



**Institut  
für  
Mechanik**

Berichte des Instituts für Mechanik (Bericht 1/2017)

**Stephan Lange**

**Untersuchung des konstitutiven Verhaltens  
ferroelektrischer, ferromagnetischer  
und multiferroischer Festkörper  
bei mehrachsiger multiphysikalischer  
Beanspruchung auf Basis kondensierter Modelle**

kassel  
university



press

# Berichte des Instituts für Mechanik

Bericht 1/2017



Stephan Lange

**Untersuchung des konstitutiven Verhaltens ferroelektrischer,  
ferromagnetischer und multiferroischer Festkörper  
bei mehrachsiger multiphysikalischer Beanspruchung  
auf Basis kondensierter Modelle**

Die vorliegende Arbeit wurde vom Fachbereich Maschinenbau der Universität Kassel als Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der Ingenieurwissenschaften (Dr.-Ing.) angenommen.

Erster Gutachter: Prof. Dr.-Ing. habil. Andreas Ricoeur

Zweiter Gutachter: Prof. Dr.-Ing. habil. Jörg Schröder

Tag der Einreichung:

14. Dezember 2016

Tag der mündlichen Prüfung:

1. Juni 2017

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek  
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen  
Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über  
<http://dnb.dnb.de> abrufbar.

Zugl.: Kassel, Univ., Diss. 2017

ISBN 978-3-7376-0342-3 (print)

ISBN 978-3-7376-0343-0 (e-book)

DOI: <http://dx.medra.org/10.19211/KUP9783737603430>

URN: <http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0002-403438>

© 2017, kassel university press GmbH, Kassel

[www.upress.uni-kassel.de](http://www.upress.uni-kassel.de)

Printed in Germany

für meinen Vater  
Hans-Joachim Lange

\*14. Dezember 1946      †12. Januar 2013



# Zusammenfassung

Aufgrund ihrer besonderen elektro- bzw. magnetomechanischen Eigenschaften kommen ferroelektrische und -magnetische Materialien in einem breiten Spektrum der Technik zum Einsatz. Etablierte Anwendungsgebiete sind u.a. die Medizintechnik, Automobil- sowie Luft- und Raumfahrtindustrie. Als Komponenten sogenannter Smart Materials werden sie dort in Sensoren oder Aktoren eingesetzt. In den vergangenen zwei Jahrzehnten wurde eine Vielzahl von Modellen zur Simulation des nichtlinearen Verhaltens dieser Materialien entwickelt und im Rahmen der Finite-Elemente-Methode (FEM) implementiert. Die Implementierung der Modelle in die FEM geht mit einem großen Zeitaufwand einher, allerdings können komplexe Randwertaufgaben gelöst werden. Experimentellen Untersuchungen zum Materialverhalten liegen hingegen meist uniaxiale Lastfälle und einfachste Geometrien zugrunde.

Gegenstand der vorliegenden Dissertation ist die Entwicklung einer Methode zur Untersuchung des makroskopischen polykristallinen Materialverhaltens ferroelektrischer, -magnetischer und multiferroischer Materialien ohne die Verwendung eines räumlichen Diskretisierungsverfahrens. Trotzdem sollen die irreversiblen Prozesse, Eigenspannungen und das Schädigungsverhalten als Resultat der Domänenwandverschiebungen berücksichtigt werden. Im Gegensatz zu räumlichen Diskretisierungsverfahren wird die Kornstruktur des repräsentativen Volumenelements (RVE) auf einen makroskopischen materiellen Punkt kondensiert. Ist der Aspekt der Interaktion der Kornstruktur aufgrund der Diskretisierung bei der FEM intrinsisch berücksichtigt, so ist die Realisierung dieser Interaktion eine zentrale Aufgabe bei der hier entwickelten Kondensierten Methode (KM).

Ausgehend von den konstitutiven Gleichungen des mikroskopischen materiellen Punktes, welcher ein einzelnes ferroelektrisches oder ferromagnetisches Korn repräsentiert, werden die konstitutiven Gleichungen des makroskopischen materiellen Punktes hergeleitet. Im Sinne der Homogenisierung werden Annahmen in Form der generalisierten VOIGT-Approximation oder einer gemischten, generalisierten, REUSS/VOIGT-Approximation getroffen. Die KM, welche zunächst für ferroelektrisches Materialverhalten entwickelt wurde, wird auf ferromagnetisches und multiferroisches Materialverhalten erweitert. Ziel ist hierbei die Optimierung ferroelektrisch-ferromagnetischer Komposite im Hinblick auf einen optimalen magnetoelektrischen Kopplungskoeffizienten.

Neben der Simulation des Materialverhaltens wird in dieser Arbeit, basierend auf dem klassischen PARIS-Gesetz, ein Modell zur Lebensdauervorhersage von ferroelektrischen Materialien unter kombinierter elektromechanischer Beanspruchung vorgestellt. Da die Entwicklung des Modells sowie die Untersuchung zu fundamentalen Aspekten der Lebensdauer ferroelektrischer Materialien im Vordergrund standen, wurden einige Annahmen und einfache Randbedingungen zugrunde gelegt. Aufgrund der Materialcharakteristika können mit diesem Modell Aussagen zur Lebensdauer bereits aus dem Bereich des Kurzrischwachstums entnommen werden.

Die Arbeit schließt ab mit einer Diskussion der Ergebnisse zur Untersuchung des Materialverhaltens und der Lebensdauervorhersage. Hier stehen u.a. der Einfluss einer elektromechanischen Beanspruchung auf Lebensdauer und Akzorhub im Vordergrund.



## Abstract

Due to their special electro- or magnetomechanical properties, ferroelectric or ferromagnetic materials are widely used in technical applications. Established fields of application are e.g. the medical technology, the automotive or aerospace industry. As components of smart structures, they are used as sensors or actuators. Most of the models describing the nonlinear behavior are implemented within the framework of the Finite-Element-Method (FEM). The implementation of a discretization scheme is going along with a large effort and the solution of the problems requires high computational costs. Experimental investigations, however, are predominantly restricted to very basic boundary value problems under uniaxial loading.

In this work, a method to investigate the macroscopic polycrystalline behavior of ferroelectric, ferromagnetic and multiferroic materials without any kind of discretization scheme is presented. Nevertheless, irreversible processes, residual stresses and the damage behavior as a result of the domain wall motion should be considered. In comparison to a method which uses a discretization scheme, the grain structure of the representative volume element (RVE) is condensed to a macroscopic material point. The interaction of the grain structure being taken into account intrinsically due to the discretization of the FEM, the realization of this interaction is a central task with the condensed method (CM) developed in this work.

Starting from the constitutive equations of a microscopic material point, which represents a ferroelectric or ferromagnetic grain, the constitutive equations of the macroscopic material point are determined. In the sense of homogenization, assumptions are made in terms of a generalized VOIGT- or a mixed, generalized, REUSS/VOIGT-assumption. The CM, which was first developed for a pure ferroelectric material behavior, is extended towards ferromagnetic and multiferroic behaviors. The aim of this extension is the optimization of multiferroic composites with regard to an optimal magnetoelectric coupling coefficient, where a ferromagnetic material is embedded into a ferroelectric matrix.

In addition to the simulation of the nonlinear material behavior and based on the classical PARIS law, a model to predict the life time of ferroelectric materials under combined electromechanical loading is presented. Since the development of the model and fundamental investigations were in the focus, a few assumptions and simple boundary conditions were taken as a basis. Due to the characteristic of the material, informations concerning the life time can already be taken from the stage of small crack lengths.

The work concludes with a discussion of the results of the investigations of the material behavior and the life time prediction. Here, the influence of an electromechanical loading on the life time and actuation strain is in the focus.

# Vorwort

Die vorliegende Dissertationsschrift entstand in den Jahren 2012 bis 2017 während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Mechanik der Universität Kassel.

Mein besonderer Dank gilt an dieser Stelle Herrn Professor Dr.–Ing. habil. Andreas Ricoeur für die mir gebotene Möglichkeit zur wissenschaftlichen Arbeit, die ausgezeichnete Betreuung bis zur Promotion und die Übernahme des Hauptreferates. Die vielen wissenschaftlichen, mitunter stundenlangen, Diskussionen und die stets offene Tür von Herrn Professor Ricoeur haben nicht unwesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen. Des Weiteren möchte ich mich bei Herrn Professor Dr.–Ing. habil. Jörg Schröder von der Universität Duisburg–Essen für das Interesse an meiner Arbeit und die Übernahme des Koreferats bedanken. Ebenfalls bedanken möchte ich mich bei Herrn Professor Dr.–Ing. Jens Wackerfuß und Herrn Professor Dr. Ralf–Kiran Schulz für das Interesse an meiner Arbeit und ihr Mitwirken in der Prüfungskommission.

Schließlich möchte ich mich bei den zahlreichen Mitgliedern des Instituts für Mechanik für die ausgezeichnete Arbeitsatmosphäre und die vielen fachlichen Diskussionen, die mitunter auch Einzug in diese Arbeit gefunden haben, bedanken. Das freundschaftliche Verhältnis unter den Kollegen war mir stets eine willkommene Abwechslung zum wissenschaftlichen Alltag. An dieser Stelle möchte ich mich nochmals für den legendären Doktorhut bedanken. Ein weiterer Dank gilt allen (ehemaligen) Studierenden, die durch Anfertigen ihrer Abschlussarbeit oder im Rahmen einer Tätigkeit als wissenschaftliche Hilfskraft meine Arbeit unterstützt und somit vorangebracht haben. Besonders bedanken möchte ich mich bei Frau Christa Ellrich für ihre Unterstützung bei sämtlichen organisatorischen Fragen oder andersartigen Probleme in den vergangenen Jahren. Durch ihre Unterstützung hat sie mir organisatorisch häufig den Rücken freigehalten.

Meinen langjährigen Weggefährten Janto und Tore möchte ich an dieser Stelle für das Korrekturlesen meiner Arbeit danken.

Nicht zuletzt möchte ich mich bei meinen Eltern für ihre Unterstützung in all den Jahren bedanken. Sie haben mich immer darin bekräftigt meinen Weg zu gehen. Ihr Glaube und Vertrauen in meine Person war und ist für mich stets ein großer Rückhalt. Ebenfalls bedanken möchte ich mich bei meiner Freundin Anke. Durch ihre Unterstützung und ihr Verständnis in den vergangenen fünf Jahren hat sie ebenfalls zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Widmen möchte ich diese Arbeit meinem Vater, Hans–Joachim Lange, der mir stets ein sehr großes Vorbild gewesen ist. Leider war es ihm nicht vergönnt den Abschluss dieser Arbeit zu erleben.

Zierenberg, im Juni 2017

STEPHAN LANGE



# Inhaltsverzeichnis

<b>Symbolverzeichnis</b>	<b>v</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>ix</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>xiii</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Motivation und Ziele der Arbeit . . . . .	1
1.2 Stand der Forschung . . . . .	2
1.3 Gliederung der Arbeit . . . . .	4
<b>2 Grundlagen ferroelektrischer und ferromagnetischer Materialien</b>	<b>7</b>
2.1 Bindungen und Kristallstrukturen . . . . .	7
2.2 Ferroelektrika . . . . .	9
2.2.1 Einordnung der Ferroelektrika in die Gruppe der Dielektrika	9
2.2.2 Domänenstruktur und Hystereseverhalten einphasiger Mate-	
rialien . . . . .	15
2.3 Ferromagnetika . . . . .	17
2.3.1 Eigenschaften ferromagnetischer Materialien . . . . .	17
2.4 Multiferroische Komposite . . . . .	20
<b>3 Grundgleichungen</b>	<b>23</b>
3.1 Kinematik des Kontinuums . . . . .	23
3.2 Grundlagen der Dynamik und Elektrodynamik des Kontinuums . .	27
3.3 Thermodynamische Grundlagen multiferroischer Materialien . . . .	32
<b>4 Modellierung der mikrostrukturellen inelastischen Prozesse</b>	<b>41</b>
4.1 Spontane Verzerrung . . . . .	42
4.1.1 Tetragonale Einheitszelle . . . . .	42
4.1.2 Rhomboedrische Einheitszelle . . . . .	44
4.1.2.1 Berechnung der Raumdiagonalen der Betrachtungs-	
ebene . . . . .	44
4.1.2.2 Berechnung der spontanen Verzerrung der Betracht-	
ungsebene . . . . .	46
4.2 Änderung der spontanen Polarisaton . . . . .	48
<b>5 Kondensierte Modelle für ferroische Materialien</b>	<b>51</b>
5.1 Ferroelektrisches Materialverhalten . . . . .	52
5.1.1 Betrachtung eines polydomänen Einkristalls . . . . .	52
5.1.2 Umklappkriterium und Evolutionsgesetz . . . . .	53

5.1.3	Volumenmittelungen . . . . .	56
5.1.4	Korninteraktion im Polykristall . . . . .	59
5.1.4.1	Generalisierte VOIGT - Approximation . . . . .	62
5.1.4.2	Generalisierte REUSS/VOIGT - Approximation . . . . .	64
5.2	Ferromagnetisches Materialverhalten . . . . .	66
5.3	Ferroelektrisch-ferromagnetisches Komposit . . . . .	68
5.3.1	Lineares Materialverhalten . . . . .	69
5.3.2	Nichtlineares Materialverhalten . . . . .	71
5.4	Modellierung der morphotropen Phasengrenze bei PZT - Keramiken . . . . .	73
5.4.1	Phaseninteraktion auf Kornebene . . . . .	74
5.4.2	Diskrete Phasen auf Kornebene . . . . .	76
<b>6</b>	<b>High-Cycle-Fatigue-Modell</b>	<b>79</b>
6.1	Effektive Materialkonstanten . . . . .	79
6.1.1	Elektromechanische Rissmodelle . . . . .	79
6.1.2	Analytische Homogenisierung . . . . .	81
6.1.3	Modellierung der Defektphase . . . . .	84
6.2	Modell zur Lebensdauervorhersage . . . . .	88
<b>7</b>	<b>Ergebnisse</b>	<b>93</b>
7.1	Nichtlineares Materialverhalten von Ferroelektrika . . . . .	93
7.1.1	Polydomäniger Einkristall mit tetragonalen Elementarzellen . . . . .	94
7.1.2	Polydomäniger Einkristall mit rhomboedrischen Elementarzellen . . . . .	96
7.1.3	Polykristall mit tetragonalen Elementarzellen . . . . .	97
7.1.4	Polykristall mit rhomboedrischen Elementarzellen . . . . .	105
7.2	Nichtlineares Materialverhalten von Ferromagnetika . . . . .	106
7.3	Magnetoelektrische Kopplung . . . . .	107
7.4	Effektive Materialeigenschaften . . . . .	110
7.5	Lebensdauervorhersage . . . . .	112
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>119</b>
8.1	Zusammenfassung . . . . .	119
8.2	Ausblick . . . . .	120
<b>A</b>	<b>Ergänzungen</b>	<b>123</b>
A.1	Verschiebungsfelder der Elementarzellen . . . . .	123
A.2	Spontane Dehnung der rhomboedrischen Elementarzelle . . . . .	125
A.3	Volumen eines Parallelepipeds . . . . .	126
A.4	Konvergenzkriterium und Berechnung der kritischen Lastspielzahl . . . . .	127
<b>B</b>	<b>Materialdaten</b>	<b>129</b>
	<b>Literatur</b>	<b>133</b>

# Symbolverzeichnis

## Griechische Buchstaben

Symbol	Bezeichnung	Einheit
$\alpha$	Orientierung einer Domäne gegenüber dem globalen Koordinatensystem, Winkel des BRAVAIS-Gitters	°
$\alpha_{ikl}$	inverser piezoelektrischer Tensor bei Verzerrung $\varepsilon_{kl}$ und dielektrischer Verschiebung $D_i$ als unabhängige Variablen	V/m
$\alpha^{\text{rh}}$	eingeschlossener Winkel bei rhomboedrischer Elementarzelle	°
$\beta$	Umklappwinkel, Winkel des BRAVAIS-Gitters	°
$\gamma_{ij}$	inverser dielektrischer Tensor bei Verzerrung $\varepsilon_{kl}$ und dielektrischer Verschiebung $D_i$ als unabhängige Variablen	Vm/C
$\gamma$	Verhältnis zwischen Rissfortschritt und aktueller Risslänge, Winkel des BRAVAIS-Gitters	°
$\delta_{ij}$	Einheitstensor	—
$\varepsilon_{ijk}$	LEVI - CIVITA - Tensor	—
$\varepsilon_{ij}$	CAUCHYScher Verzerrungstensor	—
$\varepsilon^{\text{r}}$	remanente Dehnung	—
$\eta$	Volumenanteil einer Phase bei Körnern / materiellen Punkten mit mehreren Phasen	—
$\Delta\theta$	Temperaturänderung	K
$\theta_c$	CURIE - Temperatur	K
$\kappa_{ij}$	dielektrischer Tensor	C/Vm
$\kappa_0$	Dielektrizitätskonstante im Vakuum	As/Vm
$\lambda_1$	numerischer Parameter	—
$\lambda_2$	numerischer Parameter	—
$\mu_0$	magnetische Feldkonstante	N/A <sup>2</sup>
$\nu^{(n)}$	innere Variable / Volumenanteil der Domäne $n$	—
$\rho$	Dichte	kg/m <sup>3</sup>
$\sigma_{ij}$	CAUCHYScher Spannungstensor	N/m <sup>2</sup>
$\varphi^{\text{el}}$	elektrisches Potential	V
$\varphi^{\text{mag}}$	magnetisches Potential	A
$\chi_{ij}$	Suszeptibilität	—
$\chi_{ijkl}$	Elastizitätstensor bei Verzerrung $\varepsilon_{kl}$ und dielektrischer Verschiebung $D_i$ als unabhängige Variablen	N/m <sup>2</sup>
$\omega_S^{\text{el}}$	spezifische Oberflächenladungsdichte	C/m <sup>2</sup>
$\omega_S^{\text{mag}}$	Magnetische Flussdichte durch die Berandung	kg/As <sup>2</sup>
$\omega_V$	volumenspezifische Ladungsdichte	C/m <sup>3</sup>

