

*А. Б. Кудимова<sup>а</sup>, А. В. Наседкин<sup>а\*</sup>, А. А. Наседкина<sup>а</sup>, А. Раджагопал<sup>б</sup>*

*<sup>а</sup>Южный федеральный университет, Ростов-на-Дону, Россия*

*<sup>б</sup>Индийский технологический институт Хайдерабада, Хайдерабад, Индия*

## **КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ КОМПОЗИТОВ, СОСТОЯЩИХ ИЗ ПЬЕЗОКЕРАМИЧЕСКОЙ МАТРИЦЫ С МЕТАЛЛИЧЕСКИМИ ВКЛЮЧЕНИЯМИ И ПОРАМИ**

*A. B. Kudimova, A. V. Nasedkin\*, A. A. Nasedkina, and A. Rajagopal*

### **COMPUTER SIMULATION OF COMPOSITES CONSISTING OF PIEZOCERAMIC MATRIX WITH METAL INCLUSIONS AND PORES**

**Keywords:** electroelasticity, piezoelectric composite, metal inclusion, pore, homogenization, effective modulus, finite-element method

The problem on determining the effective properties of mixed composites consisting of a piezoceramic matrix with metal inclusions and pores is investigated. Composites with microporosity and mesoporosity are compared. For microporous composites, two-level models of two-phase structures are used. At the microlevel, the effective properties of a piezoceramic material with pores are first determined, and then, at the mesolevel, the homogenization problem for piezoelectric material with effective properties found at the first stage and with conductive inclusions is solved. Mesoporous composites are considered as three-phase composites with a piezoceramic matrix, inclusions, and pores located at boundaries of the inclusions. Homogenization problems are solved numerically in the ANSYS finite element package for representative volumes with closed structures of inclusions and pores. Inclusions and pores are modeled as piezoelectric materials with extreme values of stiffness moduli and dielectric constants. It is noted that this approach preserves the energy balance between the composite medium and the homogeneous reference medium. As an example, calculations of the effective moduli of composites consisting of piezoceramics based on barium titanate, nickel inclusions, and pores are performed. The effective moduli in

---

\*Автор, с которым следует вести переписку: [nasedkin@math.sfedu.ru](mailto:nasedkin@math.sfedu.ru)  
Corresponding author: [nasedkin@math.sfedu.ru](mailto:nasedkin@math.sfedu.ru)

relation to the volume fractions of inclusions and pores, as well as on the number of mesoscale pores on the boundaries of the inclusions, are investigated. An analysis of the influence of porosity type on the effective properties of the piezocomposites considered is presented.

**Ключевые слова:** электроупругость, композит пьезоэлектрический, включение металлическое, пора, гомогенизация, модуль эффективный, метод конечных элементов

Исследована задача определения эффективных свойств смешанных композитов, состоящих из пьезокерамической матрицы с металлическими включениями и порами. Проведено сравнение свойств пьезокомпозитов с микро- и с мезопористостью. Для микропористых композитов использовали двухуровневые модели двухфазных структур. Вначале на микроуровне определяли эффективные свойства пьезокерамического материала с порами, а затем на мезоуровне решали задачу гомогенизации для пьезоматериала с эффективными свойствами, найденными на первом этапе, и с проводящими включениями. Мезопористые композиты рассматривали как трехфазные с пьезокерамической матрицей, включениями и порами, расположенными на границах включений. Решение задач гомогенизации осуществлено численно в конечно-элементном пакете ANSYS для представительных объемов с закрытыми структурами включений и пор. Включения и поры моделировались как пьезоэлектрические материалы с экстремальными значениями модуля жесткости и диэлектрической проницаемости. Отмечено, что такой подход сохраняет энергетический баланс между композитной и гомогенной средой сравнения. В качестве примера проведены расчеты эффективных модулей композитов, состоящих из пьезокерамики на основе титаната бария, включений из никеля и пор. Исследованы зависимости эффективных модулей от объемных долей включений и пор, а также от количества мезоразмерных пор на границах включений. Проведен анализ влияния типа пористости на эффективные свойства рассматриваемых пьезокомпозитов.

## Введение

Исследованиям композитов типа пьезокерамика/металл посвящены многие работы, например, имеются обзоры [1, 2]. Такие композитные структуры применяются в качестве активных диэлектрических конденсаторов во многих электронных устройствах и в устройствах накопления энергии. Добавление металлических включений в пьезокерамическую матрицу позволяет повысить прочностные свойства композита, существенно увеличить его электрическую емкость и понизить диэлектрические потери.

Среди различных сочетаний пьезокерамических и металлических материалов достаточно популярными являются композиты с матрицей на основе керамики титаната бария  $\text{BaTiO}_3$  и включений из никеля Ni [1—7]. Были синтезированы также наноструктурированные композиты из титаната бария и никеля [5, 6]. Поскольку пьезокерамические композиты создаются в результате технологических процессов, включающих прессование, высокотемпературный нагрев и поляризацию, то можно управлять их составом, размером зерен материала матрицы и включений. Естественно, что при этом возможно появление пористости как в пьезокерамической матрице, так и на границах матрицы и включений. Пористость наблюдается также в керамике обычного титаната бария [8—11], причем она зависит от особенностей технологии его производства [10]. При создании композитов из пьезокерамики с более жесткими включениями наблюдаются как микропоры в самой пьезокерамике, так и поры, сравнимые по размерам с включениями на границах с матрицей [12]. Следуя терминологии [13, 14], такие поры будем называть далее мезоразмерными порами, или мезопорами.

