left( \frac{G^{\alpha}}{G_c^{\alpha}} \right)^n & \text{si } G^{\alpha} \geq G_c^{\alpha} \\ 0 & \text{si } G^{\alpha} < G_c^{\alpha} \end{cases} \quad (41)$$

donde  $B^{\alpha}$  es un factor de escala y  $n$  es un exponente de creep.

## 5.2. Implementación numérica

Para la implementación numérica del modelo microelectromecánico descrito, se usó un algoritmo explícito. A partir del estado inicial dado por las concentraciones de cada variante cristalina, se calcula la respuesta para cada incremento de carga. En cada paso de carga, se calculan las componentes de deformación y polarización remanentes.

1. Inicialización de variables:  
Asignación de valores a las concentraciones  $c^I$ ;  
Inicialización de las componentes de deformación y polarización remanentes.
2. Incrementación de  $E_i$  y  $\sigma_{ij}$  (Dato).
3. Cálculo de las fuerzas impulsoras  $G^{\alpha}$  (Expresión 40) y comparación con  $G_c^{\alpha}$ .
4. Determinación de las fracciones incrementales  $\dot{f}^{\alpha}$  (Expresión 41); de los incrementos en las concentraciones  $\dot{c}^I$  (Expresión 23); y actualización de las concentraciones  $c^I$ .
5. Si las concentraciones no cumplen con la condición  $0 \leq c^I \leq 1$ , se anulan los sistemas de conmutación asociados.
6. Determinación de las propiedades constitutivas, promediadas en función de  $c^I$  (Expresiones 20, 21 y 22).

7. Cálculo de los incrementos de las componentes de deformación y polarización remanentes (Expresiones 24 y 25).
8. Cálculo de las componentes de deformación y polarización totales (Expresiones 16 y 17).

### 5.3. Ejemplo de aplicación

Se presentan a continuación los resultados obtenidos con el modelo microelectromecánico, correspondientes al caso de un cristal simple, con sus ejes locales  $x', y', z'$  coincidentes con los ejes coordenados globales  $x, y, z$ . Se designa con  $c^1, c^2, c^3, c^4, c^5$  y  $c^6$  a las concentraciones de volumen de los dominos orientados en las direcciones  $+x, +y, +z, -x, -y$  y  $-z$  respectivamente. Se toma como estado inicial el correspondiente al material virgen, con todas las concentraciones iguales a  $1/6$  y las deformaciones y polarizaciones remanentes nulas.

Se presentan dos ejemplos de cálculo, el primero corresponde a un campo eléctrico aplicado en dirección  $x_3$ , en el segundo caso el campo eléctrico se aplica a  $45^\circ$  en el plano  $x_1, x_3$ . La variación temporal del campo eléctrico es sinusoidal, con una amplitud de  $2(MV/m)$  para ambos casos.

En la tabla 3 se presentan los parámetros particulares usados en este modelo.

Parámetro	Valor
$B^\alpha (s^{-1})$	40
$G_c^{90^\circ} (10^5 VC/m^3)$	6
$G_c^{180^\circ} (10^5 VC/m^3)$	$\sqrt{2}G_c^{90^\circ}$
$P^{spon} (C/m^2)$	0.3
$P^{90^\circ}$	$\sqrt{2}P^{spon}$
$P^{180^\circ}$	$2P^{spon}$
$\epsilon^{spon}$	0.002
$\gamma^{90^\circ}$	$3\epsilon^{spon}$
$\gamma^{180^\circ}$	0

Tabla 3: Parámetros del modelo microelectromecánico.

Se considera un material con isotropía transversal cuyas propiedades electromecánicas se detallan en la tabla 4. Las propiedades de cada variante de dominio se obtiene rotando adecuadamente los tensores constitutivos.

Propiedad material	Valor
$E_t (GPa)$	61.0
$E_p (GPa)$	53.0
$G_t (GPa)$	21.0
$\nu_p$	0.16
$\nu_{tp}$	0.38
$d_{33} (10^{-12} mV^{-1})$	450.0
$d_{13} (10^{-12} mV^{-1})$	-210.0
$\kappa^\sigma (10^{-8} F/m)$	2.0

Tabla 4: Propiedades materiales.