## Lateinische Buchstaben

Symbol	Bezeichnung	Einheit
$A$	Fläche	$\text{m}^2$
$a$	Halbe Risslänge, Gitterkonstante des BRAVAIS-Gitters	$\text{m}, \text{\AA}$
$a_0$	Kantenlänge einer kubischen Elementarzelle	$\text{\AA}$
$B_i$	magnetische Induktion	T
$B_t$	Momentankonfiguration	–
$B_0$	Referenzkonfiguration	–
$b$	Gitterkonstante des BRAVAIS-Gitters	$\text{\AA}$
$b_{jk}^{-1}$	inverser linker CAUCHY - GREEN - Tensor	–
$b_i$	Volumenkraftdichte	$\text{m/s}^2$
$C_{jk}$	rechter CAUCHY - GREEN - Tensor	–
$C_{ijkl}$	Elastizitätstensor	$\text{N/m}^2$
$c$	Gitterkonstante des BRAVAIS-Gitters	$\text{\AA}$
$d_i$	Raumdiagonale einer rhomboedrischen Elementarzelle	$\text{\AA}$
$E_i$	elektrische Feldstärke	$\text{V/m}$
$E_c$	Koerzitivfeldstärke	$\text{V/m}$
$E_{ij}$	LAGRANGE - GREENScher Verzerrungstensor	–
$e_i$	Raumdiagonale einer rhomboedrischen Elementarzelle	$\text{\AA}$
$e_{ij}$	EULER - ALMANSIScher Verzerrungstensor	–
$e_{ikl}$	piezoelektrischer Tensor	$\text{C/m}^2$
$F_{ij}$	Deformationsgradient	–
$f$	Rissdichte	–
$f_0$	Anfangsrisssdichte	–
$g_{ij}$	magnetoelektrischer Kopplungstensor	$\text{Ns/VC}$
$H_c$	magnetische Koerzitivfeldstärke	$\text{A/m}$
$H_j$	magnetische Feldstärke	$\text{A/m}$
$j_i$	Stromdichte	$\text{A/m}^2$
$k_{22}$	elektromechanischer Kopplungskoeffizient	–
$M$	Anzahl der lokalen materiellen Punkte in einem RVE	–
$M_i$	Magnetisierung	T
$M^r$	remanente Magnetisierung	T
$\Delta M_i^{\text{SP}}$	Änderung der spontanen Magnetisierung	T
$N$	numerische Zyklenzahl	–
$N_P$	physikalische Lastspielzahl je numerischem Zyklus $N$	–
$n_i$	Normalenvektor	–
$P_i$	Polarisationsvektor	$\text{C/m}^2$
$P^0$	Betrag der Polarisations	$\text{C/m}^2$
$P^r$	remanente Polarisation	$\text{C/m}^2$
$\Delta P_i^{\text{SP}}$	Änderung der spontanen Polarisation	$\text{C/m}^2$
$Q$	Elektrische Ladung, Wärme	C, J
$Q^{(-)}$	negativer Ladungsschwerpunkt	C
$Q^{(+)}$	positiver Ladungsschwerpunkt	C
$q_{ikl}$	magnetostriktiver Kopplungstensor	T
$q_i$	Wärmestromdichte	$\text{W/m}^2$

Symbol	Bezeichnung	Einheit
$R_{ij}$	eigentlich orthogonaler Drehtensor	—
$r$	Wärmequelle	$\text{m}^2/\text{s}^3$
$s$	volumenspezifische Entropie	$\text{J}/\text{m}^3\text{K}$
$T$	kinetische Energie	J
$t$	Zeit	s
$t_k$	Tangentenvektor	—
$U_{kj}$	rechter Strecktensor	—
$U$	innere Energie	J
$u_i$	Verschiebungsvektor	m
$V_{ik}$	linker Strecktensor	—
$V$	Volumen	$\text{m}^3$
$v_i$	Geschwindigkeitsvektor	$\text{m}/\text{s}$
$W$	Arbeit	J
$w$	volumenspezifische Arbeit	$\text{J}/\text{m}^3$
$X$	Kontinuierliche Anordnung der ferromagnetischen Phase	—
$X_i$	Ortsvektor der Referenzkonfiguration/materielle Koordinate	m
$x_1, x_2$	Koordinaten des globalen Koordinatensystems	m
$x_i$	Ortsvektor bzgl. der Momentankonfiguration	m
$Y$	Kontinuierliche Anordnung der ferroelektrischen Phase	—

## Verwendete Indizes

Index	Bezeichnung
crit	kritische Größe / Barriere
diss	dissipative Größe
el	elektrische Größe
ext	Kennzeichnung einer äußeren Last
$h$	als hochgestellter Index: Kennzeichnung der $h$ -ten Phase eines Kornes / lokalen materiellen Punktes
irr	irreversible Größe
$m$	als hochgestellter Index: Kennzeichnung des $m$ -ten Kornes / lokalen materiellen Punktes eines Polykristalls
mag	magnetische Größe
mech	mechanische Größe
$n$	als hochgestellter Index: Kennzeichnung der $n$ -ten Domäne eines materiellen Punktes / Kornes
sp	spontane Größe



## Abkürzungen

<b>Kürzel</b>	<b>Bezeichnung</b>
Abb.	Abbildung
BT	Bariumtitanat
bzw.	beziehungsweise
CF	Kobaltferrit
d. h.	das heißt
EEG	Elektroenzephalografie
FEM	Finite-Elemente-Methode
Gl.	Gleichung
i. Allg.	im Allgemeinen
IP	Integrationspunkt
KM	Kondensierte Methode
MEE	magnetoelektrischer Effekt
MEG	Magnetoenzephalographie
MP	materieller Punkt
MPG	morphotrope Phasengrenze
PZT	Bleizirkonattitanat
REM	Rasterelektronenmikroskop
RVE	repräsentatives Volumenelement
RWP	Randwertproblem
s.	siehe
SIF	Spannungsintensitätsfaktor
SQUIDs	Superconducting Quantum Interference Devices
Tab.	Tabelle
u. a.	unter anderem
vgl.	vergleiche
z. B.	zum Beispiel

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Betrachtete Einheitszellen . . . . .	9
2.2	Einordnung der Ferroelektrika in die Gruppe der Dielektrika . . . . .	10
2.3	Schematische Darstellung einer unpolaren und polaren Elementarzelle . . . . .	11
2.4	Kubische und tetragonale Einheitszelle mit Perowskit-Struktur . . . . .	13
2.5	Potentielle Energie des $\text{Ti}^{4+}$ -Ions entlang der $c$ -Achse einer tetragonalen Elementarzelle . . . . .	13
2.6	Phasendiagramm für Bleizirkonattitanat (PZT) . . . . .	14
2.7	Domänenstruktur in einem Korn . . . . .	16
2.8	Schematische Darstellung von dielektrischer Hysterese und Schmetterlingshysterese . . . . .	17
2.9	Korn- und Domänenstruktur eines ferromagnetischen Polykristalls . . . . .	18
2.10	Neukurve bei Ferromagneten: Bereiche der Magnetisierung . . . . .	19
2.11	Magnetisierungs- und Schmetterlingshysteresen für ein ferromagnetisches Material mit positiver Magnetostriktion . . . . .	20
2.12	Auswahl möglicher Kompositarten . . . . .	21
3.1	Deformierbarer Körper in der Referenz- ( $B_0$ ) und der Momentan- konfiguration ( $B_t$ ) . . . . .	24
4.1	Betrachtungsebenen für ebene Umklappprozesse bei tetragonaler und rhomboedrischer Elementarzelle . . . . .	41
4.2	Irreversible Umklappprozesse einer tetragonalen Elementarzelle . . . . .	42
4.3	Darstellung eines Parallelepipeds zur Veranschaulichung der Berech- nung der Raumdiagonalen $e_i$ und $d_i$ einer rhomboedrischen Ele- mentarzelle . . . . .	44
4.4	Deformation der Betrachtungsebene einer rhomboedrischen Elementar- zelle infolge von Umklappprozessen . . . . .	46
4.5	Berechnung der Änderung der spontanen Polarisation $\Delta P_i^{\text{sp}}$ . . . . .	49
5.1	Gegenüberstellung der FEM und der KM . . . . .	51
5.2	Domänenstruktur eines Einkristalls und die Übertragung der Domänen- struktur in das Modell . . . . .	52
5.3	HEAVISIDE-Funktion . . . . .	56
5.4	Homogenisierung und charakteristische Längen . . . . .	57
5.5	Repräsentatives Volumenelement eines Polykristalls und Skizze zur Veranschaulichung der kondensierten Methode . . . . .	58
5.6	Veranschaulichung der Realisierung der Korninteraktion bei der KM anhand eines einfachen Stabsystems . . . . .	60

5.7	Schematische Darstellung eines repräsentativen Volumenelementes eines multiferroischen Komposits unter elektromagnetomechanischer Beanspruchung . . . . .	69
5.8	Aufnahme eines Korns (PZT) an der morphotropen Phasengrenze mit dem Rasterelektronenmikroskop (REM) und Modellierung dieser Struktur auf Basis der kondensierten Methode . . . . .	74
6.1	Volumen $V$ mit Pore und Riss . . . . .	79
6.2	Elektromechanische Rissmodelle . . . . .	80
6.3	Modellierung der Defektphase: Repräsentatives Volumenelement unter elektromechanischer Last und Feldlinien und Polarisationsvektor sowie Koordinatensysteme eines zufällig orientierten Risses . . . . .	85
6.4	Schematische Darstellung des High - Cycle - Fatigue Modells zur Lebensdauervorhersage . . . . .	88
7.1	Darstellung der elektromechanischen Beanspruchung und der Randbedingungen für die numerischen Berechnungen . . . . .	94
7.2	Hysteresen eines tetragonalen Einkristalls unter Berücksichtigung eines spannungsfreien Randes . . . . .	94
7.3	Hysteresen eines geklemmten tetragonalen Einkristalls . . . . .	95
7.4	Hysteresen eines rhomboedrischen Einkristalls unter Berücksichtigung eines spannungsfreien Randes . . . . .	96
7.5	Hysterekurven eines ferroelektrischen Polykristalls ohne Korninteraktion . . . . .	97
7.6	Dielektrische und Schmetterlingshysterese eines ferroelektrischen Polykristalls mit Korninteraktion . . . . .	98
7.7	Einfluss der Parameter $\lambda_1$ und $\lambda_2$ auf die Hysteresen unter Berücksichtigung einer generalisierten VOIGT - Approximation . . . . .	99
7.8	Eigenstressungen $\sigma_{22}^{(m)}$ und $\sigma_{12}^{(m)}$ sowie deren Mittelwerte $\langle \sigma_{22} \rangle$ und $\langle \sigma_{12} \rangle$ aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke . . . . .	100
7.9	Ferroelektrische Hysteresen eines Polykristalls unter elektromechanischer Beanspruchung . . . . .	101
7.10	Numerische Ergebnisse zur Untersuchung des elektromechanischen Kopplungskoeffizienten $k_{22}$ . . . . .	101
7.11	Einfluss der Parameter $\lambda_1$ und $\lambda_2$ auf die Hysteresen unter Berücksichtigung einer generalisierten REUSS/VOIGT - Approximation . . . . .	104
7.12	Ein Vergleich ferroelektrischer Hysteresekurven für die generalisierte VOIGT- sowie REUSS/VOIGT - Approximation . . . . .	104
7.13	Schmetterlingshysteresen eines Polykristalls mit rhomboedrischen Elementarzellen . . . . .	105
7.14	Magnetische Induktion $B_2$ und Magnetisierung $M_2^{\text{irr}}$ und Verzerrung aufgetragen über der normierten magnetischen Feldstärke $H_2/H_c$ . . . . .	107
7.15	Magnetoelektrische Belastungen zur Vorhersage der magnetoelektrischen Kopplung . . . . .	108
7.16	Magnetoelektrische Kopplung eines Komposits mit perfekt gepolter Matrix und magnetisierten Partikeln . . . . .	108

7.17	Ergebnisse zu magnetoelastischer Kopplung und Vergleich von FEM und KM . . . . .	109
7.18	Riss - RVE mit in $x_2$ - Richtung gepolter Matrix zur Berechnung effektiver Materialeigenschaften basierend auf kollinearen Rissen der Länge $2a$ . . . . .	111
7.19	Effektive elastische Eigenschaften für eine REUSS und VOIGT - Approximation . . . . .	111
7.20	Effektive piezoelektrische Eigenschaften für eine REUSS und VOIGT-Approximation . . . . .	112
7.21	Effektive dielektrische Eigenschaften für eine REUSS und VOIGT-Approximation . . . . .	112
7.22	Elektromechanische Beanspruchung und Randbedingungen für Simulationen zur Lebensdauervorhersage . . . . .	113
7.23	Referenzlösung mit Bestimmung der kritischen Lastspielzahl $N_P^{\text{crit}}$ und Einfluss von bipolarer und unipolarer Belastung auf die Lebensdauer . . . . .	114
7.24	Einfluss der Anfangsrissdichte und der PARIS - Konstanten auf die Lebensdauer . . . . .	114
7.25	Einfluss der Druckvorspannung auf Aktorhub und Lebensdauer . . . . .	115
7.26	Einfluss der Druckvorspannung $\sigma_{22}^{\text{ext}}$ und der Anfangsrissdichte $f_0$ auf Aktorhub und Lebensdauer . . . . .	116
7.27	Numerische WÖHLER - Linien . . . . .	117
A.1	Darstellung zur Erläuterung des Konvergenzkriteriums und lineare Extrapolation zur Bestimmung der kritischen Lebensdauer $N_P^{\text{crit}}$ . . . . .	128



# Tabellenverzeichnis

7.1	Parameterkonfigurationen für $\lambda_1$ und $\lambda_2$ (VOIGT - Approximation) . . . . .	99
7.2	Untersuchte Parameterkombinationen $\lambda_1$ und $\lambda_2$ (REUSS/VOIGT - Approximation) . . . . .	103
B.1	Materialkonstanten der in dieser Arbeit verwendeten Materialien . . . . .	130
B.2	Materialabhängige Konstanten von Ferroelektrika . . . . .	131
B.3	Materialabhängige Konstanten von $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ . . . . .	131



# 1 Einleitung

## 1.1 Motivation und Ziele der Arbeit

Sowohl ferroelektrische als auch -magnetische Materialien kommen aufgrund ihrer besonderen elektro- oder magnetomechanischen Eigenschaften in einem breiten Spektrum der Technik zum Einsatz. Etablierte Einsatzgebiete dieser Funktionswerkstoffe sind die Medizintechnik, Automobil- oder die Luft- und Raumfahrtindustrie. Dort werden sie u. a. als Aktoren oder Sensoren verwendet. In der Medizintechnik werden Aktoren und Sensoren z. B. in vollimplantierbaren Hörgeräten eingesetzt. Bei diesen wandelt zunächst ein Sensor den Schall in ein elektrisches Signal um. Nach einer Signalfilterung wird durch einen Aktor das elektrische in ein mechanisches Signal umgewandelt. Dieses regt die Hörschnecke zur Schwingung an. Mit Hilfe dieses Implantates kann bei Patienten mit Schädigung des Mittelohres die auditive Wahrnehmung wiederhergestellt werden. In der Automobilindustrie werden ferroelektrische oder -magnetische Aktoren in Einspritzdüsen von Dieselmotoren eingesetzt. Vorteile gegenüber konventionellen Einspritzdüsen sind im verbesserten Einspritzverhalten mit einhergehender Reduzierung des Spritverbrauchs oder der Verminderung der Geräuschemission zu finden. Da natürliche Materialien mit magnetoelektrischen Eigenschaften auf der einen Seite sehr selten sind und auf der anderen Seite die magnetoelektrische Kopplung bei Raumtemperatur sehr schwach ist, wird multiferroischen Kompositen, welche aus ferroelektrischen und -magnetischen Materialien bestehen, für technische Anwendungen zukünftig eine große Bedeutung zugesprochen.

Unabhängig davon ob der Werkstoff bereits eingesetzt wird oder sich noch in der Entwicklung befindet, ist die Kenntnis des Materialverhaltens zur Auslegung der Komponenten zwingend erforderlich. Zur Simulation des Materialverhaltens wird standardmäßig die Finite-Elemente-Methode (FEM) verwendet. Jedoch gehen sowohl die Implementierung des Materialverhaltens als auch die numerische Lösung des Randwertproblems (RWP) mit einem nicht zu vernachlässigendem Zeitaufwand einher. Zur Untersuchung des Materialverhaltens wird das RWP jedoch oft auf ein geometrisch einfaches Problem mit einaxialer Last reduziert. Ziel hierbei ist die Berechnung materialspezifischer Hysteresekurven oder bei multiferroischen Kompositen die Abschätzung der magnetoelektrischen Kopplung zur Beurteilung des Komposites.

Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung einer diskretisierungsfreien Methode zur Simulation des nichtlinearen Verhaltens ferroelektrischer, -magnetischer und multiferroischer Materialien. Nach Kenntnis des Autors gibt es bisher kein diskretisierungsfreies Verfahren mit welchem das konstitutive Verhalten polykristalliner ferroischer Materialien zufriedenstellend simuliert werden kann. Die Entwicklung einer solchen Methode führt auf einige Fragestellungen. Beispielsweise ist zu klären,



wie die Interaktion zwischen den einzelnen Körnern realisiert werden kann oder auf welche Art und Weise die effektiven Materialeigenschaften des betrachteten Gebietes ermittelt werden können. Ferner muss es mit der zu entwickelnden Methode möglich sein, auftretende Eigenspannungen infolge irreversibler Domänenwandverschiebungen zu bestimmen, da aufgrund der Sprödhheit dieser Funktionswerkstoffe auch deren mechanische Integrität im Fokus der Forschung steht.