Отметим, что теоретические исследования эффективных свойств пьезокомпозитов проводили различными методами во многих работах, из которых отметим опубликованные в последние годы [15—18] (там же можно найти дальнейшие ссылки).

В настоящей работе свойства композита на основе керамики титаната бария с включениями из никеля определены численно на основе методов эффективных модулей [19, 20] и конечных элементов с использованием программного комплекса ANSYS. Вначале описана постановка задачи гомогенизации и указаны ее особенности, связанные с моделированием проводящих включений и пор. Затем отмечены особенности формирования представительного объема пьезокомпозита 3-0-0 связности, т.е. трехфазного композита по терминологии [21] со связанной пьезокерамической матрицей и с закрытой структурой двух других фаз. Далее проанализированы численные результаты, полученные из решения задач гомогенизации по методам эффективных модулей и конечных элементов.

Методологически работа объединяет технологии конечно-элементной гомогенизации пьезоэлектрических композитов с микро- и мезоразмерными порами [13, 14] и с металлизированными поверхностями пор или с металлическими включениями, моделируемыми как пьезоэлектрический материал с проводящими свойствами [22—25]. Однако для рассматриваемых композитов не подходят представительные объемы [13, 14], для которых проводящие включения могли бы выходить на внешние поверхности, а в [22—25] изучали только композиты с мезоразмерными порами и включениями. Таким образом, исследуемые здесь композиты отличаются по своим свойствам от изученных в [13, 14, 22—25] и в других работах, что требует использования специальной структуры представительного объема и проведения отдельного анализа.

## 1. Формулировка задачи гомогенизации

Рассмотрим представительный объем  $\Omega = \Omega^{(1)} \cup \Omega^{(2)} \cup \Omega^{(3)}$  пьезоэлектрического композита, состоящего из трех разных фаз  $\Omega^{(m)}$ ,  $m = 1, 2, 3$ . Будем считать, что область  $\Omega^{(1)}$  является связной, и ее граница  $\Gamma^{(1)} = \partial\Omega^{(1)}$  полностью включает границу  $\Gamma = \partial\Omega$  представительного объема  $\Omega$ , т.е.  $\Gamma \subseteq \Gamma^{(1)}$ . Такое условие означает, что области  $\Omega^{(2)}$ ,  $\Omega^{(3)}$  не выходят на внешнюю границу  $\Gamma$ . Область  $\Omega^{(2)}$  представляет собой совокупность изолированных друг от друга включений  $\Omega_p^{(2)}$ :  $\Omega^{(2)} = \cup_p \Omega_p^{(2)}$ . Область  $\Omega^{(3)}$  является совокупностью объемов  $\Omega_q^{(3)}$  ( $\Omega^{(3)} = \cup_q \Omega_q^{(3)}$ ), которые могут соседствовать как с матрицей композита  $\Omega^{(1)}$ , так и с включениями  $\Omega_p^{(2)}$ .

Предположим, что объемы  $\Omega^{(m)}$  заполнены тремя разными пьезоэлектрическими материалами с модулями упругих жесткостей  $c_{ijkl}^E = c_{ijkl}^{E(m)}$ , измеренными при постоянном электрическом поле, пьезомодулями  $e_{ikl} = e_{ikl}^{(m)}$  и диэлектрическими проницаемостями  $\varepsilon_{ik}^S = \varepsilon_{ik}^{S(m)}$ , измеренными при постоянных деформациях,  $\mathbf{x} \in \Omega^{(m)}$ ,  $m = 1, 2, 3$ . Примем, что область  $\Omega^{(1)}$  заполнена основным пьезокерамическим материалом, включения в  $\Omega^{(2)}$  являются металлическими и моделируются как пьезоэлектрический материал с упругими модулями металла, пренебрежимо малыми пьезомодулями и с очень большими диэлектрическими проницаемостями. Наконец, в  $\Omega^{(3)}$  при моделировании пор будем задавать очень малые значения упругих жесткостей, пьезомодулей и диэлектрических проницаемостей вакуума.

Для нахождения эффективных модулей  $c_{ijkl}^{E\text{eff}}$ ,  $e_{ikl}^{\text{eff}}$  и  $\varepsilon_{ik}^{S\text{eff}}$  рассматриваемых композитов будем численно решать в представительном объеме  $\Omega$  девять краевых задач статической линейной теории пьезоэлектричества. В этих задачах используем систему уравнений

$$\sigma_{ij,j} = 0, \quad D_{i,i} = 0, \quad (1)$$

$$\sigma_{ij} = c_{ijkl}^E \varepsilon_{kl} - e_{kij} E_k, \quad D_i = e_{ikl} \varepsilon_{kl} + \varepsilon_{ik}^S E_k, \quad (2)$$

$$\varepsilon_{kl} = (u_{k,l} + u_{l,k}) / 2, \quad E_k = -\varphi_{,k}, \quad (3)$$

где  $\sigma_{ij}$  и  $\varepsilon_{kl}$  — компоненты тензоров напряжений и деформаций;  $D_i$  и  $E_k$  — компоненты векторов электрической индукции и напряженности электрического поля;  $u_k$  — компоненты вектора перемещений;  $\varphi$  — функция электрического потенциала. (Отметим, что здесь для деформаций используем принятые в теории упругости обозначения  $\varepsilon_{kl}$ , а для диэлектри-

ческих проницаемостей — близкие обозначения  $\varepsilon_{ik}^S$ , принятые в теории пьезоэлектричества.)