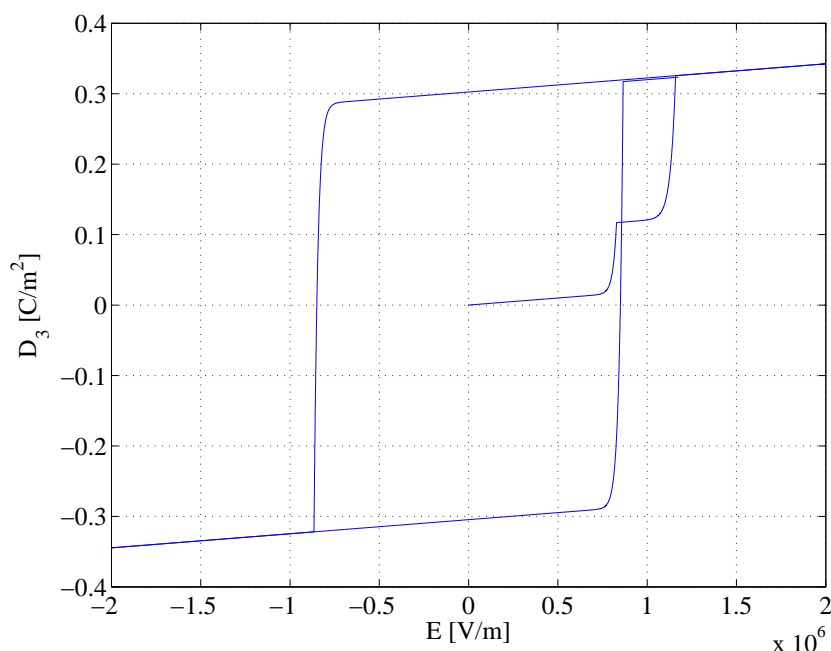


Figura 8: Desplazamiento eléctrico en función del campo eléctrico aplicado en dirección  $x_3 - E90^\circ$ .

La figura 8 muestra el desplazamiento eléctrico  $D_3$  en función del campo eléctrico aplicado en la dirección  $x_3$ , la figura 9 muestra la variación de concentraciones de variantes cristalinas y la figura 10 muestra la deformación en la dirección del campo eléctrico aplicado. Como se observa en la figura 8, al principio tiene lugar un comportamiento dieléctrico lineal, fenómeno acompañado de deformaciones nulas (Figura 10). Esto se debe a que, como muestra la figura 9, al principio las concentraciones de variantes de dominio no cambian y los efectos piezoeléctricos se cancelan entre sí. Aproximadamente a los  $0,75(MV/m)$  comienzan las conmutaciones, las variantes  $c^6$  correspondientes a la dirección opuesta a  $E$  desaparecen y conmutan a  $c^3$  que toma el valor  $1/3$ . En coincidencia con esto se observa el inicio de las deformaciones. Debido a que al principio únicamente se producen conmutaciones  $180^\circ$ , las deformaciones remanentes son nulas en esta etapa. Por lo tanto, las deformaciones observadas al principio sólo se deben al acoplamiento piezoeléctrico. Luego, cuando comienzan las conmutaciones  $90^\circ$  se producen deformaciones remanentes en correspondencia con el cambio en la dirección de simetría tetragonal. El comportamiento es similar al de plasticidad ideal debido al elevado exponente de creep usado. En la saturación, la única variante de dominio presente es la  $c^3$ , correspondiente a los iones centrales orientados en  $+x_3$ . A partir de allí, la descarga es lineal hasta que el campo eléctrico se anula quedando una polarización remanente de valor  $0,3C/m^2$  (Figura 8).