## 1.2 Stand der Forschung

Die Modellierung des nichtlinearen Verhaltens ferroelektrischer Materialien stand in den vergangenen zwei Jahrzehnten im Fokus der Forschung. Ein wesentlicher Beitrag hinsichtlich der Modellierung geht auf HWANG et al. [65] zurück. In der im Jahr 1995 erschienenen Arbeit wird das Verhalten von PZT unter einer elektromechanischen Beanspruchung experimentell untersucht. Aufbauend auf diesen Untersuchungen wird ein mikromechanisches Modell zur Beschreibung des beobachteten Materialverhaltens vorgeschlagen. Weitere Arbeiten, die die Idee dieses Modells aufgreifen, sind z. B. HWANG und MCMEEKING [66], HWANG und WASSER [64], MICHELITSCH und KREHER [113], LI et al. [99] oder GELLMANN und RICOEUR [50]. Bei diesen Modellen wird ein Polykristall angenommen wo die Polarisierung der Elementarzelle um einen diskreten Winkel umklappt, wenn ein energetisch motiviertes Umklappkriterium erfüllt ist. Die hier zitierten Modelle werden im Rahmen der FEM umgesetzt. Neben mikromechanischen Modellen werden in der Literatur auch phänomenologische Modelle zur Beschreibung des makroskopischen Materialverhaltens vorgeschlagen. Arbeiten auf diesem Gebiet sind u. a. in BASSIOUNY et al. [9, 10], BASSIOUNY und MAUGIN [7, 8], LYNCH [104], KAMLAH und TSAKMAKIS [74], FAN et al. [39], KAMLAH [73], KESSLER und BALKE [78] oder LANDIS [89] zu finden. Ein anderer Ansatz, wo Methoden der Kontinuumsmikromechanik verwendet werden, ist z. B. in CHEN et al. [23], HUO und JIANG [63] oder LU et al. [101] beschrieben. Im Jahr 1999 wurden von HUBER et al. [62] skalare Gewichte für jede Orientierung der  $c$ -Achse einer tetragonalen Elementarzelle eines Einkristalls eingeführt. Aus Sicht der Materialtheorie können diese Gewichte auch als innere Variablen interpretiert werden, welche sämtliche dissipativen Prozesse und die Rotation der lokalen Materialachsen kontrollieren. Ergebnisse experimenteller Untersuchungen werden u. a. in LYNCH [103], ZHOU und KAMLAH [165] oder DITTMER et al. [29, 30] diskutiert.

Hinsichtlich des Materialverhaltens von Ferromagnetika muss zwischen Weich- und Hartmagneten unterschieden werden. So wird von AVAKIAN und RICOEUR [4] ein mikromechanisches Modell zur Modellierung von Hartmagneten vorgeschlagen, welches die Grundidee mikromechanischer Modelle für Ferroelektrika aufgreift. Dieses Modell nutzt die Eigenschaft, dass sich das makroskopische Verhalten von Ferroelektrika und -magnetika ähnelt, obwohl die Ursachen dafür auf atomistischer Ebene grundverschieden sind. Zur Modellierung von Weichmagneten werden in der Literatur verschiedene phänomenologische Modelle vorgeschlagen. So basieren die Modelle von KÁDÁR [71] oder MAYERGOYZ und FRIEDMAN [108] auf dem von PREISACH [129] eingeführten Modell zur Darstellung experimentell beobachteter Hysteresen. Ein weiteres Modell zur Beschreibung von nichtlinearem reversiblen

Verhalten ferromagnetischer Materialien wird in [4] eingeführt. Eine weiterführende Diskussion verschiedener Modelle zur Beschreibung des ferromagnetischen Materialverhaltens ist ebenfalls in [4] zu finden.

Damit zukünftig Komposite mit optimalen magnetoelektrischen Eigenschaften hergestellt werden können, steht derzeit die Entwicklung geeigneter Modelle zur Vorhersage dieser Eigenschaften im Vordergrund. Arbeiten auf diesem Gebiet gehen zumeist von linearem Materialverhalten aus. So sind numerische Untersuchungen zu effektiven Eigenschaften solcher Materialien z. B. in NAN [119], HUANG und KUO [61], LI und DUNN [98] oder ABOUDI [1] zu finden. Mit der von SCHRÖDER und KEIP [141] erweiterten FE<sup>2</sup>-Methode kann sowohl linear piezoelektrisches als auch nichtlinear elektrostriktives Materialverhalten untersucht werden. Diese Methode ermöglicht zweiskalige Simulationen in Verbindung mit einer Homogenisierung für magnetoelektromechanische Randwertproblem (RWP). Auf dieser Methode aufbauend wurden in KEIP et al. [76], LABUSCH et al. [85, 86] und SCHRÖDER et al. [142] effektive magnetoelektrische Kopplungskoeffizienten von Kompositen untersucht. Basierend auf einem mikromechanischen Modell und einfachen Homogenisierungsansätzen werden in [4] magnetoelektrische Kopplungskoeffizienten für ein Komposit vorgestellt. Hier wird sowohl für die ferroelektrische als auch ferromagnetische Phase von nichtlinearem Materialverhalten ausgegangen. Experimentelle Untersuchungen, die sich sowohl mit der Herstellung des Komposites als auch der Messung magnetoelektrischer Kopplungseigenschaften befassen, sind von ETIER et al. [37, 38] vorgestellt worden.

Die bis hierhin vorgestellten Modelle gehen von perfekten Materialien aus, d. h. Mikrorisse, welche bereits während des Herstellungsprozesses entstehen können oder ein etwaiger Rissfortschritt infolge äußerer Lasten, werden hier nicht berücksichtigt. Erste Vorschläge zur Berechnung effektiver Eigenschaften geschädigter piezoelektrischer Materialien gehen auf WANG und JIANG [157, 158] zurück. In diesen Arbeiten werden die Rissufer als mechanisch spannungs- und elektrisch ladungsfrei angenommen. Dies wird auch als impermeable Randbedingung bezeichnet, welche sowohl von SOSA [147] als auch SUO [151] untersucht worden ist. Da diese Randbedingung eher einem Sonderfall als der Realität entspricht, wurde von HAO und SHEN [56] zunächst die sogenannte semipermeable Randbedingung vorgeschlagen. Bei dieser wird auf den Rissufern eine dielektrische Verschiebung angenommen. In der Realität ist es jedoch so, dass die Rissufer bei elektro-/magnetostatischen Mehrfeldproblemen auch mechanische Lasten erfahren. Diese Lasten werden als MAXWELL- oder COULOMB - Spannungen bezeichnet. Ein Modell welches solche Spannungen berücksichtigt, wurde erstmals 1999 von KEMMER und BALKE [77] vorgeschlagen und in der nachfolgenden Zeit von z. B. GELLMANN und RICOEUR [48] oder LANDIS [88] weiter untersucht. Ansätze zur Berechnung effektiver Eigenschaften piezoelektrischer Materialien mit komplexen Randbedingungen auf den Rissufern sind bei MERKEL und RICOEUR [111] zu finden. Während bei den genannten Arbeiten stets von einer orthogonalen Durchdringung des Risses durch ein elektrisches Feld ausgegangen wird, untersuchen RICOEUR et al. [134] den Einfluss geneigter Felder.

Zur Vorhersage und Analyse von unterkritischem Risswachstum wurde 1963 von PARIS und ERDOGAN [126] das sogenannte PARIS - Gesetz vorgeschlagen. Dieses bildet im  $\lg(da/dN)$ - $\Delta K_I$  - Diagramm den linearen Bereich ab. Da mit diesem

Gesetz weder der Bereich der Initiierung noch der Übergang zum Gewaltbruch abgebildet werden kann, wurde von FOREMAN et al. [44] eine Weiterentwicklung vorgeschlagen, welche experimentelle Ergebnisse besser erfasst als das klassische PARIS - Gesetz. Obgleich diese Modelle für makroskopisches Risswachstum entwickelt worden sind, wurde von LUBE und BAIERL [102] sowie SUPANCIC und SCHÖPF [152] gezeigt, dass sie auch bei der Anwendung auf Mikrorisse Gültigkeit haben. Die meisten Untersuchungen im Bezug auf Versagen infolge von Ermüdung bei Ferroelektrika unter elektromechanischer Beanspruchung, egal ob Experiment oder Modellierung, beziehen sich auf niedrige Lastspielzahlen und große Risslängen. Ergebnisse auf diesem Gebiet wurden u. a. von ZHU und YANG [167] oder WESTRAM et al. [160, 161] publiziert. In [160] wurde unter Verwendung des dielektrischen Feldintensitätsfaktors ein Risswachstumsgesetz nach Art des PARIS - Gesetzes vorgestellt.

## 1.3 Gliederung der Arbeit

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Entwicklung einer diskretisierungsfreien Methode zur Simulation des nichtlinearen Verhaltens ferroelektrischer, ferromagnetischer und multiferroischer Materialien. Für ein tieferes Verständnis der Zusammenhänge stehen in Kapitel 2 zunächst die allgemeinen Grundlagen im Vordergrund. Hier wird auf für diese Arbeit relevante kristallographische Elementarzellen und wesentliche Eigenschaften der hier betrachteten Materialien eingegangen.

Kapitel 3 befasst sich mit den Grundlagen der Kontinuumsmechanik und -elektrodynamik sowie den thermodynamischen Grundlagen multiferroischer Materialien. Ausgehend von den MAXWELL - Gleichungen und dem dynamischen Kräftegleichgewicht wird auf die Thermodynamik multiferroischer Materialien eingegangen. Hier stehen der Zusammenhang zwischen dem thermodynamischen Potential, den Materialtensoren und den konstitutiven Gleichungen im Vordergrund. Ein thermodynamisch konsistentes Evolutionsgesetz zur Beschreibung der Domänenwandverschiebung erfordert die Erfüllung der CLAUSIUS - DUHEM - Ungleichung. Daher wird auch diese in diesem Kapitel für ein magnetoelktromechanisches Mehrfeldproblem eingeführt.

In Kapitel 4 wird auf die Modellierung der inelastischen Größen spontane Verzerrung und spontane Polarisierung eingegangen. Im Fokus stehen hier tetragonale und rhomboedrische Elementarzellen.

Aufbauend auf den Kapiteln 3 und 4 wird die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte diskretisierungsfreie Kondensierte Methode (KM) in Kapitel 5 behandelt. Diese wird zunächst für ein rein ferroelektrisches Problem entwickelt. Im Fokus steht die Frage wie eine Interaktion zwischen Körnern bzw. lokalen materiellen Punkten realisiert werden kann ohne die beispielsweise bei der FEM intrinsisch vorliegende räumliche Kopplung in Integrationspunkten und Knoten. Dabei wird auch auf die Berechnung der effektiven Materialeigenschaften eines repräsentativen Volumenelementes eingegangen. Ferner werden unterschiedliche Approximationsansätze und Randbedingungen diskutiert. Im nächsten Schritt wird die KM auf ferromagnetische Materialien und multiferroische Komposite angewandt. Das Kapitel schließt mit zwei Ansätzen zur Modellierung der morphotropen Phasengrenze

(MPG) in einem lokalen materiellen Punkt.

Kapitel 6 befasst sich mit der Lebensdauervorhersage ferroelektrischer Materialien. Hierzu wird zunächst auf die Berechnung effektiver Eigenschaften geschädigter ferroelektrischer Materialien eingegangen. Im zweiten Teil dieses Kapitels wird ein Modell zur Simulation der Lebensdauer vorgestellt, welches auf dem klassischen PARIS - Gesetz basiert. Ein entscheidender Vorteil dieses Modells besteht darin, dass die gesamte Lebensdauer in wenigen numerischen Zyklen simuliert werden kann.

In Kapitel 7 werden Ergebnisse der in den Kapiteln 5 und 6 vorgestellten Modelle diskutiert. Der Fokus liegt hier auf den Ergebnissen zum nichtlinearen Verhalten ferroelektrischer Materialien und der Lebensdauervorhersage. Um die entwickelte Methode zu verifizieren, werden die Berechnungen mit experimentellen und numerischen Ergebnissen aus der Literatur verglichen.

Eine Zusammenfassung der Arbeit sowie ein Ausblick auf zukünftige Fragestellungen ist in Kapitel 8 zu finden.



## 2 Grundlagen ferroelektrischer und ferromagnetischer Materialien

Ein tieferes Verständnis der in dieser Arbeit diskutierten Thematik erfordert eine grundlegende Kenntnis über den kristallographischen Aufbau und die physikalischen Vorgänge in piezoelektrischen sowie ferromagnetischen Materialien. Dazu wird zunächst auf interatomare Bindungen und Kristallstrukturen von Festkörpern eingegangen. Im Anschluß daran werden die wesentlichen Eigenschaften ferroelektrischer, -magnetischer und multiferroischer Materialien erläutert.

### 2.1 Interatomare Bindungen und Kristallstrukturen in Festkörpern

Die wichtigste Anforderung an Werkstoffe ist die Fähigkeit, Zug- und Schubspannungen zu übertragen. Diese wird dann erfüllt, wenn das Material in einem festen Zustand vorliegt. Beschaffenheiten, wie z. B. metallische oder nicht-metallische Eigenschaften, treten nicht am isolierten Atom sondern nur am gebundenen Atomkollektiv auf. Eine Ausnahme bilden die Edelgase. Deren Elektronenstruktur verfügt über einen stabilen Zustand, s. hierzu z. B. [13, 79, 80]. Aus der Eigenschaft der Edelgase folgt das Ziel der übrigen Elementfamilien: auffinden eines artgleichen bzw. artfremden Partners zur Bildung eines stabilen (edelgasähnlichen) Zustandes. Ein stabiler Zustand wird durch die interatomare Wechselwirkung der Außenelektronen erreicht. Aufgrund der Wechselwirkung kommt es zu einer Bindung der Atome, welche durch auftretende anziehende und abstoßende Kräfte hervorgerufen wird, s. [79]. Die Art und Weise, wie die Bindungen im Detail zustande kommen, ist recht unterschiedlich. Dennoch gibt es drei Bindungstypen, die sich hervorheben:<sup>1</sup> ionische, kovalente und metallische Bindung. Diese Bindungen werden als Hauptvalenz- oder Primärbindungen bezeichnet.<sup>2</sup> Aufgelöst werden können Bindungen durch thermische oder mechanische Energie. Die Auflösungsenergie muss der Bindungsenergie entsprechen. Nachfolgend soll kurz auf die Primärbindungen eingegangen werden.

Bei der ionischen Bindung handelt es sich um eine Bindung zwischen Metall- und Nichtmetallatomen. Das Metallatom, als elektronenpositives Element, erreicht

---

<sup>1</sup>An dieser Stelle sei erwähnt, dass es von diesen Bindungstypen vielfältige Mischformen gibt. Auf diese wird hier jedoch nicht eingegangen.

<sup>2</sup>Neben der Primärbindung gibt es auch die Nebervalenz- oder Sekundärbindung. Diese lässt sich durch das Vorhandensein einer Restbindefähigkeit der Primärbindung erklären. Da sich für diese Arbeit relevante Effekte mit Hilfe der Primärbindung erklären lassen, wird nicht weiter auf die Sekundärbindung eingegangen. Für den interessierten Leser sei an dieser Stelle auf z. B. [13] oder [80] verwiesen.

den edelgasähnlichen Zustand durch Abgabe der Außenelektronen. Das elektronegative Nichtmetallatom hingegen erzielt diesen Zustand durch Aufnahme der Elektronen. Dieser Vorgang wird als Elektronenübergang bezeichnet. Ursache der ionischen Bindung ist die elektrostatische Anziehungskraft ungleich geladener Teilchen. Da sich die Anziehungskraft nicht nur auf bestimmte Kationen bzw. Anionen sondern auf den gesamten Verbund gleichermaßen auswirkt, handelt es sich bei der Ionenbindung um eine ungerichtete Bindung.

Eine Bindung zwischen Nichtmetallen wird als kovalente Bindung bezeichnet. Wie oben beschrieben, sind Nichtmetalle elektronegativer. Da an diesem Bindungstyp zwei elektronegative Partner beteiligt sind, wird hier nur dann ein edelgasähnlicher Zustand erreicht, wenn sich Elektronenpaare bilden, die beiden Elektronenstrukturen angehören [13]. Abhängig von den Bindungspartnern kann eine kovalente Bindung unpolar oder polar sein. Liegen Bindungspartner mit unterschiedlicher Elektronegativität vor, führt dies zur Bildung einer negativen Partialladung bei dem Atom mit der höheren Elektronegativität. Dementsprechend bildet sich eine positive Partialladung bei dem anderen Atom. In diesem Fall wird von einer polaren Kovalenzbindung gesprochen.