На межфазных границах  $\Gamma^{(2)} = \partial\Omega^{(2)}$ ,  $\Gamma^{(3)} = \partial\Omega^{(3)}$  принимаем условия непрерывности полей  $u_k$ ,  $\varphi$ ,  $n_i\sigma_{ij}$  и  $n_iD_i$ , где  $n_i$  — компоненты вектора единичной нормали к поверхности.

Для первых шести задач зададим граничные условия с ненулевыми перемещениями вида

$$u_i = (x_r\delta_{is} + x_s\delta_{ir})S_0 / 2, \quad \varphi = 0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma, \quad (4)$$

где  $\delta_{is}$  — символ Кронекера;  $S_0$  — постоянная величина;  $r, s = 1, 2, 3$ . Здесь шесть разных задач различаются только значениями индексов  $r, s$  в (4): 1)  $r = s = 1$ ; 2)  $r = s = 2$ ; 3)  $r = s = 3$ ; 4)  $r = 2, s = 3$ ; 5)  $r = 1, s = 3$ ; 6)  $r = 1, s = 2$ . С механической точки зрения задачи 1—3 являются задачами растяжения представительного объема при линейных перемещениях в направлении одной из осей  $Ox_r$ , а задачи 4—6 — задачами о сдвиговых деформациях.

Найдя решения задач (1)—(4) и определив поля напряжений  $\sigma_{ij}$  и электрической индукции  $D_i$ , можно найти и эффективные модули

$$c_{ijrs}^{Eff} = \langle \sigma_{ij} \rangle / S_0, \quad e_{irs}^{eff} = \langle D_i \rangle / E_0, \quad (5)$$

где  $\langle \dots \rangle = (1/|\Omega|) \int_{\Omega} (\dots) d\Omega$ .

Еще три задачи характеризуются граничными условиями с ненулевыми электрическими потенциалами, генерирующими преимущественно поля вектора напряженности электрического поля в направлении оси  $x_r$ :

$$u_i = 0, \quad \varphi = -x_r E_0, \quad \mathbf{x} \in \Gamma, \quad (6)$$

где  $E_0$  — постоянная величина;  $r = 1, 2, 3$ .

Из решений задач (1)—(3), (6) можно еще раз вычислить эффективные пьезомодули и найти эффективные диэлектрические проницаемости

$$e_{rij}^{eff} = -\langle \sigma_{ij} \rangle / S_0, \quad \varepsilon_{ir}^{Seff} = \langle D_i \rangle / E_0. \quad (7)$$

Представленный метод гомогенизации основан на энергетическом балансе между композитной средой и эффективной однородной средой и на соотношениях Хилла для осредненных величин. Обоснование данного метода для обычных пьезокомпозитов можно найти в [19, 20]. В [26] показана справедливость предельных переходов в задачах гомогенизации диэлектрических композитов при моделировании проводящих включений и пор заданием очень больших или пренебрежимо малых диэлектрических проницаемостей. Корректность аналогичного подхода при гомогенизации пьезоэлектрических композитов с экстремальными значениями модулей

проводящих включений или пор была подтверждена численными экспериментами в [22—25].

С учетом свойств симметрии  $c_{ijkl}^E = c_{jikl}^E = c_{klij}^E$ ,  $e_{ikl} = e_{ilk}$ ,  $\varepsilon_{ik}^S = \varepsilon_{ki}^S$ , справедливых также и для эффективных модулей [22], решения шести задач (1)—(4) и трех задач (1)—(3), (6) в совокупности позволяют по (5), (7) определить все эффективные модули пьезокомпозита с произвольным типом анизотропии его фаз и с возможной геометрической анизотропией представительного объема. При этом значения повторяющихся модулей, найденных из разных задач, будут совпадать. Естественно, что при решении задач гомогенизации численными методами равенства некоторых эффективных модулей будут выполняться только с учетом вычислительной погрешности.

Для композитов определенных классов анизотропии количество задач гомогенизации можно сократить, поскольку некоторые задачи будут давать одинаковые эффективные модули. Например, для пьезокерамических композитов с гексагональным классом анизотропии достаточно решить пять задач гомогенизации, которые позволят вычислить все 10 значений эффективных модулей:  $c_{1111}^{Eff} = c_{11}^{Eff}$ ,  $c_{1122}^{Eff} = c_{12}^{Eff}$ ,  $c_{1133}^{Eff} = c_{13}^{Eff}$ ,  $c_{3333}^{Eff} = c_{33}^{Eff}$ ,  $c_{2323}^{Eff} = c_{44}^{Eff}$ ,  $e_{311}^{eff} = e_{31}^{eff}$ ,  $e_{33}^{eff} = e_{333}^{eff}$ ,  $e_{113}^{eff} = e_{15}^{eff}$ ,  $\varepsilon_{11}^{Seff}$ ,  $\varepsilon_{33}^{Seff}$ . Здесь и далее переход от тензорных обозначений материальных модулей к матричным обозначениям Фойгта осуществляется по стандартным законам соответствия:  $c_{ijkl}^{Eff} = c_{\alpha\beta}^{Eff}$ ;  $e_{ikl}^{eff} = e_{i\alpha}^{eff}$ ;  $c_{ijkl}^E = c_{\alpha\beta}^E$ ;  $e_{ikl} = e_{i\beta}$ ;  $i, j, k, l = 1, 2, 3$ ;  $\alpha, \beta = 1, 2, \dots, 6$ ;  $(ij) \Leftrightarrow \alpha$ ;  $(kl) \Leftrightarrow \beta$ ;  $(11) \Leftrightarrow 1$ ;  $(22) \Leftrightarrow 2$ ;  $(33) \Leftrightarrow 3$ ;  $(23) \sim (32) \Leftrightarrow 4$ ;  $(13) \sim (31) \Leftrightarrow 5$ ;  $(12) \sim (21) \Leftrightarrow 6$ .