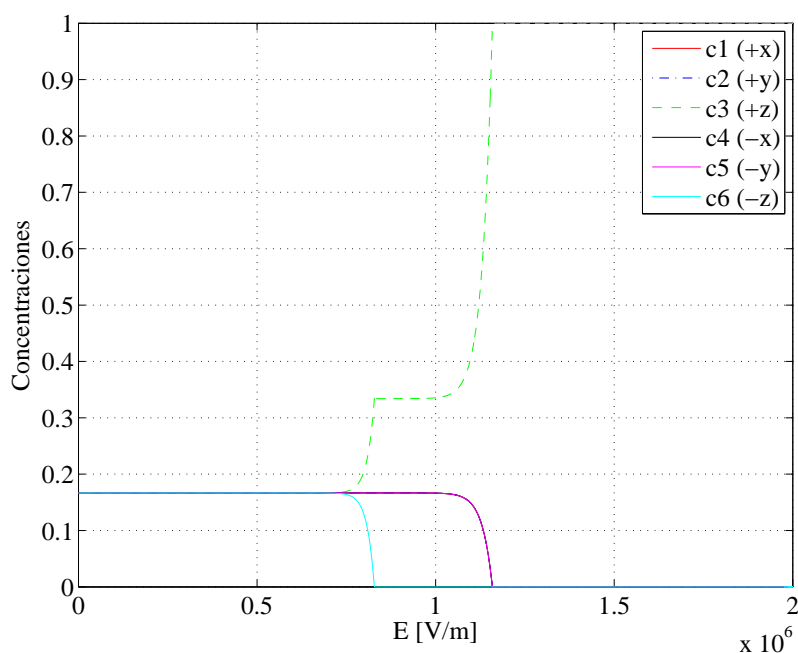


Figura 9: Evolución de las proporciones de volumen de las variantes cristalinas -  $E90^\circ$ .

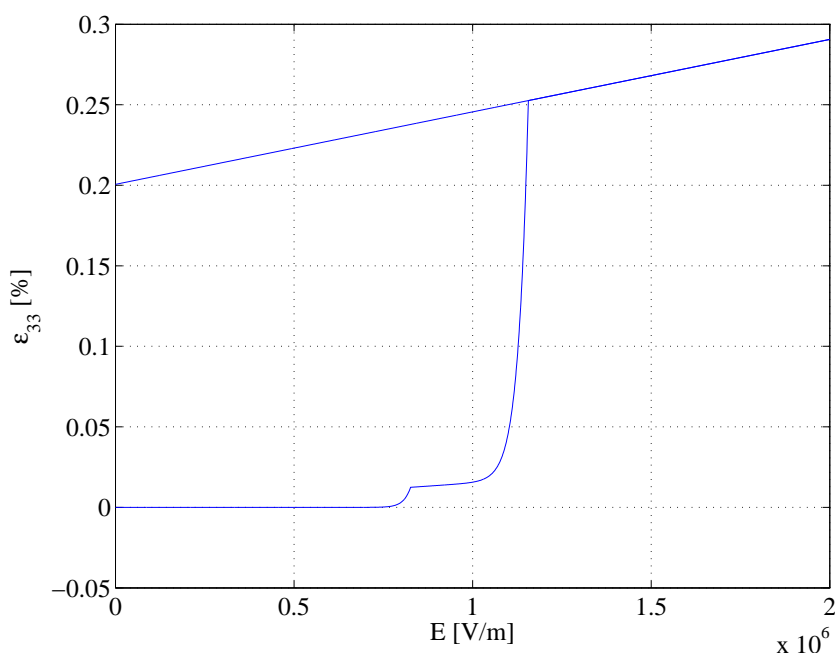


Figura 10: Deformación en función del campo eléctrico aplicado -  $E90^\circ$ .

Como puede observarse en la figura 10, al anularse el campo eléctrico, la deformación remanente es 0,2%.

A continuación, se presentan los resultados para el campo eléctrico a  $45^\circ$ . La figura 11 muestra la evolución de las concentraciones en función del campo eléctrico aplicado.