Die metallische Bindung beschreibt die Bindung zweier Metallatome. Somit sind beide Bindungspartner elektropositiv. Im Vergleich zu den bisher diskutierten Bindungstypen sind die Elektronen der Außenschale keinem bestimmten Atom sondern dem gesamten Kristall zuzuordnen. Nach z. B. KOPITZKI und HERZOG [80] werden diese Elektronen als quasifreie Elektronen bezeichnet. Die positiven Ionen sind in quasifreien Elektronen eingebettet. Eine metallische Bindung wird daher durch die elektrostatische Wechselwirkung zwischen den positiven Ionen und den quasifreien Elektronen hervorgerufen.<sup>3</sup>

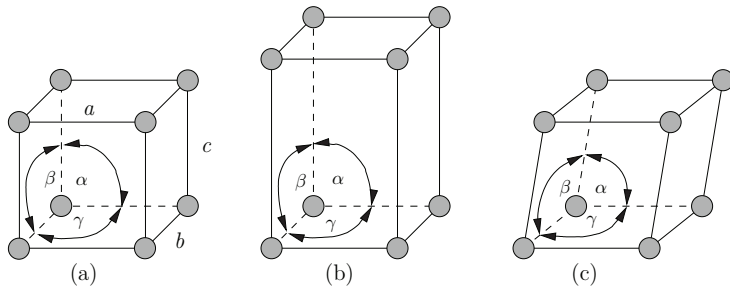
Bei der Ordnung der Teilchen im festen Zustand wird zwischen kristallinen und amorphen Festkörpern unterschieden. Kristalline Festkörper weisen ein festes Ordnungsmuster hinsichtlich der räumlichen Verteilung auf. Amorphe Festkörper verfügen hingegen nicht über ein solches Ordnungsmuster. Sie weisen lediglich eine gewisse Ordnung hinsichtlich ihrer nächsten Nachbarn auf [13, 159]. Der Vollständigkeit wegen soll auch auf Quasikristalle hingewiesen werden, deren Existenz erst kürzlich nachgewiesen werden konnte [94, 145]. Sie weisen mindestens eine quasiperiodische Richtung auf in der zwar eine Regelmäßigkeit vorliegt, diese jedoch jegliche für Kristalle typische Symmetrien verletzt.

Da es sich bei den in dieser Arbeit untersuchten Materialien um kristalline Festkörper handelt, wird nachfolgend kurz auf allgemeine Grundlagen einer Kristallstruktur eingegangen. Nach BERGMANN [13] wird die Kristallstruktur als dreidimensionales Punktgitter aufgefasst. Dabei ist jeder Gitterpunkt durch einen Gitterbaustein (Atom, Molekül, Ion) besetzt. Des Weiteren besitzt jeder Gitterbaustein identische Nachbarbausteine. Das Punktgitter besteht aus einer räumlich periodischen Anordnung von Elementarzellen, welche die kleinste Baueinheit zur Erstellung eines Punktgitters darstellen. Für die Anordnung einer Elementarzelle ergeben sich 14 Möglichkeiten, die sogenannten BRAVAIS - Gitter. Die Beschreibung einer solchen Elementarzelle erfolgt durch das Koordinatensystem mit den Ach-

---

<sup>3</sup>Die quasifreien Elektronen werden in der Literatur auch als „Elektronengas“ oder Leitungselektronen bezeichnet, s. z. B. [13, 80].

sen  $a$ ,  $b$  und  $c$  sowie den Winkeln zwischen den Achsen  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$ , s. Abb. 2.1. Die BRAVAIS - Gitter unterteilen sich in sieben Kristallsysteme: triklin, monoklin, orthorhombisch, tetragonal, trigonal, hexagonal und kubisch. Mit Ausnahme von triklinen und hexagonalen Kristallsystemen weisen die Übrigen noch Varianten für basisflächen-, raum- sowie flächenzentrierte Kristallsysteme auf [13, 80, 159]. Eine Sonderform des trigonalen Achsensystems ist das rhomboedrische, welches in dieser Arbeit auch im Fokus steht. Darüber hinaus sind das tetragonale und kubische Achsensystem relevant, s. Abb. 2.1. Auf weitere Eigenschaften der hier vorgestellten Kristallsysteme in Verbindung mit den in dieser Arbeit untersuchten Materialien wird in Abschnitt 2.2 eingegangen.



**Abb. 2.1** Betrachtete Einheitszellen: kubisch (a), tetragonal (b) und rhomboedrisch (c)

## 2.2 Ferroelektrika

Nach der Einführung im Hinblick auf interatomare Bindungen und Kristallstrukturen, behandelt dieser Abschnitt die ferroelektrischen Materialien, welche im Fokus der vorliegenden Arbeit stehen. Da es sich bei Ferroelektrika um eine Untergruppe der Dielektrika handelt, erfolgt zunächst eine Einordnung dieser Materialien in den Gesamtkontext. Darauf aufbauend werden typische Eigenschaften und Phänomene der Gruppe der Ferroelektrika diskutiert.

### 2.2.1 Einordnung der Ferroelektrika in die Gruppe der Dielektrika

Im Hinblick auf ihre elektrische Leitfähigkeit können Festkörper in drei Gruppen eingeteilt werden: Leiter, Halbleiter und Isolatoren (Dielektrika). Die elektrische Leitfähigkeit eines Körpers lässt sich mit Hilfe der in Abschnitt 2.1 diskutierten interatomaren Bindung erklären. In elektrisch leitenden Materialien, z. B. metallischen Kristallen, setzt eine angelegte Potentialdifferenz die quasifreien Elektronen aufgrund der schwachen Bindung zum Atomkern in Bewegung. Somit entsteht ein elektrischer Stromfluss. Das Gegenteil ist bei Isolatoren (Dielektrika) der Fall: Die infolge der Potentialdifferenz auf die Elektronen wirkende Kraft reicht nicht aus,

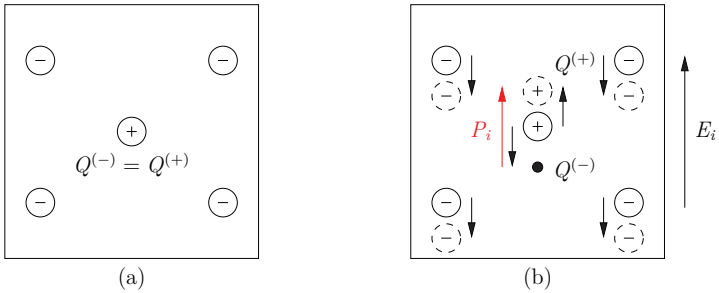


um diese vom Atomkern zu lösen und einen elektrischen Strom zu erzeugen [55]. Als Maß für die Kraft, welche auf ein Elektron bzw. eine Ladung wirkt, wird die elektrische Feldstärke  $E_i$  eingeführt. Bei Materialien, welche der Gruppe der Halbleiter angehören, hängt die elektrische Leitfähigkeit von Faktoren wie z. B. Temperatur oder Druck ab.



**Abb. 2.2** Einordnung der Ferroelektrika in die Gruppe der Dielektrika

In Abb. 2.2 ist die Einordnung der Ferroelektrika in die Gruppe der Dielektrika dargestellt. Zunächst wird der Begriff der elektrischen Polarisation eingeführt, um darauf aufbauend die Unterschiede der in Abb. 2.2 gezeigten Gruppen zu erläutern. Erklärungen hierzu bauen auf der in Abschnitt 2.1 eingeführten Elementarzelle auf. Die Gitterpunkte dieser sind durch Atome besetzt, welche sich aus den positiv geladenen Protonen und Neutronen im Atomkern sowie den negativ geladenen Elektronen zusammensetzen, s. z. B. [136]. Ein Atom ist dann elektrisch neutral, wenn die negative Ladung der Atomhülle betragsmäßig der positiven Ladung des Atomkerns entspricht. Ist dies nicht der Fall, liegt ein Ion vor. Bei einem Ion wird anhand der Ladung von Atomhülle und Atomkern zwischen Anion und Kation unterschieden. Ist die negative Ladung der Atomhülle größer als die positive Ladung des Atomkerns, so ist die Gesamtladung negativ und es liegt ein Anion vor. Andernfalls handelt es sich um ein Kation. Somit hängt die Gesamtladung einer Elementarzelle von ihrer Zusammensetzung ab. Zur Erläuterung des Begriffs der elektrischen Polarisation wird von einer Elementarzelle, wie sie in nicht-polaren Medien wie z. B. Quarz zu finden ist, ausgegangen. Hier ist die Gesamtladung Null. Wirkt ferner kein äußeres elektrisches Feld, fallen der positive ( $Q^{(+)}$ ) und negative ( $Q^{(-)}$ ) Ladungsschwerpunkt zusammen, s. Abb. 2.3(a). In Abb. 2.3(b) wirkt ein äußeres elektrisches Feld auf die Elementarzelle. Die infolge des elektrischen Feldes auf die Ladungen wirkende Kraft führt solange zu einer Verschiebung dieser, bis sich ein Kräftegleichgewicht zwischen der Kraft, resultierend aus dem elektrischen Feld und den atomaren Bindungskräften eingestellt hat. Aufgrund der entgegengesetzten Verschiebung der positiven und negativen Ladungen entsteht ein elektrisches Dipolmoment. Dieses wird auch als elektrischer Dipol bezeichnet. Somit ist die Elementarzelle polarisiert. Der Grad der Verschiebung der Ladungsschwerpunkte ist abhängig vom induzierten elektrischen Moment. Dies verhält sich proportional zum angelegten elektrischen Feld. Bezogen auf einen Kristall entspricht der in Abb. 2.3(b) gezeigte elektrische Dipol einem makroskopischen Dipolmoment pro



**Abb. 2.3** Schematische Darstellung einer nicht polarisierten (a) und einer polarisierten Elementarzelle (b), ohne permanentes Dipolmoment [33, 73, 112]

Volumen. Dieses wird z. B. nach KOPITZKI und HERZOG [80] durch den elektrischen Polarisationsvektor  $P_i$  beschrieben. Für den Vektor der elektrischen Polarisation  $P_i$  gilt allgemein:

$$P_i = \kappa_0 \chi_{ij}^{\text{el}} E_j. \quad (2.1)$$

In Gl. 2.1 beschreibt  $\kappa_0$  die Dielektrizitätskonstante im Vakuum und  $\chi_{ij}^{\text{el}}$  die elektrische Suszeptibilität.

Abb. 2.2 ist zu entnehmen, dass piezoelektrische Materialien eine Untergruppe der Dielektrika sind. Nach IKEDA [67] handelt es sich bei der Piezoelektrizität um ein lineares Kopplungsphänomen, welches auch einen inversen Effekt besitzt. Aus der altgriechischen Silbe „piezo“, welche „drücken“ bedeutet, leitet sich der direkte piezoelektrische Effekt ab. Unter diesem Effekt versteht man die Erzeugung eines elektrischen Feldes durch das Einwirken einer äußeren Kraft.<sup>4</sup> Der umgekehrte Effekt, im Folgenden als inverser piezoelektrischer Effekt bezeichnet, beschreibt die Entstehung einer Verzerrung infolge eines angelegten elektrischen Feldes.<sup>5</sup> Sowohl der direkte als auch der inverse piezoelektrische Effekt wurden 1880 bzw. 1882 von den Gebrütern PIERRE und JACQUES CURIE an in der Natur vorkommenden Materialien wie Quarz oder Turmalin nachgewiesen. Voraussetzung für den piezoelektrischen Effekt ist entweder eine dauerhafte Polarität der Elementarzelle oder bei nichtpolaren Elementarzellen das Fehlen eines Inversionszentrums. Bei zentralsymmetrischen Elementarzellen, s. z. B. Abb. 2.3(a) oder Abb. 2.4(a), führt das Einwirken einer äußeren Kraft nicht zu einer Verschiebung der Ladungsschwerpunkte, d. h. es liegt ein Inversionszentrum vor. Somit entsteht kein elektrischer Dipol. Eine weiterführende Übersicht zum Themengebiet der Piezoelektrika ist beispielsweise in [25, 55, 67] zu finden.

Als pyroelektrisch werden Materialien bezeichnet, welche aus dauerhaft polari-

<sup>4</sup>Ein typisches Anwendungsgebiet des direkten piezoelektrischen Effektes ist die Sensorik, wo eine mechanische Last in ein elektrisches Signal umgewandelt wird.

<sup>5</sup>Die Aktorik ist ein klassisches Anwendungsgebiet des inversen piezoelektrischen Effektes. Hier werden elektrische Signale in mechanische Verzerrung umgewandelt.

sierten Elementarzellen bestehen, s. z. B. [40, 118]. Die dauerhafte Polarisation einer Elementarzelle wird nachfolgend als spontane Polarisation  $P_i^{\text{sp}}$  bezeichnet. Nach FELDTKELLER [40] kann ein pyroelektrischer Kristall in mindestens zwei entgegengesetzte kristallographische Richtungen polarisiert werden. Eine solche Achse wird als polare Achse bezeichnet.<sup>6</sup> Grundsätzlich ist die spontane Polarisation temperaturabhängig. Somit kann durch eine Temperaturänderung  $\Delta\theta$  eine Oberflächenladung bzw. eine elektrische Spannung gemessen werden. Eine Umpolarisierung gewöhnlicher Pyroelektrika durch Anlegen eines antiparallelen elektrischen Feldes erweist sich als nicht möglich. Grund dafür ist, dass die Koerzitivfeldstärke  $E_c$  größer als die Durchbruchfeldstärke des Materials ist. Aufgrund dieser Eigenschaft haben gewöhnliche Pyroelektrika in der Technik nur geringe Bedeutung. Anders verhält sich dies bei ferroelektrischen Pyroelektrika, s. Abb. 2.2. Nachfolgend soll auf diese für technische Anwendungen relevante Untergruppe eingegangen werden.

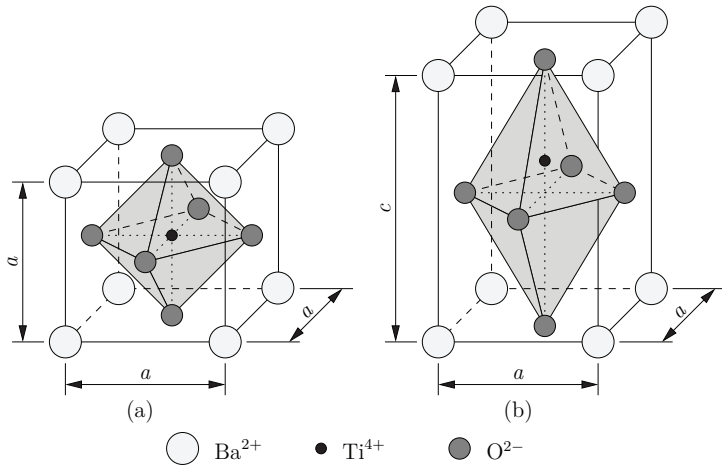
Im Gegensatz zu gewöhnlichen Pyroelektrika kann die Richtung der spontanen Polarisation ferroelektrischer oder -elastischer Materialien durch eine äußere Last geändert werden. Hier sind zwei Fälle zu unterscheiden: Wird als äußere Last ein elektrisches Feld angelegt und kommt es aufgrund dieser Last zu einer Richtungsänderung der spontanen Polarisation, so wird dies als ferroelektrischer Effekt bezeichnet. Wirkt stattdessen eine äußere mechanische Last, welche zu einer Richtungsänderung der spontanen Polarisation führt, wird dies als ferroelastischer Effekt bezeichnet. Da zumeist beide Effekte auftreten, wird nachfolgend nur noch von dem ferroelektrischen Effekt bzw. von Ferroelektrika gesprochen. Für technische Anwendungen werden keramische Materialien wie Bariumtitanat (BT) oder Bleizirkonattitanat (PZT) verwendet. Die Ursache für das Auftreten der hier untersuchten Eigenschaften liegt in der Kristallstruktur der Einheitszelle. Ferroelektrika verfügen über eine sogenannte Perowskit - Struktur, s. Abb. 2.4. Die wesentlichen Effekte werden zunächst an BT erklärt.

Bei der Perowskit - Struktur befindet sich ein vierfach positiv geladenes Ion im Zentrum der Elementarzelle, z. B.  $\text{Ti}^{4+}$  s. Abb. 2.4. Die Eckpunkte der Elementarzelle sind mit zweifach positiv geladenen Ionen besetzt, z. B.  $\text{Ba}^{2+}$ , vgl. Abb. 2.4. Auf den Flächenmitten befinden sich zweifach negativ geladene Sauerstoffionen.<sup>7</sup> Abb. 2.4(a) zeigt die Perowskit-Struktur oberhalb der materialabhängigen CURIE-Temperatur  $\theta_c$ . Hier liegt eine kubische Elementarzelle vor. In dieser Phase liegen der positive und negative Ladungsschwerpunkt aufeinander. Somit weist die Elementarzelle keine spontane Polarisation auf und verfügt aufgrund des zudem vorliegenden Inversionszentrums über keine Piezoelektrizität. Diese Phase wird daher auch als paraelektrisch bezeichnet.

Erfolgt eine Abkühlung unterhalb der CURIE - Temperatur, so wird die paraelektrische Phase instabil und es erfolgt ein Phasenübergang zur tetragonalen Elementarzelle, s. Abb. 2.4(b). Dabei verschiebt sich das zentrale Ion entlang einer der drei zu den Kanten parallelen Richtungen, während der Sauerstoffktaeder

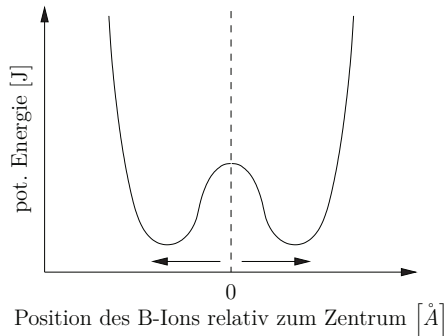
<sup>6</sup>Besitzt ein Kristall mehr als eine kristallographische Richtung, so besitzt er auch mehrere polare Achsen, vgl. hierzu z. B. [40].

<sup>7</sup>Die allgemeine Formel für Materialien mit Perowskit-Struktur lautet  $\text{ABO}_3$ , s. [67]. Dabei entsprechen die „A“-Plätze den Plätzen auf den Eckpunkten der Elementarzelle. Ein weiteres mögliches Ion für diesen Platz wäre z. B.  $\text{Pb}^{2+}$ . Der „B“-Platz ist für das Ion im Zentrum vorgesehen. Mögliche Ionen für diesen Platz wären z. B.  $\text{Zr}^{4+}$  oder  $\text{Sn}^{4+}$ .