В заключение данного раздела отметим, что описанный подход для трехфазных пьезокомпозитов справедлив и для двухфазных композитов, когда его вторая или третья фаза отсутствует.

## 2. Модель представительного объема

Решения задач гомогенизации (1)—(4) или (1)—(3), (6) в представительных объемах с закрытой структурой включений и/или пористости будем осуществлять численно в конечно-элементном комплексе ANSYS.

Представительные объемы  $\Omega$  формировались в форме регулярной сетки элементов аналогично [24, 27]. Первоначально генерировали базовую кубическую ячейку длиной  $l_c$  вдоль одной из осей, состоящую из 27 конечных элементов с материальными свойствами матрицы. В ее центре располагался кубический элемент с ребром  $l_p = k_p l_c$ ,  $k_p < 1$ , который потенциально может являться включением. Этот элемент окружался 26 гексаэдрами. Для композита с мезоразмерными порами будем предполагать, что с включением контактируют по общим граням  $k_d$  мезопор, где  $k_d$  может принимать значения от 1 до 6.

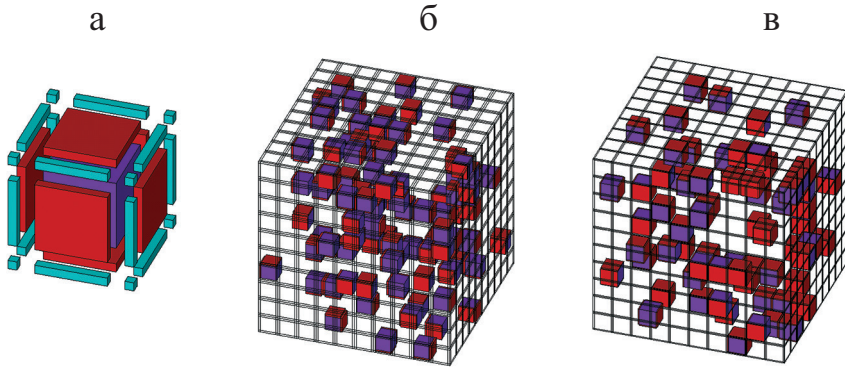


Рис. 1. Базовая ячейка в разобранном виде (а) и примеры представительного объема, содержащего 5 % включений и 1,25 % пор при  $\kappa_d = 2$  (б) и  $\kappa_d = 4$  (в).

Для двухкомпонентных композитов коэффициент  $k_e$  будем задавать явно, а для трехкомпонентных будем определять по формуле  $k_e = \kappa_d v_e / (\kappa_d v_e + 2v_p)$ , где  $v_e$  — объемная доля включений,  $v_p$  — объемная доля мезоразмерных пор.

Пример базовой ячейки в “разобранном” виде показан на рис. 1—а, где элемент со свойствами включения находится внутри в центре и показан фиолетовым цветом, а шесть элементов, которые могут быть порами, — красным цветом.

Изначально все элементы ячейки имеют свойства пьезокерамического материала матрицы композита. Затем из построенной ячейки ее трансляцией  $n_a - 1$  раз вдоль каждой из трех осей генерируется массив конечных элементов, включающий  $n_c = n_a^3$  базовых ячеек. В полученном массиве генератором случайных чисел из центральных элементов ячеек выбираются элементы-включения, и их материальные модули модифицируются в соответствии со свойствами включений. В этом же цикле для каждого включения также генератором случайных чисел из шести соседствующих по граням конечных элементов выбираются  $\kappa_d$  раз элементы-мезопоры, и их свойства заменяются на свойства пор. При этом элементы-включения создаются  $n_e = [v_e n_c / k_e^3]$  раз, где [...] — целая часть числа, а элементы-мезопоры создаются  $n_p = \kappa_d n_e$  раз. Естественно, что для двухфазных композитов блок генерации элементов-мезопор не выполняется.

Полученный в итоге представительный объем  $\Omega$  трехфазного или двухфазного композита имеет частично детерминированную и частично стохастическую структуру с изолированными включениями и мезопорами.

На рис. 1—б, в приведены два варианта представительного объема композита для  $n_a = 10$ ,  $v_e = 0,05$ ,  $v_p = 0,015$ . На рис. 1—б по граням каждого включения расположено по две мезопоры, т.е.  $\kappa_d = 2$ , а на рис. 1—в с каждым включением соседствует по четыре поры, т.е.  $\kappa_d = 4$ . Элементы



со свойствами включений и пор на рис. 1—б, в выделены цветом также, как и на рис. 1—а. При этом рис. 1—а, б, в выполнены в разном масштабе. Как видно из рис. 1—б, в, при одинаковом проценте включений и пор количество мезопор  $\kappa_d$  влияет на относительные размеры включений и соответственно на общее количество включений и мезопор. Так, представительный объем на рис. 1—б содержит 98 включений при  $\kappa_d = 2$ , а на рис. 1—в — 71 включение при  $\kappa_d = 4$ .