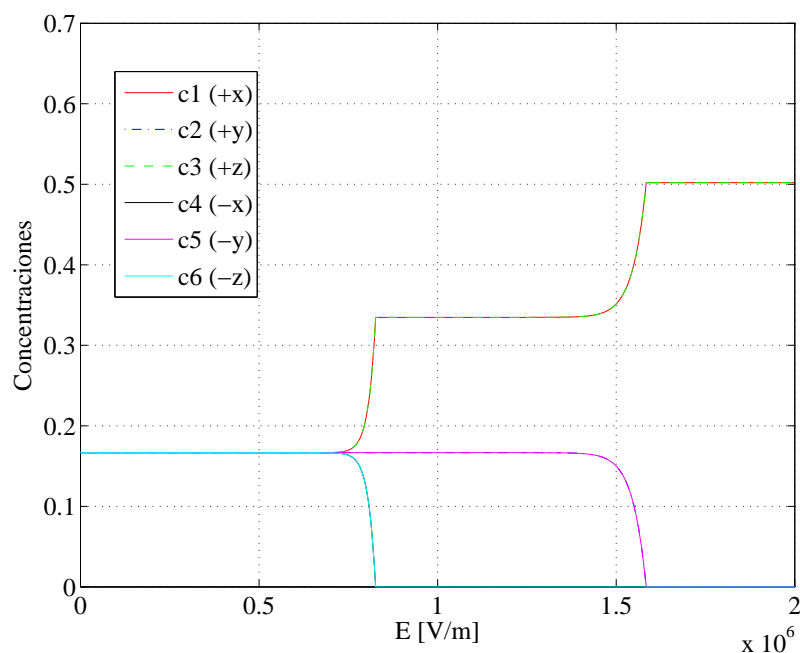


Figura 11: Proporción de volumen de las variantes cristalinas -  $E45^\circ$  en el plano  $(x_1, x_3)$ .

La figura 12 muestra el desplazamiento eléctrico en la dirección  $x_3$ , puede observarse la correspondencia en los saltos del desplazamiento eléctrico con las concentraciones de la figura 11. En este caso, las concentraciones de las componentes  $c^3$  y  $c^2$  toman el valor 0,5, mientras que las demás se anulan.

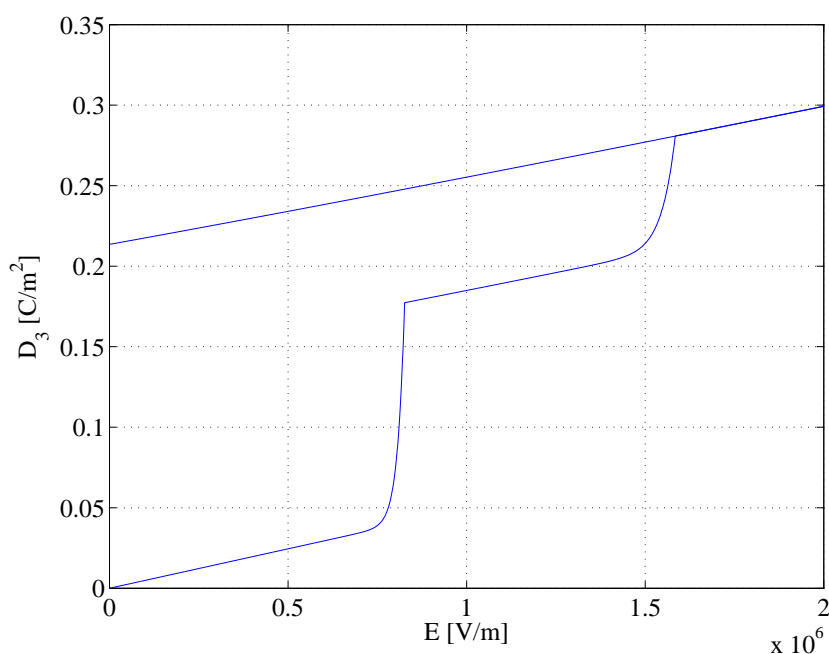


Figura 12: Desplazamiento eléctrico en función del campo eléctrico aplicado a  $45^\circ$  en el plano  $(x_1, x_3)$  -  $E45^\circ$ .