**Abb. 2.4** Kubische (a) und tetragonale (b) Einheitszellen mit Perowskit-Struktur am Beispiel von BT, s. auch [33, 72, 131]

eine Verschiebung in die entgegengesetzte Richtung erfährt. Somit liegen die Ladungsschwerpunkte nicht mehr zusammen, es entsteht eine spontane Polarisation und die tetragonale Elementarzelle verfügt über piezoelektrische Eigenschaften. In Abb. 2.5 ist zu sehen, dass es für das zentrale Ti<sup>4+</sup>-Ion zwei energetisch günstige Positionen entlang der  $c$ -Achse gibt. Nach MOULSON und HERBERT [117] kann mit Hilfe eines hinreichend großen elektrisches Feldes in entgegengesetzter Richtung zur Polarisation das Ti<sup>4+</sup>-Ion die Energiebarriere überwinden und es erfolgt eine Umpolarisierung der Elementarzelle entlang der polaren Achse. Bei Ele-

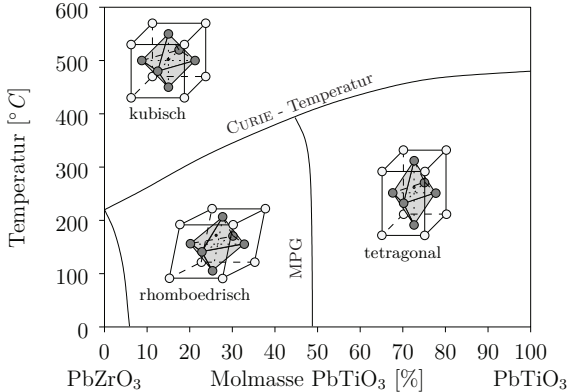


**Abb. 2.5** Potentielle Energie des Ti<sup>4+</sup>-Ions entlang der  $c$ -Achse einer tetragonalen Elementarzelle

mentarzellen mit mehreren polaren Achsen gibt es einen ähnlichen Mechanismus,

der die Veränderung einer polaren Achse beschreibt.<sup>8</sup> Neben der hier beschriebenen Phasenumwandlung gibt es bei BT noch zwei weitere: Bei ca. 273,15 K erfolgt eine Phasenumwandlung von der tetragonalen zur orthorombischen und bei ca. 183,15 K von der orthorombischen zur rhomboedrigen Elementarzelle [68, 117].

Das ebenfalls in dieser Arbeit untersuchte PZT verhält sich oberhalb der CURIE-Temperatur wie BT: Es ist paraelektrisch. Unterhalb der CURIE - Temperatur können sich, abhängig von der chemischen Zusammensetzung der Keramik, drei unterschiedliche Phasen ausbilden. Ab ca. 48 % Bleititanat ( $\text{PbTiO}_3$ ) bildet sich eine



**Abb. 2.6** Phasendiagramm für PZT [68, 112]

tetragonale Phase, s. Abb. 2.6. Bei einem Volumenanteil von ca. 8% bis 48% Bleititanat entsteht eine rhomboedrische Phase. Die dritte ist eine orthorombische Phase. Diese bildet sich bei einem Mindestanteil von ca. 92% Bleizirkonat ( $\text{PbZrO}_3$ ). Liegt die CURIE - Temperatur bei BT bei ca. 403,15 K, so erstreckt sie sich bei PZT über einen Bereich von ca. 493,15 K bis 753,15 K. Ein für technische Anwendungen besonders interessanter Bereich geht ebenfalls aus Abb. 2.6 hervor: die morphotrope Phasengrenze (MPG). An der Phasengrenze liegen sowohl rhomboedrische als auch tetragonale Elementarzellen vor. Dies ist dann der Fall, wenn eine Zusammensetzung von ca. 52% Bleititanat und 48% Bleizirkonat, in der stöchiometrischen Formel durch  $\text{Pb}(\text{Ti}_{52}, \text{Zr}_{48})\text{O}_3$  gekennzeichnet, vorliegt. Wesentliche Eigenschaften der morphotrope Phasengrenze (MPG) sind deren Temperaturunabhängigkeit, ein Maximum im Hinblick auf die Verzerrung, geringere Eigenspannungen sowie verbesserte Materialeigenschaften im Vergleich zur tetragonalen Phase, s. z. B. [26, 84, 103]. Aufgrund der besonderen Eigenschaften von PZT nahe der MPG steht diese bereits seit ungefähr 20 Jahren im Fokus intensiver Forschung. Die Ursachen für die dort auftretenden Effekte sind nicht abschließend geklärt. So wird in [24, 45, 123] darauf aufmerksam gemacht, dass an der MPG nicht nur rhomboedrische und tetragonale Elementarzellen vorliegen, sondern auch eine monokline

<sup>8</sup>Im späteren Verlauf werden diese Mechanismen als 90°-Umklauprozesse, bei tetragonalen Elementarzellen, bzw. als 70,5°- und 109,5°-Umklauprozesse bei rhomboedrischen Elementarzellen bezeichnet.

Phase vorhanden ist. Nach FRANZBACH et al. [45] sind neben dem Vorhandensein der monoklinen Phase, welche in Verbindung mit den bereits bekannten Phasen zu mehr als 30 Umklappvarianten führt, auch elektrisch induzierte Phasenumwandlungen für die oben beschriebenen Effekte verantwortlich. Motiviert durch gesetzliche Rahmenbedingungen sind bleifreie Ferroelektrika Gegenstand neuerer Forschung, werden im Rahmen dieser Arbeit jedoch nicht näher betrachtet. Technisch relevante Materialien sind beispielsweise Legierungen mit Kalium oder Bismut,  $(\text{K}, \text{Bi})\text{TiO}_3$ , sowie Materialien aus der Gruppe der Bismuttitanate, wie z. B.  $\text{SrTi}_4\text{Bi}_4\text{O}_{15}$ , s. auch [105, 146].

## 2.2.2 Domänenstruktur und Hystereseverhalten einphasiger Materialien

Nachdem in Abschnitt 2.2.1 auf die Einordnung der Ferroelektrika eingegangen wurde, werden in diesem Abschnitt die Eigenschaften einphasiger Ferroelektrika diskutiert. Darunter versteht man Materialien, die aus nur einem Typ der in Abschnitt 2.1 eingeführten Elementarzellen bestehen. Diese werden am Beispiel von Materialien mit tetragonalem Achsensystem erläutert.

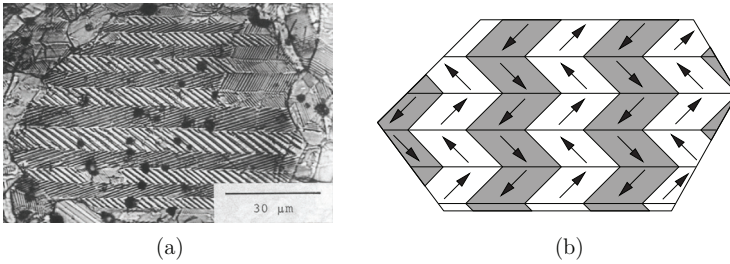
Ferroelektrische Keramiken werden in einem Sinterprozess, weit oberhalb der CURIE - Temperatur, hergestellt. Die infolge der Abkühlung entstehende tetragonale Elementarzelle verfügt über drei mögliche polare Achsen. Somit ergeben sich sechs mögliche Richtungen für die Verschiebung des zentralen Ions bzw. des Sauerstoffoktaeders, s. hierzu z. B. [73, 89, 96]. In welche der sechs Richtungen sich das Ion verschiebt und sich somit die spontane Polarisierung bildet ist dem Zufall überlassen. Lediglich in Teilbereichen eines Kornes finden sich Gebiete gleicher Orientierung, s. Abb. 2.7.<sup>9</sup> Diese werden nachfolgend als Domänen bezeichnet. Die Abgrenzung zweier benachbarter Domänen heißt Domänenwand. Wird im weiteren Verlauf von einem Einkristall gesprochen, so ist in diesem Fall von einem Korn die Rede.<sup>10</sup> Ein räumlicher Einkristall entsteht somit aus den sechs Orientierungsrichtungen der Elementarzelle.

Die bis hierhin ausgeführten Erläuterungen beschränken sich auf eine mikroskopische Betrachtungsweise. Für technische Anwendungen ist jedoch insbesondere das makroskopische Verhalten des Materials von Interesse. Die makroskopische Betrachtungsebene umfasst zumeist einen Polykristall. Dieser besteht aus vielen Einkristallen, welche durch Korngrenzen voneinander getrennt sind.<sup>11</sup> Auf Grund der zufälligen Orientierung der spontanen Polarisierung während des Abkühlungsprozesses, weist ein nicht gepolter Polykristall im makroskopischen Mittel keine spontane Polarisierung und somit auch keinen piezoelektrischen Effekt auf. Daher verhält sich dieser makroskopisch, auch unterhalb der CURIE - Temperatur, wie ein paraelektrischer Polykristall und ist deshalb isotrop.

<sup>9</sup>Weitere Abbildungen von Domänenstrukturen sind z. B. in [40, 68, 117] zu finden.

<sup>10</sup>Obwohl in einem Korn, welches aus tetragonalen Elementarzellen besteht, bis zu sechs Orientierungsrichtungen möglich sind, ist die Definition eines Einkristalls dennoch gerechtfertigt, da die Grenze zwischen zwei Domänen im Gegensatz zur Korngrenze keinen Kongruenzfehler darstellt, s. hierzu [13, 144].

<sup>11</sup>Bilder zu Polykristallen sind z. B. in [3, 43, 117] zu finden.



**Abb. 2.7** Domänenstruktur in einem Korn (BT). (a): Mikroskopische Aufnahme (entnommen aus: ARLT [3]), (b): schematische Darstellung

Kennlinien, die das makroskopische Verhalten ferroelektrischer Materialien beschreiben, sind in Abb. 2.8 dargestellt. In Abb. 2.8(a) ist die dielektrische Hysterese zu sehen. Durch die in Abschnitt 2.2.1 beschriebenen Eigenschaften von Ferroelektrika besteht die Möglichkeit, einen Polykristall durch Aufbringen einer äußeren elektrischen Last zu polen. Bei diesem Vorgang, gekennzeichnet durch die gestrichelte Linie, richten sich die Elementarzellen in Richtung des elektrischen Feldes aus. Aus physikalischer Sicht kann die Ausrichtung der Elementarzellen wie folgt interpretiert werden: Domänen, welche aus energetischer Sicht ungünstig zum angelegten elektrischen Feld orientiert sind, verschieben sich hin zu den Domänen, welche energetisch günstiger liegen. Bei diesem Prozess, der auch als Domänenwandverschiebung bezeichnet wird, nimmt die Fläche letztgenannter Domänenvarianten zu Lasten der erstgenannten zu. Auch nach dem Abschalten des elektrischen Feldes besitzt der Polykristall dann eine dauerhafte Polarisation, welche im Folgenden als remanente Polarisation  $P^r$  bezeichnet wird. Die remanente Polarisation ist auf die inelastischen Prozesse infolge der Domänenwandverschiebungen zurückzuführen. Da bei Polykristallen eine ideale Orientierung der Elementarzellen, aufgrund der unterschiedlichen Ausrichtungen der Kristalle und der Domänen, nicht möglich ist, gilt  $P^r < P^0$ , wobei  $P^0$  der Betrag der spontanen Polarisation ist. Der Polungsprozess führt ferner dazu, dass sich in dem Polykristall eine transversale Isotropie einstellt. Die Vorzugsrichtung der Transversalisotropie ist durch die Richtung der remanente Polarisation gegeben. Damit verfügt das Material über piezoelektrische Eigenschaften und kann für technische Anwendungen genutzt werden.

In Abb. 2.8(b) ist eine weitere Kennlinie, welche das makroskopische Verhalten ferroelektrischer Materialien beschreibt, zu sehen: die Schmetterlingshysterese. Hier wird die Dehnung über der elektrischen Feldstärke aufgetragen. Wie bereits in Abb. 2.8(a) dargestellt, verfügt auch die Dehnung über eine remanente Größe welche sich nach Abschalten des elektrischen Feldes einstellt. Diese wird nachfolgend als remanente Dehnung  $\epsilon^r$  bezeichnet.

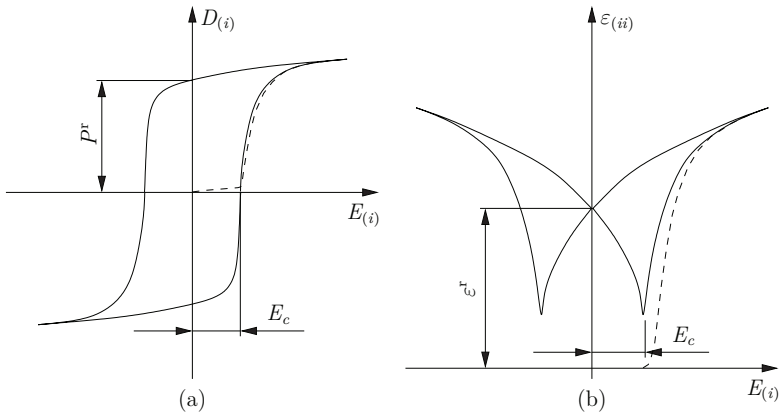


Abb. 2.8 Schematische Darstellung der dielektrischen (a) und Schmetterlingshysterese (b), s. [33, 40, 117, 131]

## 2.3 Ferromagnetika

Neben den in Abschnitt 2.2 diskutierten Ferroelektrika werden in der vorliegenden Arbeit auch ferromagnetische Materialien untersucht. Ferromagnetika werden hinsichtlich ihres Materialverhaltens in zwei Gruppen aufgeteilt: Zum einen zeigen sogenannte Hartmagnete, ähnlich ferroelektrischer Materialien, ein ausgeprägtes Hystereseverhalten, zum anderen weisen sogenannte Weichmagnete ein nahezu reversibel nichtlineares Materialverhalten auf. Zu welcher dieser Gruppen ein ferromagnetisches Material gehört, hängt auch vom Herstellungsprozess ab. So ist es durchaus möglich, dass unterschiedliche Proben ein und desselben ferromagnetischen Materials mit identischer chemischer Zusammensetzung entweder zu der Gruppe der Hartmagnete oder zu der der Weichmagnete gehören [4, 17, 32, 115]. Da in dieser Arbeit ausschließlich Hartmagnete untersucht werden, wird nachfolgend nur auf diese eingegangen. Für weiterführende Informationen zu Weichmagneten sei z. B. auf [4, 115] verwiesen.

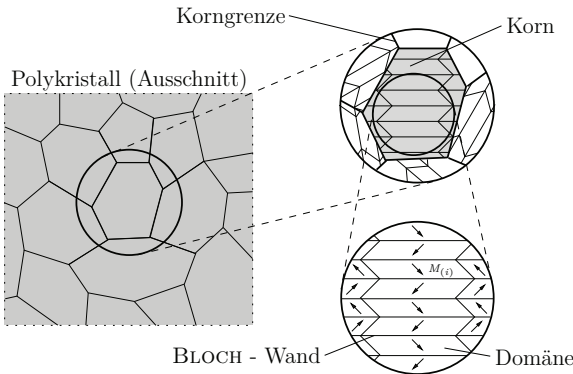
### 2.3.1 Eigenschaften ferromagnetischer Materialien

Die Erläuterungen der Eigenschaften ferromagnetischer Materialien beschränkt sich in dieser Arbeit auf deren makroskopisches Verhalten. Hartmagnete weisen hierin gewisse Ähnlichkeiten zu Ferroelektrika auf. Bei Ferromagnetika entsprechen die Magnetisierung  $M_i$ , die magnetische Induktion  $B_i$  und die magnetische Feldstärke  $H_i$  der Polarisation  $P_i$ , der dielektrischen Verschiebung  $D_i$  und der elektrischen Feldstärke  $E_i$  bei Ferroelektrika. Ferner wird ein Hartmagnet bei überschreiten der CURIE - Temperatur paramagnetisch. Materialien mit ferromagnetischen Eigenschaften sind z. B. Eisen, Kobalt, Nickel und Legierungen dieser Stoffe. Als Material, welches die Gruppe der harten Ferromagnetika repräsentiert, wird in die-



ser Arbeit Kobalt - Ferrit ( $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ ) verwendet.<sup>12</sup> Aufgrund der Ähnlichkeit des makroskopischen Verhaltens werden zur Beschreibung ferromagnetischer Materialien der Piezoelektrizität entlehnte und entsprechend angepasste Materialgesetze verwendet, s. z. B. [5, 35, 85, 100, 142]. Trotz der Gemeinsamkeiten muss an dieser Stelle darauf aufmerksam gemacht werden, dass diese ausschließlich auf makroskopischer Ebene vorliegen. Die Effekte auf atomarer Ebene, welche sich letztlich im makroskopischen Verhalten äußern, sind bei Ferroelektrika und -magnetika grundverschieden. Eine ausführliche Diskussion dieser Effekte ist z. B. in [100] zu finden.