#### 4. Численные результаты

При вычислительных экспериментах были приняты следующие значения модулей для пьезокерамики титаната бария  $\text{BaTiO}_3$  [28, 29]:  $c_{11}^{E(1)} = 16,6 \cdot 10^{10}$ ,  $c_{12}^{E(1)} = 7,66 \cdot 10^{10}$ ,  $c_{13}^{E(1)} = 7,75 \cdot 10^{10}$ ,  $c_{33}^{E(1)} = 16,2 \cdot 10^{10}$ ,  $c_{44}^{E(1)} = 4,29 \cdot 10^{10}$  Н/м<sup>2</sup>;  $e_{31}^{(1)} = -4,4$ ,  $e_{33}^{(1)} = 18,6$ ,  $e_{15}^{(1)} = 11,6$  Кл/м<sup>2</sup>;  $\varepsilon_{11}^{S(1)} = 1083\varepsilon_0$ ,  $\varepsilon_{33}^{S(1)} = 1201\varepsilon_0$ ;  $\varepsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{-12}$  Ф/м — диэлектрическая проницаемость вакуума.

Материал включений из никеля считали изотропным со следующими упругими константами: модулем Юнга  $E^{(2)} = 21,6 \cdot 10^{10}$  Н/м<sup>2</sup>, коэффициентом Пуассона  $\nu^{(2)} = 0,31$ . Тогда значения модулей жесткости никеля  $c_{\alpha\beta}^{(2)}$  будут равны  $c_{11}^{(2)} = c_{33}^{(2)} = 29,94 \cdot 10^{10}$ ,  $c_{12}^{(2)} = c_{13}^{(2)} = 13,45 \cdot 10^{10}$ ,  $c_{44}^{(2)} = 8,24 \cdot 10^{10}$  Н/м<sup>2</sup>.

Как можно заметить, значения модуля жесткости никеля превосходят соответствующие значения упругого модуля пьезокерамики титаната бария почти в два раза:  $c_{44}^{(2)} / c_{44}^{E(1)} = 1,92$ ,  $c_{33}^{(2)} / c_{33}^{E(1)} = 1,85$ ,  $c_{33}^{(2)} / c_{11}^{E(1)} = 1,80$ ,  $c_{13}^{(2)} / c_{13}^{E(1)} = 1,74$ . Поскольку никель не является пьезоэлектрическим материалом, то для него принимали очень малое значение пьезомодуля  $e_{i\beta}^{(2)} = 10^{-10}$  Кл/м<sup>2</sup>, а для моделирования электропроводящих свойств никеля, как уже было отмечено, задавали очень большие значения диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_{ii}^{(2)} = 10^{11}\varepsilon_0$ . Свойства пор учитывали введением гипотетического материала с очень малыми модулями  $c_{\alpha\beta}^{(3)} = 10^{-10}$ ,  $c_{\alpha\beta}^{(1)}$ ,  $e_{i\beta}^{(3)} = e_{i\beta}^{(2)}$ ,  $\varepsilon_{ii}^{(3)} = \varepsilon_0$ .

При расчетах представительный объем состоял из  $n_c = 15^3$  базовых ячеек, каждая из которых содержала 27 гексаэдральных 20-узловых пьезоэлектрических конечных элементов SOLID226. Как показали тестовые расчеты, принятый размер сетки с  $n_a = 15$  оказался разумным компромиссом между более вычислительно затратными сетками с  $n_a = 20$  и сетками с  $n_a = 10$ , для которых элементы случайности в ряде случаев давали большой разброс значений.

Некоторые результаты вычислительных экспериментов представлены на рис. 2, где  $r(c_{\alpha\beta}^E)$ ,  $r(e_{i\beta})$ ,  $r(\varepsilon_{ii}^S)$ ,  $r(d_{i\beta})$  — эффективные модули, отнесенные к соответствующим модулям сплошной