## 6. CONCLUSIONES

En este trabajo se presenta la implementación de dos modelos constitutivos. Uno fenomenológico y otro microelectromecánico. Con ambos se obtuvieron resultados acordes al comportamiento característico observado experimentalmente y en concordancia con trabajos de otros

investigadores. En general, los modelos constitutivos microelectromecánicos poseen gran cantidad de variables internas. La incorporación de los mismos en cada punto de Gauss de un código de elementos finitos, es posible pero sin duda demanda un considerable esfuerzo computacional. Como solución a este problema, se formularon gran cantidad de modelos fenomenológicos, los más populares se basan en los principios de la termodinámica irreversible y en muchos aspectos guardan similitud con la teoría de plasticidad  $J_2$  para metales. Los modelos fenomenológicos tienen menor cantidad de variables internas y por lo tanto son menos costosos computacionalmente. Sin embargo, deben ser calibrados y ajustados para representar la realidad física. El uso de modelos microelectromecánicos para calibrar modelos fenomenológicos representa una solución muy atractiva y un área activa de investigación. En este sentido, los experimentos numéricos deben diseñarse para que los resultados puedan ser utilizados convenientemente y permitan adquirir mayor conocimiento sobre los fenómenos materiales de interés práctico. Cuando se trabaja con materiales compuestos, como es el caso de laminados piezoeléctricos, además de los modelos constitutivos del material piezoeléctrico propiamente dicho, es necesario contar con herramientas de homogenización para obtener las propiedades equivalentes del compuesto. En este sentido resultan de gran interés, modelos que guarden una conveniente relación entre esfuerzo computacional y precisión de resultados.

## AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen el apoyo económico del CONICET y del CIUNT.

## REFERENCIAS

- Cocks A. y McMeeking R. A phenomenological constitutive law for the behaviour of ferroelectric ceramics. *Ferroelectrics*, 228:219–228, 1999.
- Ghandi K. *Nonlinear Modeling and Characterization techniques for Phase Transitions in Electro-Mechanically Coupled Devices. PhD Thesis.* Massachusetts Institute of Technology, 1998.
- Huber J.E. y Fleck N.A. Multi-axial electrical switching of a ferroelectric: theory versus experiment. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 49:785–811, 2001.
- Huber J.E., Fleck N.A., Landis C.M., y McMeeking R.M. A constitutive model for ferroelectric polycrystals. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 47(8):1663 – 1697, 1999.
- Hwang S., Huber J.E., McMeeking R., y Fleck N.A. The simulation of switching in polycrystalline ferroelectric ceramics. *Journal of Applied Physics*, 84(3):1530–1540, 1998.
- Hwang S., Lynch C., y McMeeking R. Ferroelectric/ferroelastic interactions and a polarization switching model. *Acta Metall. Mater.*, 43(5):2073–2084, 1995.
- Hwang S. y McMeeking R. A finite element model of ferroelastic polycrystals. *International Journal of Solids and Structures*, 36(10):1541–1556, 1999.
- Kamlah M. y Jiang Q. A constitutive model for ferroelectric pzt ceramics under uniaxial loading. *Smart Materials and Structures*, 8(4):441–459, 1999.
- Kamlah M., Liskowsky A., McMeeking R.M., y Balke H. Finite element simulation of a polycrystalline ferroelectric based on a multidomain single crystal switching model. *International Journal of Solids and Structures*, 42(9-10):2949 – 2964, 2005.
- Kamlah M. y Tsakmakis C. Phenomenological modeling of the non-linear electro-mechanical coupling in ferroelectrics. *International Journal of Solids and Structures*, 36(5):669 – 695, 1999.
- Kushnir U. y Rabinovitch O. Non-linear piezoelectric and ferroelectric actuators - analysis and

- potential advantages. *J Intell Mater Syst Struct*, 19:1077–1088, 2008.
- Landis C.M. Fully coupled, multi-axial, symmetric constitutive laws for polycrystalline ferroelectric ceramics. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 50(1):127 – 152, 2002.
- Landis C.M. Non-linear constitutive modeling for ferroelectrics. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 8:59–69, 2004.
- Lu W., Fang D., Li C.Q., y Hwang K.C. Nonlinear electric-mechanical behavior and micromechanics modelling of ferroelectric domain evolution. *Acta Materialia*, 47(10):2913 – 2926, 1999.
- Pathak A. y McMeeking R.M. Three-dimensional finite element simulations of ferroelectric polycrystals under electrical and mechanical loading. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 56:663–683, 2008.