Wie auch bei ferroelektrischen Materialien werden für technische Anwendungen Materialien mit polykristallinen Strukturen verwendet. Ein schematischer Ausschnitt einer solchen Struktur ist in Abb. 2.9 dargestellt. Diese besteht aus mehreren Körnern, welche durch ihre Korngrenzen voneinander getrennt sind. Analog der



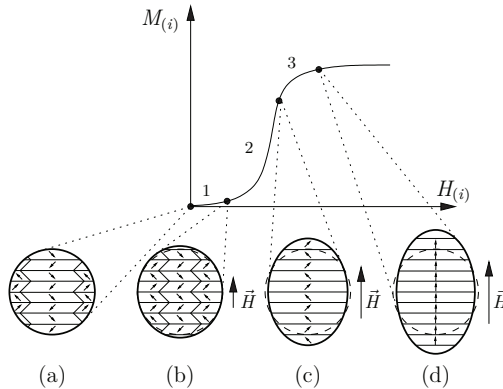
**Abb. 2.9** Korn- und Domänenstruktur eines ferromagnetischen Polykristalls [100]

Ferroelektrika besteht ein einzelnes Korn aus mehreren Domänen bzw. WEISSchen Bezirken. Auch bei Ferromagnetika zeichnet sich eine Domäne dadurch aus, dass sie einen Bereich beschreibt, wo die atomistischen Elementarmagnete in die gleiche Richtung zeigen. Benachbarte Domänen sind durch die Domänen- bzw. BLOCH-Wände voneinander getrennt. Im Gegensatz zu Ferroelektrika stellen diese bei Ferromagnetika ein Bereich dar, wo eine kontinuierliche Umorientierung von der Domäne 1 zur Domäne 2 stattfindet, s. hierzu auch [4]. Neben BLOCH - Wänden liegen Domänenwände auch als NÉEL - Wände vor [69, 114]. Da diese nur in Dünnschichten auftreten, wird in dieser Arbeit ausschließlich der Begriff der BLOCH - Wand verwendet.

Eine wesentliche Eigenschaft ferromagnetischer Materialien ist die Magnetostraktion. Hierbei handelt es sich um die Deformation magnetischer Stoffe infolge eines angelegten magnetischen Feldes. Das makroskopische Verhalten eines magnetostruktiven Materials wird zunächst anhand des Magnetisierungsprozesses infolge eines sich ändernden magnetischen Feldes  $H_i$  erläutert. Zunächst wird von einem nicht magnetisierten Material ausgegangen. Ist das magnetische Feld zu Beginn des Pro-

<sup>12</sup>Die entsprechenden Materialdaten sind im Anhang B zu finden.

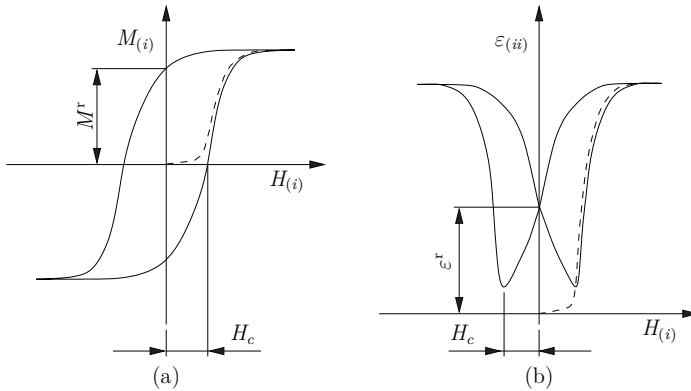
zesses Null, so ist auch die Magnetisierung Null, da sich die Magnetisierungen der einzelnen Dömänen gegenseitig aufheben, s. Abb. 2.10(a). Im Gegensatz zu Fer-



**Abb. 2.10** Neukurve bei Ferromagneten: Bereiche der Magnetisierung, s. [4, 100]

roelektrika führt das Anlegen eines äußeren magnetischen Feldes unmittelbar zu einer Verschiebung der Domänenwände. Bei Ferromagnetika erfolgt diese durch die Rotation der Elementarmagnete. Wie auch bei Ferroelektrika nehmen die Volumina der Domänen zu, welche bzgl. des externen magnetischen Feldes  $H_i$  energetisch günstig orientiert sind. Da sich aufgrund des äußeren magnetischen Feldes die Magnetisierungen der einzelnen Domänen nicht mehr gegenseitig aufheben, ergibt sich nun eine von Null verschiedene resultierende Magnetisierung, s. Abb. 2.10(b). Der in Abb. 2.10(b) dargestellte Prozess ist reversibel, da sich die BLOCH - Wände frei verschieben können, s. hierzu auch [100]. Eine weitere reversible Verschiebung der Domänenwände wird durch Fehlstellen im Kristallgitter unterbunden. Bei weiterer Erhöhung der äußeren Last kommt es zur irreversiblen Verschiebung der BLOCH-Wände. Die Punktdefekte werden durch sogenannte BARKHAUSEN - Sprünge überwunden. Dieser Prozess erfolgt diskontinuierlich und ist erst dann abgeschlossen, wenn sämtliche Domänen, deren Orientierung entgegen der äußeren Last zeigt, vollständig verschwunden sind, s. Abb. 2.10(c). Die Eigenschaft, dass eine Domänen infolge der Wandverschiebung vollständig in eine andere übergehen kann, ist ein weiterer Unterschied im Vergleich zu Ferroelektrika. Für sehr hohe externe magnetische Feldstärken richten sich die magnetischen Momente in Richtung der externen Last aus, s. Abb. 2.10(d). Da dieser Ausrichtung ausschließlich eine Drehung der magnetischen Momente und keine Verschiebung der Domänenwände zugrunde liegt, ist dies wieder ein reversibler Prozess. Eine weitere Erhöhung der Last  $H_i$  führt zu einer Sättigung der Magnetisierung  $M_i$ , da sämtliche magnetischen Momente bereits vollständig ausgerichtet sind.

Wird die externe Last wieder reduziert, so erfolgt zunächst der reversible Prozess der Drehung der magnetischen Momente. Dies führt zu einer Reduzierung der Magnetisierung bzw. Dehnung, s. Abb. 2.11. Ist die externe magnetische Last  $H_i = 0$ , so verbleibt infolge der irreversiblen Prozesse eine remanente Magnetisierung  $M^r$



**Abb. 2.11** Magnetisierungs- und Schmetterlingshysteresen für ein ferromagnetisches Material mit positiver Magnetostraktion

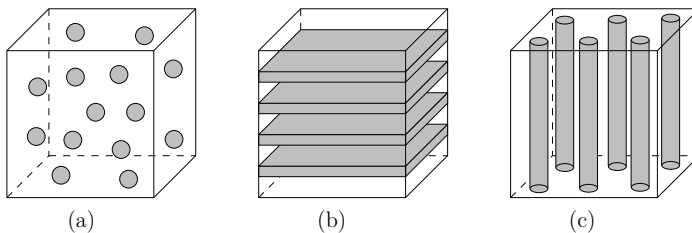
und remanente Dehnung  $\varepsilon^r$ . Damit die Magnetisierung zu Null und die Dehnung minimiert wird bedarf es eines magnetischen Feldes vom Betrag  $H_c$ , welches entgegen der aktuellen resultierenden Magnetisierungsrichtung zeigt. Wird dieses weiter erhöht, so äußert sich dies in der Umkehrung des bisher beschriebenen Prozesses, was schließlich zu einer ferromagnetischen Hystereseschleife führt, s. Abb. 2.11(a). Die Verzerrung, s. Abb. 2.11(b), ist unabhängig vom Vorzeichen der externen magnetischen Last. Wie auch bei Ferroelektrika wird diese Hysteresekurve als Schmetterlingshysterese bezeichnet. Im Gegensatz zu Abb. 2.8(b) ist hier eine Sättigung für größere magnetische Lasten zu erkennen, welche typisch für Ferromagnetika ist. Aufgrund der in diesem Abschnitt aufgezeigten Analogien zwischen Ferroelektrika und -magnetika wird bei ferromagnetischen Materialien ausschließlich der in Abb. 2.10 dargestellte irreversible nichtlineare Bereich 2 modelliert, s. hierzu auch AVAKIAN und RICOEUR [4].

## 2.4 Multiferroische Komposite

Potentielle Anwendungsgebiete multiferroischer Komposite sind u. a. die Medizintechnik sowie die digitale Speichertechnologie. Als kontaktlose Alternative zur Messung von Hirnströmen hat sich in den vergangenen Jahren die Magnetoenzephalographie (MEG) etabliert [42]. Im Gegensatz zur Standardmethode, der Elektroenzephalografie (EEG), werden bei der MEG die Hirnströme mit Hilfe des durch die Hirnaktivität induzierten Magnetfeldes gemessen. Dank hochsensibler Magnetfeldsensoren, den sogenannten Superconducting Quantum Interference Devices (SQUIDs), wird das induzierte Magnetfeld in ein elektrisches Signal umgewandelt. Ein Vorteil der MEG ist, dass aufgrund der kontaktlosen Methode Patienten schneller und einfacher untersucht werden können. Dem gegenüber steht der Nachteil, dass die Sensoren zur Messung des magnetischen Feldes mit flüssigem Helium auf 4 K gekühlt werden müssen, s. auch [42]. Da natürliche Materialien mit

einem nutzbaren magnetoelektrischen Effekt (MEE) bei Raumtemperatur sehr selten sind, erschließt sich hieraus ein mögliches Anwendungsgebiet multiferroischer Komposite. Anwendungsbeispiele, wo auf die Vorteile ferroelektrischer und ferromagnetischer Materialien im Hinblick auf eine effiziente digitale Speichertechnologie eingegangen wird, sind in [18, 143] zu finden. Aufgrund der hier kurz skizzierten potentiellen Anwendungsgebiete ist die Entwicklung multiferroischer Komposite aktuell in den Fokus der Forschung gerückt.

Bei den in dieser Arbeit betrachteten multiferroischen Kompositen handelt es sich um solche, wo ein ferromagnetisches Material in eine ferroelektrische Matrix eingebettet ist. Die Einteilung in unterschiedliche Kompositarten geht auf NEW-



**Abb. 2.12** Auswahl möglicher Kompositarten: 0-3 Partikelkomposit (a), 2-2 Schichtkomposit (b) und 1-3 Faserkomposit (c)

NHAM et al. [122] zurück, weiterführende Informationen dazu sind auch in [119, 130, 153] zu finden. Die in [122] eingeführten Definitionen waren ursprünglich für zweiphasige piezoelektrische Komposite gedacht, können jedoch auch auf multiferroische Komposite übertragen werden, da wie oben beschrieben ausschließlich zweiphasige Komposite im Fokus stehen. Die Komposite werden anhand der Kontinuität beider Phasen unterschieden, was bei einem Zweiphasenkomposit anhand der  $X$ - $Y$  - Systematik dargestellt wird. Beim multiferroischen Komposit beschreibt  $X$  die Kontinuität der ferromagnetischen und  $Y$  die der ferroelektrischen Phase. In Abb. 2.12(a) ist ein 0-3 Komposit dargestellt. Dies bedeutet, dass die ferromagnetische Phase in keiner Raumrichtung und die ferroelektrische Phase entsprechend in drei Raumrichtungen kontinuierlich angeordnet ist. Ein solches Komposit wird auch als Partikelkomposit bezeichnet. Bei dem in Abb. 2.12(b) dargestellten 2-2 Komposit sind beide Phasen kontinuierlich in zwei Raumrichtungen angeordnet, weswegen hier von einem Schichtkomposit gesprochen wird. Abb. 2.12(c) zeigt ein 1-3 Komposit. Hier ist die ferromagnetische Phase entlang einer Raumrichtung und die ferroelektrische Phase in drei Raumrichtungen kontinuierlich angeordnet. Neben den in Abb. 2.12 dargestellten Varianten existieren noch sieben weitere, s. hierzu [122, 130, 153].

Da weder die hier betrachteten ferroelektrischen noch die ferromagnetischen Materialien über magnetoelektrische Eigenschaften verfügen, ist der für die oben beschriebenen Anwendungen notwendige MEE eine Eigenschaft, welche aus der Kombination beider Werkstoffklassen in einem multiferroischen Komposit folgt. Nach z. B. [4, 5] wird bei multiferroischen Kompositen die Kopplung zwischen magnetischen und elektrischen Feldern über die Deformation der Matrix bzw. der Ein-

schlüsse erreicht. Vor diesem Hintergrund kann die Güte eines Komposites auf Basis der magnetoelektrischen Kopplung bewertet werden. Die Kopplung kann u. a. durch die Volumenanteile beider Phasen oder durch die Art des Komposites selbst beeinflusst werden. Mit Hilfe numerischer Werkzeuge sollen geeignete Komposite entwickelt und optimiert werden.

# 3 Grundgleichungen ferroelektrischer, ferromagnetischer und multiferroischer Körper

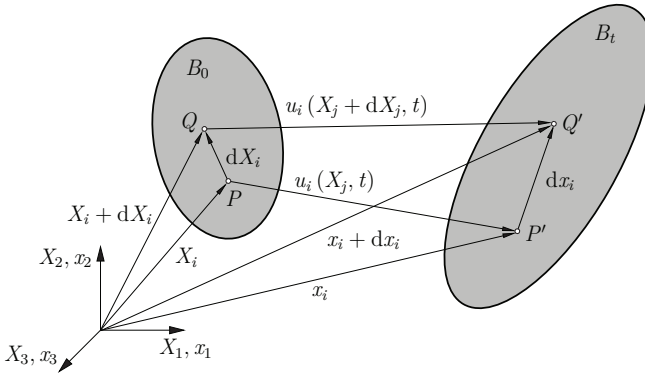
In diesem Kapitel wird zunächst auf die Grundlagen der Kontinuumsmechanik und Kontinuumsselektrodynamik eingegangen. Diese beschränken sich auf wesentliche Gleichungen, wie Impulsbilanz und MAXWELL - Gleichungen. Im zweiten Teil dieses Kapitels wird auf die thermodynamischen Grundlagen multiferroischer Materialien eingegangen. Ziel dieses Teils ist die Einführung eines thermodynamischen Potentials aus dem die konstitutiven Gleichungen und die zugehörigen Materialtensoren hervorgehen. Ferner wird hier, basierend auf dem ersten und zweiten Hauptsatz der Thermodynamik, die CLAUSIUS - DUHEM - Ungleichung eingeführt. Diese wird in Kapitel 5 zur Überprüfung eines Evolutionsgesetzes der inneren Variablen für die Domänenwandverschiebung ferroelektrischer und -magnetischer Materialien auf thermodynamische Konsistenz verwendet. Mehr zu den in diesem Kapitel behandelten Themen, ist z. B. in [2, 6, 15, 93, 128, 149] zu finden.

Im weiteren Verlauf der Arbeit wird die Indexnotation verwendet ( $i, j, k, \dots = 1, 2, 3$ ). Wird keine ergänzende Anmerkung gemacht, so gilt die EINSTEINSche Summationskonvention. Bei dieser wird über doppelt auftretende Indizes summiert. Ferner beschreibt ein Komma im Index die partielle Ableitung bezüglich der Koordinate  $(\cdot)_{,i} = \partial/\partial x_i$  sowie ein Punkt über dem Symbol die partielle zeitliche Ableitung  $(\dot{\phantom{x}}) = \partial/\partial t$ .

## 3.1 Kinematik des Kontinuums

Zur Beschreibung der Deformation eines Kontinuums sind kinematische Beziehungen erforderlich. Bei keramischen Ferroelektrika und den meisten Ferromagneten können infinitesimal kleine Deformationen in sehr guter Näherung angenommen werden. In Kapitel 4, wo Umklappprozesse kinematisch beschrieben werden, werden auch finite Deformationen zugrunde gelegt.

Mit  $B_0$  werden Gestalt und Position eines deformierbaren, unbelasteten Körpers bezeichnet. Hierfür wird der Begriff Referenzkonfiguration eingeführt. Die sich infolge einer Belastung einstellende Gestalt und Position des Körpers wird gemäß Abb. 3.1 als Momentankonfiguration  $B_t$  bezeichnet, s. hierzu z. B. [15, 107, 127]. Die Lage eines Partikels bzw. materiellen Punktes  $P$  wird in der Referenzkonfiguration durch den Ortsvektor  $X_i$  (materielle Koordinate) und in der Momentankonfiguration durch den Ortsvektor  $x_i$  (räumliche Koordinate) beschrieben. Durch den



**Abb. 3.1** Deformierbarer Körper in der Referenz- ( $B_0$ ) sowie der Momentankonfiguration ( $B_t$ ), s. z. B. [15, 107, 127]

Vektor  $u_i$  wird die Verschiebung eines materiellen Punktes zwischen der Referenz- und Momentankonfiguration beschrieben. Es gilt in LAGRANGEScher Darstellung:

$$u_i(X_j, t) = x_i(X_j, t) - X_i, \quad (3.1)$$

bzw. in EULERScher Darstellung:

$$u_i(x_j, t) = x_i - X_i(x_j, t). \quad (3.2)$$

Als LAGRANGESche bzw. EULERSche Darstellung wird eine Beschreibung bzgl. der Referenz- bzw. Momentankonfiguration bezeichnet. Die Funktion  $x_i(X_j, t)$  und deren Inverse  $X_i(x_j, t)$  beschreiben die zeitliche Abfolge von Konfigurationen in eindeutiger und umkehrbarer Weise. Die Variable  $t$  in Gl. (3.1) bezeichnet die Zeit. Nach MANG und HOFSTETTER [107] führt die Gesamtheit der Verschiebungsvektoren aller materiellen Punkte auf den Verschiebungszustand. Dieser Zustand setzt sich allgemein aus einer Starrkörperbewegung und einer Verformung zusammen. Eine Starrkörperbewegung besteht aus Translation und Rotation. Das Volumen und die Gestalt des Körpers ändern sich hierbei nicht. Im Gegensatz dazu können sich bei der Verformung eines Körpers sowohl dessen Volumen als auch die Gestalt ändern.