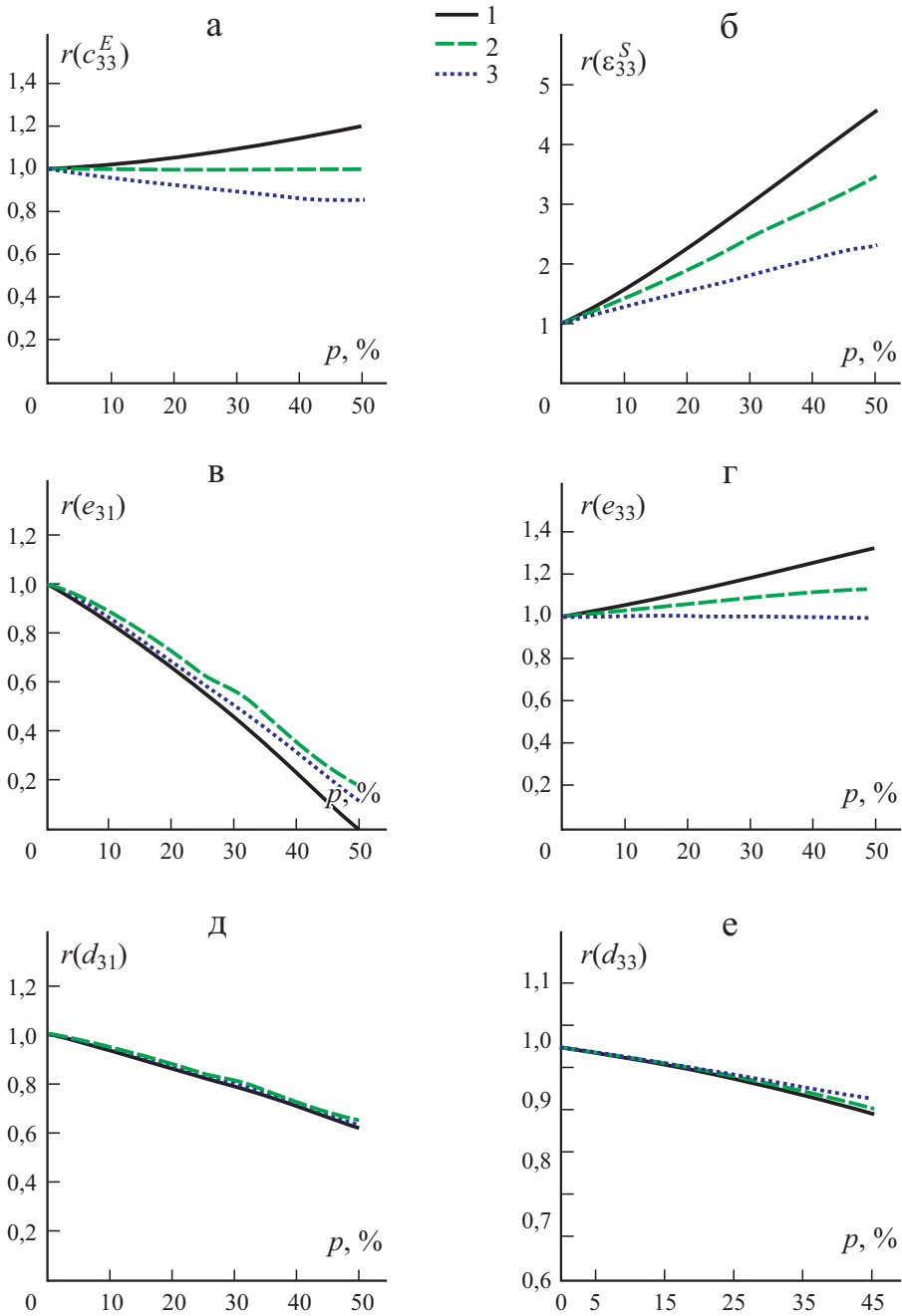


Рис. 2. Зависимость относительных эффективных модулей жесткости  $r(c_{33}^E)$  (а) и диэлектрических проницаемостей  $r(\epsilon_{33}^S)$  (б), эффективных пьезомодулей  $r(e_{31})$  (в) и  $r(e_{33})$  (г), эффективных пьезомодулей  $r(d_{31})$  (д) и  $r(d_{33})$  (е) от процента включений  $p$  для микропористых (1) и мезопористых (2 и 3) композитов при  $k_d = 2$  и 3 соответственно.

пьезокерамики:  $r(c_{\alpha\beta}^E) = c_{\alpha\beta}^{E\text{eff}} / c_{\alpha\beta}^E$ ,  $r(e_{i\beta}) = e_{i\beta}^{\text{eff}} / e_{i\beta}$ ,  $r(\varepsilon_{ii}^S) = \varepsilon_{ii}^{S\text{eff}} / \varepsilon_{ii}^S$ ,  $r(d_{i\beta}) = d_{i\beta}^{\text{eff}} / d_{i\beta}$ . Здесь важные для многих применений пьезоэлектрические модули  $d_{i\beta}^{\text{eff}}$ ,  $d_{i\beta}$  определяем по формулам  $d_{i\beta}^{\text{eff}} = e_{i\alpha}^{\text{eff}} s_{\alpha\beta}^{E\text{eff}}$ ,  $d_{i\beta} = e_{i\alpha} s_{\alpha\beta}^E$ , где  $s_{\alpha\beta}^{E\text{eff}}$ ,  $s_{\alpha\beta}^E$  — компоненты матриц податливости, обратных к матрицам жесткости  $c_{\alpha\beta}^{E\text{eff}}$ ,  $c_{\alpha\beta}^E$  соответственно.

Для анализа принято, что объемная доля пор  $v_p$  связана с объемной долей включений  $v_e$  формулой  $v_p = v_e / 4$ , причем поры являются только микроразмерными или только мезоразмерными. Для микроразмерных пор для базовой ячейки представительного объема принимали, что  $k_e = 0,8$ , а для мезоразмерных пор рассматривали варианты пьезокомпозитов с двумя ( $\kappa_d = 2$ ) и четырьмя ( $\kappa_d = 4$ ) мезоразмерными порами вблизи каждого из включений.

В случае микропористых композитов использовали двухуровневый подход для двухфазного представительного объема. На первом этапе (на микроуровне) вычисляли эффективные свойства пьезоматериала с порами. На втором этапе (на мезоуровне) микропористую керамику считали однородным материалом с эффективными модулями, найденными на первом этапе, и решали задачу гомогенизации для микропористой пьезокерамики с проводящими включениями.

На рис. 2 приведены зависимости относительных значений эффективных модулей от процента включений  $p = v_e \cdot 100\%$  для трех типов пористых композитов.

Как видно из рис. 2—*a*, относительный модуль жесткости  $r(c_{33}^E)$  для пьезокомпозита с микропористостью незначительно возрастает при увеличении процента включений, но убывает для пьезокомпозита с мезопористостью, причем более сильно — при увеличении количества мезопор. Такое поведение модулей объясняется тем, что при увеличении доли включений  $v_e$  увеличивается и пористость ( $v_p = v_e / 4$ ), причем модули жесткости включений лишь почти в два раза превосходят модули пьезокерамики титаната бария, но у пор модули жесткости пренебрежимо малы. Мезопористый композит является менее жестким, чем микропористый, что вполне естественно. При этом с ростом количества мезопор уменьшается площадь контакта включений с керамической матрицей, что дополнительно уменьшает модули жесткости.

Относительные модули жесткости  $r(c_{11}^E)$ ,  $r(c_{12}^E)$ ,  $r(c_{13}^E)$ ,  $r(c_{44}^E)$  изменяются почти аналогично относительному модулю  $r(c_{33}^E)$ . Однако кривая 2 для сдвигового модуля  $r(c_{44}^E)$  совсем немного возрастает с ростом величины  $p$ .

Относительная диэлектрическая проницаемость  $r(\varepsilon_{33}^S)$  сильно возрастает при увеличении  $p$  (см. рис. 2—*б*), что очевидно, поскольку металлические включения являются проводящими. Аналогичные зависимости

наблюдали и для диэлектрической проницаемости  $r(\varepsilon_{11}^S)$ . При этом диэлектрические проницаемости существенно зависят от типа пористости и от количества мезопор.

Из данных рис. 2—в, г видно, что относительные пьезомодули  $r(e_{31})$  и  $r(e_{33})$  по-разному зависят от процента включений. Относительный поперечный пьезомодуль  $r(e_{31})$  очень быстро убывает с ростом  $p$  как для микропористых, так и для мезопористых пьезокомпози́тов. Однако продольный пьезомодуль  $r(e_{33})$  несколько возрастает у микропористых компози́тов, менее существенно возрастает у мезопористых компози́тов с небольшим количеством мезопор около включений ( $\kappa_d = 2$ ) и почти не изменяется у мезопористых компози́тов с  $\kappa_d = 4$ . Отметим, что разное поведение поперечных и продольных пьезомодулей в зависимости от процента металлизированных поверхностей пор или металлических включений наблюдали и для пьезокомпози́тов, рассмотренных в [22—25].

Важные для практических приложений пьезомодули  $|d_{i\beta}^{\text{eff}}|$  убывают с ростом доли включений (см. рис. 2—д, е) и слабо зависят от типа пористости. При этом пьезомодуль  $d_{33}^{\text{eff}}$  остается почти постоянным, что важно при использовании рассмотренных пьезокомпози́тов в активных диэлектрических конденсаторах.

### Заключение

В работе проведен сравнительный компьютерный анализ двух- и трехкомпонентных пьезокомпози́тов, состоящих из керамики титаната бария, включений из никеля и пор. Разработаны конечно-элементные модели представительного объема, предназначенные для моделирования микропористых пьезокомпози́тов и пьезокомпози́тов с замкнутыми структурами металлических включений и мезопор, сравнимых по размерам с размерами включений.

Установлены зависимости эффективных модулей от процентной доли включений и пористости. Обнаружено, что разный тип пористости может приводить как к росту, так и к убыванию модулей жесткости при увеличении доли включений. Подтвержден ожидаемый существенный рост коэффициентов диэлектрических проницаемостей при увеличении процента включений  $p$ , который достаточно сильно зависит от характера пористости. Отмечено разное поведение эффективных пьезомодулей с ростом величины  $p$  и их меньшая зависимость от типа пористости.

Естественно, что выявленные зависимости эффективных модулей зависят от доли включений и пор. Поэтому при других соотношениях между долями включений и пор эти зависимости могут качественно меняться.

Результаты могут быть уточнены при использовании более сложных нерегулярных структур пьезокомпозигов и при учете неоднородной поляризации вблизи пор и включений аналогично [20, 23, 30, 31].

Работа выполнена при частичной поддержке гранта Правительства РФ № 075-15-2019-1928.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Du H., Lin X., Zheng H., Qu B., Huang Y., Chu D.* Colossal permittivity in percolative ceramic/metal dielectric composites // *J. Alloys Compd.* — 2016. — Vol. 663. — P. 848—861.
2. *Nan C.-W., Shen Y., Ma J.* Physical properties of composites near percolation // *Annu. Rev. Mater. Res.* — 2010. — Vol. 40, No. 1. — P. 131—151.
3. *Pecharrroman C., Esteban-Betegon F., Bartolome J. F., Lopez-Esteban S., Moya J. S.* New percolative BaTiO<sub>3</sub>—Ni composites with a high and frequency-independent dielectric constant ( $\epsilon_r \approx 80\,000$ ) // *Adv. Mater.* — 2001. — Vol. 13, No. 20. — P. 1541—1544.
4. *Saleem M., Kim I. S., Song J. S., Jeong S. J., Kim M. S., Yoon S.* Synthesis, sintering and dielectric properties of a BaTiO<sub>3</sub>—Ni composite // *Ceram. Int.* — 2014. — Vol. 40. — P. 7329—7335.
5. *Sánchez-Jiménez P. E., Pérez-Maqueda L. A., Diáñez M. J., Perejón A., Criado J. M.* Mechanochemical preparation of BaTiO<sub>3</sub>—Ni nanocomposites with high dielectric constant // *Compos. Struct.* — 2010. — Vol. 92. — P. 2236—2240.
6. *Tuan W.-H., Huang Y.-C.* High percolative BaTiO<sub>3</sub>—Ni nanocomposites // *Mater. Chem. Phys.* — 2009. — V. 118. — P. 187—190.
7. *Valant M., Dakskobler A., Ambrozic M., Kosmac T.* Giant permittivity phenomena in layered BaTiO<sub>3</sub>—Ni composites // *J. Eur. Ceram. Soc.* — 2006. — Vol. 26, No. 6. — P. 891—896.
8. *Hsiang H.-I., Yen F.-S., Huang C.-Y.* Effects of porosity on dielectric properties of BaTiO<sub>3</sub> ceramics // *Jpn. J. Appl. Phys.* — 1995. — Vol. 34, No. 4R. — P. 1922—1925.
9. *Lukacs V. A., Stanculescu R., Curecheriu L., Ciomaga C. E., Horchidan N., Cioclea C., Mitoseriu L.* Structural and functional properties of BaTiO<sub>3</sub> porous ceramics produced by using pollen as sacrificial template // *Ceram. Int.* — 2020. — Vol. 46. — P. 523—530.
10. *Lv L., Wang Y., Gan L., Liu Q., Zhou J.-P.* Sintering process effect on the BaTiO<sub>3</sub> ceramic properties with the hydrothermally prepared powders // *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* — 2018. — Vol. 29. — P. 14883—14889.
11. *Pavlović V. P., Nikolić M. V., Nolić Z., Branković G., Živković L., Pavlović V. B., Ristić M. M.* Microstructure evolution and electric properties of mechanically activated BaTiO<sub>3</sub> ceramics // *J. Eur. Ceram. Soc.* — 2007. — Vol. 27. — P. 575—579.
12. *Rybyanets A. N., Rybyanets A. A.* Ceramic piezocomposites: Modeling, technology, and characterization // *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* — 2011. — Vol. 58. — P. 1757—1773.
13. *Kudimova A. B., Nasedkin A. V.* Analysis of porosity influence on the effective moduli of ceramic matrix PZT composite using the simplified finite element model // *J. Adv. Dielectr.* — 2019. — Vol. 9, No. 6. — 1950043 (9 p.).