Die Verformung wird beschrieben durch zwei benachbarte Punkte  $P$  und  $Q$  deren Abstand  $dX_i$  infinitesimal ist, wonach  $dX_i$  ein infinitesimales Linienelement darstellt. In der Referenzkonfiguration werden die Punkte durch die Vektoren  $X_i$  und  $X_i + dX_i$  beschrieben, s. Abb. 3.1. Unter Berücksichtigung der Gl. (3.1) gilt für die Punkte  $P'$  und  $Q'$  der Momentankonfiguration in der LAGRANGESchen Darstellung

$$x_i(X_j, t) = u_i(X_j, t) + X_i, \quad (3.3)$$

$$x_i(X_j, t) + dx_i(X_j, t) = u_i(X_j + dX_j, t) + X_i + dX_i. \quad (3.4)$$

Die Subtraktion der Gln. (3.3) und (3.4) führt auf den Vektor des infinitesimalen

Abstandes bzw. Linienelementes in der Momentankonfiguration:

$$dx_i(X_j, t) = u_i(X_j + dX_j, t) - u_i(X_j, t) + dX_i. \quad (3.5)$$

Gl. (3.5) ist eine Funktion der unabhängigen Variablen  $X_i$  und  $t$ . Für das totale Differential der räumlichen Koordinate gilt andererseits:

$$dx_i(X_j, t) = \left. \frac{\partial x_i(X_j, t)}{\partial X_j} \right|_t dX_j + \left. \frac{\partial x_i(X_j, t)}{\partial t} \right|_{X_j} dt, \quad (3.6)$$

wobei der zweite Summand in Gl. (3.6) die Starrkörpertranslation  $v_i$  beschreibt. Da eine Starrkörperbewegung das Volumen bzw. die Gestalt des Körpers nicht verändert, hat insbesondere die Starrkörpertranslation keinen Einfluss auf die Verzerrung, weshalb kontinuumsmechanisch der erste Term relevant ist. Gl. (3.6) kann auch wie folgt formuliert werden:

$$dx_i(X_j, t) = F_{ij}(X_j, t) dX_j(X_j, t) + v_i dt. \quad (3.7)$$

In Gl. (3.7) wird der Deformationsgradient

$$F_{ij}(X_j, t) = \frac{\partial x_i(X_j, t)}{\partial X_j} = x_{i,j} \quad (3.8)$$

der nichtlinearen Kontinuumsmechanik als fundamentale Größe eingeführt. Die in Gl. (3.8) angewandte Komma-Konvention der analytischen Schreibweise postuliert eine partielle Ableitung nach den räumlichen oder materiellen Koordinaten  $x_i$  oder  $X_i$ . Nach z. B. [2, 15, 58, 127] bewirkt dieser LAGRANGESche Deformationsgradient eine Transformation infinitesimaler Linienelemente aus der Referenzkonfiguration in die Momentankonfiguration.<sup>13</sup> Für eine entsprechende Rücktransformation von der Momentankonfiguration in die Referenzkonfiguration folgt aus Gl. (3.7) für  $v_i = 0$  bzw. zu einem Zeitpunkt  $t$  ( $dt = 0$ )

$$dX_i = F_{ij}^{-1} dx_j \quad (3.9)$$

mit dem inversen oder EULERSchen Deformationsgradienten:

$$F_{ij}^{-1} = \frac{\partial X_i(x_j, t)}{\partial x_j} = X_{i,j}. \quad (3.10)$$

Aus der Herleitung wird ersichtlich, dass der Deformationsgradient sowohl die Verzerrung als auch die Starrkörperrotation enthält. Auf Grund dieser Tatsache und seiner im Allgemeinen nicht symmetrischen Eigenschaft ist der Deformationsgradient als Maß für die Formänderung eines Körpers ungeeignet. Eine wesentliche Aufgabe der Kontinuumsmechanik ist die Bestimmung von Verzerrungen in materiellen Körpern. Da die Verzerrungen innere Kräfte im materiellen Körper verursachen,

<sup>13</sup>Aus Gründen der Vollständigkeit sei an dieser Stelle erwähnt, dass der Deformationsgradient auch Flächen- bzw. Volumenelemente von der Referenzkonfiguration in die Momentankonfiguration transformiert [2]. Die Herleitungen beschränken sich an dieser Stelle jedoch auf Linienelemente.



sind sie eine wesentliche Grundlage bei der Formulierung von Materialgesetzen. Für die Berechnung von Verzerrungen muss zuerst die Starrkörperrotation vom Deformationsgradienten abgespalten werden. Durch diese Vorgehensweise erlangt man über den Deformationsgradienten einen Zugang zu verschiedenen Verzerrungstensoren, die für die Formulierung von Materialgleichungen verwendet werden können [2].

Durch die polare Zerlegung des Deformationsgradienten werden die lokalen Anteile der Starrkörperrotation von der Verzerrung separiert:

$$F_{ij} = R_{ik} U_{kj} = V_{ik} R_{kj}, \quad (3.11)$$

wobei  $R_{ik}$  in Gl. (3.11) ein eigentlich orthogonaler Drehtensor ist und  $U_{kj}$  sowie  $V_{ik}$  den rechten sowie linken Strecktensor beschreiben [2, 15, 127].<sup>14</sup> Aus Gl. (3.11) geht ferner hervor, dass die Reihenfolge von Drehung und Streckung bzw. Stauchung keine Rolle spielt. Nach z. B. ALTENBACH [2] gilt für den linken bzw. rechten Strecktensor:

$$U_{ij} = (F_{ki} F_{kj})^{1/2}, \quad V_{ij} = (F_{ik} F_{jk})^{1/2}. \quad (3.12)$$

Auch die in den Gln. (3.11) und (3.12) eingeführten Strecktensoren sind als Maß für die Gestaltänderung ungeeignet, da deren Berechnung irrationale mathematische Operationen erfordert [2]. Gl. (3.12) legt nahe, dass es sinnvoller ist, nicht von einer Transformation des Linienelementes sondern von dessen Quadraten auszugehen. Für die LAGRANGESche Darstellung folgt mit Gl. (3.7):

$$dx_i dx_i = F_{ij} F_{ik} dX_j dX_k = C_{jk} dX_j dX_k, \quad (3.13)$$

wobei  $C_{jk}$  den rechten CAUCHY - GREEN - Tensor bezeichnet. Analog dazu folgt mit Gl. (3.9) für die EULERSche Darstellung:

$$dX_i dX_i = F_{ij}^{-1} F_{ik}^{-1} dx_j dx_k = b_{jk}^{-1} dx_j dx_k, \quad (3.14)$$

mit dem inversen linken CAUCHY - GREEN - Tensor oder CAUCHYSchen Deformationstensor  $b_{jk}^{-1}$ . Als Verzerrungsmaß sind die in den Gln. (3.13) und (3.14) eingeführten Tensoren dennoch nur bedingt geeignet, da diese dem Einheitstensor entsprechen, wenn der Deformationsgradient dem Einheitstensor ( $dx_i = dX_i$ ) oder bei einer reinen Starrkörperrotation dem Drehtensor  $\Omega_{ij}$  entspricht. Insbesondere bei der Entwicklung von Konstitutivgleichungen ist es sinnvoll ein Verzerrungsmaß einzuführen, das für die Referenzkonfiguration und für reine Starrkörperbewegungen verschwindet [2]. Nach z. B. [2, 107] folgt ein solches Verzerrungsmaß allgemein aus der Differenz der quadratischen Linienelemente zwischen Momentan- und Re-

<sup>14</sup>Für den eigentlich orthogonalen Tensor gilt:  $R_{ki} R_{kj} = \delta_{ij}$ , sowie  $\det R_{kj} = +1$ . Bei den Strecktensoren handelt es sich um symmetrische, positiv definite Tensoren, d. h.

$$U_{ij} = U_{ji}, \quad V_{ij} = V_{ji}, \quad U_{ij} a_j a_i > 0, \quad V_{ij} b_j b_i > 0.$$

Bei  $a_i$ ,  $b_i$  handelt es sich um von Null verschiedene Vektoren.

ferenzkonfiguration. Für die LAGRANGESche Darstellung folgt mit

$$\begin{aligned} ds^2 - dS^2 &= (C_{ij} - \delta_{ij}) dX_i dX_j \\ &= 2 E_{ij} dX_i dX_j \end{aligned} \quad (3.15)$$

der LAGRANGE - GREENSche Verzerrungstensor

$$E_{ij} = \frac{1}{2} (C_{ij} - \delta_{ij}). \quad (3.16)$$

Für die EULERSche Darstellung gilt unter Verwendung von Gl. (3.14)

$$\begin{aligned} ds^2 - dS^2 &= (\delta_{ij} - b_{ij}^{-1}) dx_i dx_j \\ &= 2 e_{ij} dx_i dx_j, \end{aligned} \quad (3.17)$$

für den EULER - ALMANSischen Verzerrungstensor

$$e_{ij} = \frac{1}{2} (\delta_{ij} - b_{ij}^{-1}). \quad (3.18)$$

Der in den Gln. (3.15) und (3.17) eingeführte Faktor 2 erscheint zunächst unmotiviert, ist aber für die Erfüllung des Grenzfalles infinitesimaler Verzerrungen notwendig [127]. In diesem Fall gehen die Verzerrungstensoren nach den Gln. (3.16) und (3.18) in den CAUCHYSchen Verzerrungstensor

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} (u_{i,j} + u_{j,i}) \quad (3.19)$$

über. Aus Gl. (3.19) wird deutlich, dass es im Grenzfall keinen Unterschied zwischen den Ableitungen der Verschiebung nach der Referenzkonfiguration bzw. Momentankonfiguration gibt [107].

## 3.2 Grundlagen der Dynamik und Elektrodynamik des Kontinuums

Während in der klassischen Mechanik die Differentialgleichungen zur Beschreibung von Anfangsrandwertaufgaben aus den NEWTONSchen Axiomen und wenigen einfachen Prinzipien abgeleitet werden, basieren in der Elektrodynamik die elementaren Gesetzmäßigkeiten sowie alle elektromagnetischen Erscheinungen auf den MAXWELL - Gleichungen [87, 131]. Das FARADAYSche Induktionsgesetz lautet in integraler Form:

$$\frac{d}{dt} \int_A B_i n_i dA = - \oint_S E_k t_k dS. \quad (3.20)$$

Dabei bezeichnet  $B_i$  die magnetische Flussdichte,  $E_k$  die elektrische Feldstärke,  $n_i dA$  ein infinitesimales Flächenelement mit dem Normaleneinheitsvektor  $n_i$  und  $t_k dS$  ein infinitesimales, geschlossenes, Linienelement auf der Fläche  $A$  mit der Ein-

heitstangente  $t_k$ . Das FARADAYSche Induktionsgesetz (3.20) besagt, dass eine zeitliche Änderung des magnetischen Flusses ein elektrisches Wirbelfeld erzeugt. Das auf der rechten Gleichungsseite eingeführte negative Vorzeichen trägt der LENZschen Regel Rechnung, die besagt, dass eine Änderung des magnetischen Flusses durch eine Leiterschleife eine Spannung hervorruft, sodass dadurch der Stromfluss ein Magnetfeld erzeugt, welches der Änderung des magnetischen Flusses entgegenwirkt. Die integrale Form des AMPERESchen Durchflussgesetzes ist gegeben durch:

$$\int_A \left( \frac{\partial D_i}{\partial t} + j_i \right) n_i \, dA = \oint_S H_k t_k \, dS. \quad (3.21)$$

In Gl. (3.21) beschreibt  $D_i$  die dielektrische Verschiebung,  $j_i$  die Stromdichte und  $H_k$  die magnetische Feldstärke. Das AMPERESche Durchflussgesetz Gl. (3.21) besagt, dass eine zeitliche Änderung des elektrischen Flusses ein magnetisches Wirbelfeld erzeugt.

Nachfolgend wird von dem Sonderfall geschlossener Flächen ausgegangen.<sup>15</sup> In diesem Fall entarten die Randkurven in den Gln. (3.20) und (3.21) zu einem Punkt. Die Oberflächenintegrale hingegen bleiben von der Annahme dieses Sonderfalls unberührt. Die zeitliche Integration der Gln. (3.20) und (3.21) führt dann auf folgende Beziehungen:

$$\int_A B_i n_i \, dA = \text{const} = 0, \quad (3.22)$$

$$\int_A D_i n_i \, dA = - \int_A j_i n_i \, dA \, dt. \quad (3.23)$$

Die Integrationskonstanten wurden zu Null gewählt, um den Sonderfall eines verschwindenden magnetischen Flusses abbilden zu können. Aus Gl. (3.22) geht die Erhaltung des magnetischen Flusses hervor. Die Kontinuitätsgleichung der Elektrizität

$$\frac{dQ}{dt} + \int_A j_i n_i \, dA = 0 \quad (3.24)$$

beschreibt das Prinzip der Erhaltung der elektrischen Ladung und besagt, dass sich in einem beliebigen Volumen  $V$  die Ladung  $Q$  nur durch einen Zu- oder Abfluss eines Stroms über die Oberfläche  $A$  des Volumens ändern kann [93]. Die zeitliche Integration von Gl. (3.24) und einsetzen in Gl. (3.23) führt auf das COULOMBSche

<sup>15</sup>Hinsichtlich der Begrifflichkeit geschlossener Flächen soll zum Ausdruck gebracht werden, dass ausschließlich Flächen ohne Rand betrachtet werden. Einfache Beispiele geschlossener Flächen sind eine Kugel oder ein Torus. Bei der Mantelfläche eines Zylinders hingegen handelt es sich um eine Fläche mit Rand.

Gesetz in integraler Form:

$$\begin{aligned} \int_A D_i n_i \, dA &= Q \\ &= \int_V \omega_V \, dV, \end{aligned} \quad (3.25)$$

mit der volumenspezifischen Ladungsdichte  $\omega_V$ . Einsetzen des COULOMBSchen Gesetzes (3.25) in die Kontinuitätsgleichung der Elektrizität (3.24) und Anwendung des GAUSSSchen Integralsatzes auf den Oberflächenterm in Gl. (3.24) führt auf die Kontinuitätsgleichung der Ladung in differentieller Form:

$$\frac{\partial \omega_V}{\partial t} + \omega_V v_{i,i} = 0, \quad (3.26)$$

wobei durch Einführung des Geschwindigkeitsvektors des Ladungstransportes  $v_i$  für die Stromdichte der Zusammenhang  $j_i = \omega_V v_i$  gilt. Wird in Gl. (3.26) die spezifische Volumenladungsdichte  $\omega_V$  durch die Massendichte  $\rho$  ersetzt, so entspricht Gl. (3.26) der Kontinuitätsgleichung der Strömungsmechanik, welche besagt, dass die Masse eines Körpers, so keine Massenquellen oder -senken vorhanden sind, zeitlich konstant bleibt [138, 148].

Die Anwendung des Integralsatzes von STOKES auf die rechten Seiten der Gln. (3.20) und (3.21) führt die Rotation eines Vektorfeldes ein und führt auf die MAXWELL - Gleichungen:

$$\frac{\partial B_i}{\partial t} = -\varepsilon_{ijk} E_{k,j}, \quad (3.27)$$

$$\frac{\partial D_i}{\partial t} + j_i = \varepsilon_{ijk} H_{k,j}. \quad (3.28)$$

In den Gln. (3.27) und (3.28) bezeichnet  $\varepsilon_{ijk}$  den LEVI - CIVITA - Tensor, welcher folgende Eigenschaften hat:

$$\varepsilon_{ijk} = \begin{cases} 1, & \text{für } i, j, k \text{ gerade Permutation: } 1,2,3, 2,3,1, 3,1,2. \\ -1, & \text{für } i, j, k \text{ ungerade Permutation: } 3,2,1, 2,1,3, 1,3,2. \\ 0, & \text{für } i, j, k \text{ keine Permutation: } 1,1,2, 2,1,2, \dots \end{cases} \quad (3.29)$$

Mit dem GAUSSSchen Integralsatz können die Gln. (3.22) und (3.25) ebenfalls in differentieller Form angeschrieben werden:

$$B_{i,i} = 0, \quad (3.30)$$

$$D_{i,i} = \omega_V. \quad (3.31)$$

Den Gln. (3.27) und (3.28) sowie (3.30) und (3.31) können grundlegende Eigenschaften der Elektrizität und des Magnetismus entnommen werden: Gl. (3.27) besagt, dass ein instationäres magnetisches Feld ein elektrisches Wirbelfeld hervorruft, während Gl. (3.28) besagt, dass ein zeitlich veränderliches elektrisches Feld oder Ladungstransport zu einem magnetischen Wirbelfeld führt. Nach Gl. (3.30)

sind magnetische Felder quellfrei, d. h. die Feldlinien sind in sich geschlossen und es existieren keine magnetischen Elementarladungen. Für elektrische Felder besagt Gl. (3.31), dass aufgrund positiver und negativer Ladungen Quellen und Senken in einem elektrischen Feld bestehen können.