14. Кудимова А. Б., Наседкин А. В. Конечно-элементный анализ эффективных свойств корундосодержащей пьезокерамики с разномасштабными порами // Вычислит. механика сплошных сред. — 2020. — Т. 13, № 1. — С. 44—59.
15. Martinez-Ayuso G., Friswell M. I., Adhikari S., Khodaparast H. H., Berger H. Homogenization of porous piezoelectric materials // Int. J. Solids Struct. — 2017. — Vol. 113—114. — P. 218—229.
16. Mawassy N., Reda H., Ganghoffer J.-F., Eremeyev V. A., Lakiss H. A variational approach of homogenization of piezoelectric composites towards piezoelectric and flexoelectric effective media // Int. J. Eng. Sci. — 2021. — Vol. 158. — 103410 (23 p.).
17. Mishra N., Das K. A Mori—Tanaka based micromechanical model for predicting the effective electroelastic properties of orthotropic piezoelectric composites with spherical inclusions // SN Appl. Sci. — 2020. — Vol. 2. — 1206 (14 p.).
18. Rohan E., Lukeš V. Homogenization of the fluid-saturated piezoelectric porous media // Int. J. Solids Struct. — 2018. — Vol. 147. — P. 110—125.
19. Hori M., Nemat-Nasser S. Universal bounds for effective piezoelectric moduli // Mech. Mater. — 1998. — Vol. 30, No. 1. P. 1—19.
20. 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 — N. Y.: Nova Sci. Publ., 2011. — Ch. 7 — P. 231—254.
21. Newnham R. E., Skinner D. P., Cross L. E. Connectivity and piezoelectric-pyroelectric composites // Mater. Res. Bull. — 1978. — Vol. 13. — P. 525—536.
22. Наседкин А. В., Наседкина А. А., Нассар М. Э. Гомогенизация пористых пьезокомпозитов с экстремальными свойствами на границах пор методом эффективных модулей // Изв. РАН. МТТ. — 2020. — № 6. — С. 82—92.
23. Nasedkin A. V., Nassar M. E. Effective properties of a porous inhomogeneously polarized by direction piezoceramic material with full metalized pore boundaries: finite element analysis // J. Adv. Dielectr. — 2020. — Vol. 10, No. 5. — 2050018 (10 p.).
24. Nasedkin A. V., Nasedkina A. A., Nassar M. E., Rybyanets A. N. Effective properties of piezoceramics with metal inclusions: numerical analysis // Ferroelectrics. — 2021. — Vol. 571, No. 1. — P. 263—267.
25. Nasedkin A., Nassar M. E. A numerical study about effects of metal volume fraction on effective properties of porous piezoelectric composite with metalized pore boundaries // Mech. Adv. Mater. Struct. — 2021. — doi: 10.1080/15376494.2021.1928346 (14 p.).
26. Кудимова А. Б., Наседкин А. В. О предельных переходах в пространственных задачах гомогенизации двухкомпонентных диэлектрических композитов с экстремальными модулями одной из фаз // Изв. вузов. Северо-Кавказ. регион. Естествен. науки. — 2021. — № 1. — С. 25—33.
27. Nasedkin A., Nasedkina A., Rybyanets A. Finite element simulation of effective properties of microporous piezoceramic material with metallized pore surfaces // Ferroelectrics. — 2017. — Vol. 508. — P. 100—107.
28. Berlincourt D., Jaffe H. Elastic and piezoelectric coefficients of single-crystal Barium Titanate // Phys. Rev. — 1958. — Vol. 111, No. 1. — P. 143—148.
29. Gao J, Xue D, Liu W, Zhou C, Ren X. Recent progress on BaTiO<sub>3</sub>-based piezoelectric ceramics for actuator applications // Actuators. — 2017. — Vol. 6, No. 3. — 24 (10 p.).

30. *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. Advanced Structured Materials. Vol. 109 / Ed. M. A. Sumbatyan* — Singapore: Springer, 2019. — Ch. 8. — P. 113—131.

31. *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 (6 p.).

Поступила в редакцию 30.03.2021

Окончательный вариант поступил 02.06.2021

Received March 30, 2021 (June 2, 2021)

---