Im Rahmen elektrostatischer Fragestellungen können die MAXWELLSchen Gleichungen vereinfacht werden. In diesem Fall wird  $\partial B_i/\partial t = 0$ ,  $\partial D_i/\partial t = 0$  angenommen. Diese Annahme ist dann berechtigt, wenn man die Wellennatur des Elektromagnetismus und Induktionseffekte infolge hinreichend kleiner Frequenzen oder Änderungsgeschwindigkeiten vernachlässigen kann. Änderungen des elektrischen oder magnetischen Feldes wirken sich dann unmittelbar auf jeden Punkt des gesamten Systems aus [33]. Beschränkt man sich auf die Betrachtung von Dielektrika, wo keine freien Ladungen existieren, gilt  $\omega_V = 0$  und  $j_i = 0$ . Somit vereinfachen sich die Gln. (3.27) und (3.28) sowie (3.30) und (3.31) zu:

$$\varepsilon_{ijk} E_{k,j} = 0, \quad (3.32)$$

$$\varepsilon_{ijk} H_{k,j} = 0, \quad (3.33)$$

$$B_{i,i} = 0, \quad (3.34)$$

$$D_{i,i} = 0. \quad (3.35)$$

Aus den Gln. (3.32) und (3.33) geht hervor, dass elektrische bzw. magnetische Feldlinien in der Elektro- bzw. Magnetostatik wirbelfrei sind und somit einen Anfang sowie ein Ende besitzen. Damit wird die Anforderung für elektrische und magnetische Potentiale  $\varphi^{\text{el}}$  und  $\varphi^{\text{mag}}$  erfüllt. Für die Zusammenhänge zwischen elektrischem Potential und elektrischer Feldstärke bzw. magnetischem Potential und magnetischer Feldstärke gilt:

$$E_k = -\varphi_{,k}^{\text{el}}, \quad (3.36)$$

$$H_k = -\varphi_{,k}^{\text{mag}}. \quad (3.37)$$

Die Gln. (3.32) und (3.33) gelten dann trivialerweise da  $\varepsilon_{ijk}\varphi_{,kj} = 0$  und zur Beschreibung von Randwertproblemen verbleiben die Gln. (3.34) und (3.35). Diese sind nicht miteinander gekoppelt, d. h. in der Elektromagnetostatik sind elektrische und magnetische Felder im allgemeinen unabhängig. Die Gln. (3.34) und (3.35) müssen zu deren Lösung durch konstitutive Beziehungen für  $E_i$  und  $D_i$  bzw.  $H_i$  und  $B_i$  ergänzt werden. Werden elektrische Feldstärke  $E_i$  und magnetische Feldstärke  $H_i$  als unabhängige Variablen gewählt, so gilt für dielektrische Verschiebung und magnetische Flussdichte:

$$D_i(E_i) = \kappa_0 E_i + P_i(E_j), \quad (3.38)$$

$$B_i(H_i) = \mu_0 H_i + M_i(H_j), \quad (3.39)$$

mit der dielektrischen  $\kappa_0$  bzw. magnetischen Feldkonstante  $\mu_0$  des Vakuums. Der jeweils zweite Term in den Gln. (3.38) und (3.39) berücksichtigt die Polarisation eines materiellen Dielektrikums, s. Gl. (2.1), bzw. die Magnetisierung eines magne-

tisierbaren Körpers. Für die Magnetisierung gilt dabei:

$$M_i(H_j) = \mu_0 \chi_{ij}^{\text{mag}} H_j, \quad (3.40)$$

wobei  $\chi_{ij}^{\text{mag}}$  die magnetische Suszeptibilität beschreibt. Ausgehend von einem anisotropen Materialverhalten gilt mit den Gln. (2.1) und (3.40) für die dielektrische Verschiebung (3.38) sowie die magnetische Induktion (3.39):

$$D_i(E_j) = \kappa_0 \left( \delta_{ij} + \chi_{ij}^{\text{el}} \right) E_j = \kappa_{ij} E_j, \quad (3.41)$$

$$B_i(H_j) = \mu_0 \left( \delta_{ij} + \chi_{ij}^{\text{mag}} \right) H_j = \mu_{ij} H_j. \quad (3.42)$$

Das in den Gln. (3.41) und (3.42) eingeführte KRONECKER - Delta  $\delta_{ij}$  entspricht dem Einheitstensor. Einsetzen von Gl. (3.41) in Gl. (3.35) und Gl. (3.42) in Gl. (3.34) führt in Verbindung mit den Gln. (3.36) und (3.37) zu eindeutig lösbaren Differentialgleichungen zur Bestimmung der elektrischen und magnetischen Potentiale  $\varphi^{\text{el}}$  und  $\varphi^{\text{mag}}$ . Für den Sonderfall isotroper homogener Körper, d. h.  $\kappa_{ij} = \kappa \delta_{ij}$  und  $\mu_{ij} = \mu \delta_{ij}$ , mit  $\kappa, \mu \neq f(x_i)$ , liefern die Gln. (3.34) und (3.35) jeweils eine LAPLACE - Gleichung für die Potentiale, d. h.  $\varphi_{,ii}^{\text{el}} = 0$  und  $\varphi_{,ii}^{\text{mag}} = 0$ .

Damit ein betrachteter Körper im Gleichgewicht ist, müssen an einem infinitesimalen Volumenelement  $dV$  sowohl die Summe aller Kräfte als auch die Summe aller Momente auf den Nullvektor führen. Das dynamische Kräftegleichgewicht folgt aus dem zweiten NEWTONSchen Axiom:

$$\frac{D}{Dt} \int_V \rho v_i dV = \int_A t_i dA + \int_V \rho b_i dV. \quad (3.43)$$

Gl. (3.43) besagt, dass die materielle Zeitableitung der Gesamtheit aller Impulse  $dp_i = \rho v_i dV$  gleich der Summe aller auf den Körper wirkenden Oberflächen- und Volumenkräfte ist, s. z. B. [54, 138]. Das CAUCHYSche Fundamentaltheorem führt den Zusammenhang zwischen dem Spannungsvektor  $t_i$  und dem CAUCHYSchen Spannungstensor  $\sigma_{ij}$  ein [2, 58]:

$$\begin{aligned} t_i &= \sigma_{ji} n_i \\ &= \sigma_{ij} n_i. \end{aligned} \quad (3.44)$$

Die betrachtete Schnittebene in Gl. (3.44) wird festgelegt durch den Normalenvektor  $n_i$ . Aus dem Drehimpulserhaltungssatz, welcher besagt, dass die materielle Zeitableitung des Gesamtdrehimpulses eines Körpers gleich der Summe aller auf den Körper wirkenden Momente ist, folgt unter Berücksichtigung von Gl. (3.43) die Symmetrie des CAUCHYSchen Spannungstensors, d. h.  $\sigma_{ij} = \sigma_{ji}$ . Wird der GAUSSsche Integralsatz auf Gl. (3.43) angewendet, so folgt die differentielle Form des Impulssatzes:

$$\frac{D}{Dt} (\rho v_i) = \sigma_{ij,j} + \rho b_i. \quad (3.45)$$

Ferner kann in der linearen Elastodynamik der konvektive Anteil der materiellen Zeitableitung vernachlässigt werden. In diesem Fall sind die LAGRANGESche

und EULERSche Darstellung identisch. Da in dieser Arbeit ausschließlich dichtebeständige Festkörper betrachtet werden, folgt aus Gl. (3.45) die CAUCHYSche Bewegungsgleichung:

$$\rho \ddot{u}_i = \sigma_{ij,j} + \rho b_i. \quad (3.46)$$

Gl. (3.46) gilt unabhängig vom Material des betrachteten Körpers. Eine Materialabhängigkeit erfolgt über eine konstitutive Beziehung welche die Spannung  $\sigma_{ij}$  mit der Verzerrung  $\varepsilon_{ij}$  verknüpft. Für rein linear elastisches Materialverhalten gilt das verallgemeinerte HOOKESche Gesetz:

$$\sigma_{ij}(\varepsilon_{kl}) = C_{ijkl} \varepsilon_{kl}, \quad (3.47)$$

mit dem vierstufigen Elastizitätstensor  $C_{ijkl}$ . Aufgrund der Symmetrieeigenschaften von Spannungs- und Verzerrungstensor und dem BETTischen Reziprozitätstheorem verfügt der Elastizitätstensor maximal über 21 unabhängige Materialkonstanten [131]. Über wie viele unabhängige Materialkonstanten der Elastizitätstensor tatsächlich verfügt, ist abhängig vom Grad der Anisotropie des Materials. In Verbindung mit dem HOOKESchen Gesetz (3.47) und der kinematischen Beziehung Gl. (3.19) liefert Gl. (3.46) ein eindeutig lösbares Gleichungssystem zur Berechnung des Verschiebungsvektors  $u_i$ .

### 3.3 Thermodynamische Grundlagen multiferroischer Materialien

Der erste Hauptsatz der Thermodynamik

$$\dot{U} + \dot{T} = \dot{W} + \dot{Q} \quad (3.48)$$

besagt, dass die zeitliche Änderung der Gesamtenergie eines Systems gleich der Summe der am System verrichteten Leistung  $\dot{W}$  und dem Wärmestrom  $\dot{Q}$  ist [6, 149]. Die Gesamtenergie des Systems setzt sich aus der inneren Energie  $U$  sowie der kinetischen Energie  $T$  zusammen. Für deren zeitliche Ableitungen gilt bei konstantem Volumen  $V$ :

$$\dot{U} = \int_V \dot{u} \, dV, \quad (3.49)$$

$$\dot{T} = \int_V \rho \ddot{u}_i \dot{u}_i \, dV, \quad (3.50)$$

wobei  $\dot{u}$  in Gl. (3.49) die zeitliche Änderung der spezifischen inneren Energie bezeichnet. Für ein magnetoelktromechanisches Problem setzt sich die verrichtete Leistung additiv aus der mechanischen  $\dot{W}^{\text{mech}}$

$$\dot{W}^{\text{mech}} = \int_{S_i} t_i \dot{u}_i \, dS, \quad (3.51)$$

der elektrischen  $\dot{W}^{\text{el}}$

$$\dot{W}^{\text{el}} = \int_{S_\omega} \dot{\omega}_S^{\text{el}} \varphi^{\text{el}} dS, \quad (3.52)$$

der magnetischen  $\dot{W}^{\text{mag}}$

$$\dot{W}^{\text{mag}} = \int_{S_\omega} \dot{\omega}_S^{\text{mag}} \varphi^{\text{mag}} dS \quad (3.53)$$

und der dissipativen Arbeit  $\dot{W}^{\text{diss}}$

$$\dot{W}^{\text{diss}} = \int_V \left( \sigma_{ij} \dot{\varepsilon}_{ij}^{\text{irr}} + E_i \dot{P}_i^{\text{irr}} + H_i \dot{M}_i^{\text{irr}} \right) dV \quad (3.54)$$

zusammen. In den Gln. (3.52) und (3.53) bezeichnen

$$\omega_S^{\text{el}} = -D_i n_i \quad (3.55)$$

die spezifische Ladung und

$$\omega_S^{\text{mag}} = -B_i n_i \quad (3.56)$$

die magnetische Flussdichte durch die Berandung. Die Gln. (3.55) und (3.56) stellen, in Analogie zum Spannungsvektor  $t_i$ , Gl. (3.44), den elektrischen und magnetischen Beitrag entlang der NEUMANNschen Ränder  $S_{\omega^{\text{el}}}$  und  $S_{\omega^{\text{mag}}}$  dar. Die Größen  $\dot{\varepsilon}_{ij}^{\text{irr}}$ ,  $\dot{P}_i^{\text{irr}}$  und  $\dot{M}_i^{\text{irr}}$  in Gl. (3.54) beschreiben die zeitlichen Änderungen der irreversiblen Verzerrung, Polarisierung und Magnetisierung als Resultat der Domänenwandverschiebung. Gl. (3.54) vernachlässigt sowohl dissipative Effekte, welche mit linearen Größen einhergehen, als auch Änderungen der Materialeigenschaften, s. hierzu z. B. [33, 78]. Dies wird dadurch begründet, dass die Effekte aus den hier vernachlässigten Termen klein gegenüber denen in Gl. (3.54) sind. Der Wärmestrom  $\dot{Q}$  ist gegeben durch

$$\dot{Q} = \int_V \rho r dV - \int_{S_q} q_i n_i dS, \quad (3.57)$$

mit der Wärmequelle  $r$  innerhalb des Volumens  $V$  sowie der Wärmestromdichte  $q_i$  über den Rand  $S_q$ . Einsetzen der Gln. (3.49) bis (3.57) in Gl. (3.48) führt unter Berücksichtigung der Gln. (3.44), (3.55) und (3.56) sowie dem GAUSSschen Integralsatz auf die lokale Formulierung der Energiebilanz:

$$\begin{aligned} \dot{u} + \rho \dot{u}_i \dot{u}_i &= \sigma_{ij} \dot{\varepsilon}_{ij}^{\text{irr}} + E_i \dot{P}_i^{\text{irr}} + H_i \dot{M}_i^{\text{irr}} + \rho r + (\sigma_{ij} \dot{u}_i)_{,j} + (-\dot{D}_i \varphi^{\text{el}})_{,i} + \\ &+ (-\dot{B}_i \varphi^{\text{mag}})_{,i} - q_{i,i}. \end{aligned} \quad (3.58)$$



Die Ausführung der Divergenzoperatoren auf der rechten Seite in Gl. (3.58) führt zu:

$$\begin{aligned} \dot{u} + \rho \ddot{u}_i \dot{u}_i &= \sigma_{ij} \dot{\varepsilon}_{ij}^{\text{irr}} + E_i \dot{P}_i^{\text{irr}} + H_i \dot{M}_i^{\text{irr}} + \rho r + \sigma_{ij,j} \dot{u}_i + \sigma_{ij} \dot{u}_{i,j} - \dot{D}_{i,i} \varphi^{\text{el}} - \\ &\quad - \dot{D}_i \varphi_{,i}^{\text{el}} - \dot{B}_{i,i} \varphi^{\text{mag}} - \dot{B}_m \varphi_{,i}^{\text{mag}} - q_{i,i}. \end{aligned} \quad (3.59)$$

Bei dem Verschiebungsgradienten  $u_{i,j}$  in Gl. (3.59) handelt es sich im Allgemeinen um einen unsymmetrischen Tensor zweiter Stufe. Somit kann dieser additiv in einen symmetrischen und einen schiefsymmetrischen Anteil zerlegt werden. Da hier ausschließlich kleine Deformationen betrachtet werden, gilt für die zeitliche Ableitung des Verschiebungsgradienten:

$$\dot{u}_{i,j} = \dot{\varepsilon}_{ij} + \dot{\Omega}_{ij}. \quad (3.60)$$

Dabei bezeichnen  $\dot{\varepsilon}_{ij} = \dot{\varepsilon}_{ji}$  die symmetrische Verzerrungsgeschwindigkeit und  $\dot{\Omega}_{ij} = -\dot{\Omega}_{ji}$  die schiefsymmetrische Drehgeschwindigkeit, s. z. B. [21]. Wird Gl. (3.60) in das doppeltskalare Produkt  $\sigma_{ij} \dot{u}_{i,j}$  eingesetzt, so folgt

$$\begin{aligned} \sigma_{ij} \dot{u}_{i,j} &= \sigma_{ij} (\dot{\varepsilon}_{ij} + \dot{\Omega}_{ij}) \\ &= \sigma_{ij} \dot{\varepsilon}_{ij}, \end{aligned} \quad (3.61)$$

da das doppeltskalare Produkt eines symmetrischen und eines schiefsymmetrischen Tensors identisch Null ist. Da auch aus mechanischer Sicht ausschließlich statische Probleme betrachtet und ferner Volumenkräfte vernachlässigt werden, vereinfacht sich die CAUCHYSche Bewegungsgleichung (3.46) zu  $\sigma_{ij,j} = 0$ . Unter Berücksichtigung dieser Annahmen sowie den Gln. (3.34), (3.35), (3.36), (3.37) und (3.61) folgt für die lokale Formulierung der Energiebilanz:

$$\dot{u} = \sigma_{ij} \underbrace{(\dot{\varepsilon}_{ij}^{\text{rev}} + \dot{\varepsilon}_{ij}^{\text{irr}})}_{\dot{\varepsilon}_{ij}} + E_i \underbrace{(\dot{D}_i^{\text{rev}} + \dot{P}_i^{\text{irr}})}_{\dot{D}_i} + H_i \underbrace{(\dot{B}_i^{\text{rev}} + \dot{M}_i^{\text{irr}})}_{\dot{B}_i} + \rho r - q_{i,i}. \quad (3.62)$$

In Gl. (3.62) wird die additive Aufteilung von Verzerrung, dielektrischer Verschiebung sowie magnetischer Induktion in reversible und irreversible Terme deutlich.

Die Formulierung eines thermodynamisch konsistenten Evolutionsgesetzes zur Beschreibung der Domänenwandverschiebungen erfordert die Erfüllung des zweiten Hauptsatzes der Thermodynamik, s. z. B. [6, 128]:

$$\theta \dot{s} + q_{i,i} - \frac{q_i}{\theta} \theta_{,i} - \rho r \geq 0, \quad (3.63)$$

wobei  $s$  die volumenspezifische Entropie bezeichnet. Einsetzen von Gl. (3.62) in den zweiten Hauptsatz der Thermodynamik (3.63) führt zu der generalisierten CLAUSIUS - DUHEM - Ungleichung:

$$\begin{aligned} 0 \leq & -(\dot{u} - \theta \dot{s}) + \sigma_{ij} (\dot{\varepsilon}_{ij}^{\text{rev}} + \dot{\varepsilon}_{ij}^{\text{irr}}) + E_r (\dot{D}_r^{\text{rev}} + \dot{P}_r^{\text{irr}}) + \\ & + H_m (\dot{B}_m^{\text{rev}} + \dot{M}_m^{\text{irr}}) - \frac{q_i}{\theta} \theta_{,i}. \end{aligned} \quad (3.64)$$

Für ein lineares elektroelastisches Problem, d. h.  $\dot{\varepsilon}_{ij}^{\text{irr}} = \dot{P}_i^{\text{irr}} = \dot{M}_i^{\text{irr}} = 0$ , gilt, dass die CLAUSIUS - DUHEM - Ungleichung für  $-q_i\theta_{,i}/\theta \geq 0$  erfüllt wird, was bereits PARTON und KUDRYAVTSEV [128] gezeigt haben.<sup>16</sup> Wärmestromdichte  $q_l$  und -quellen  $r$  werden nachfolgend vernachlässigt, sodass für die CLAUSIUS - DUHEM - Ungleichung eines nichtlinearen magnetoelektromechanischen Problems

$$\sigma_{ij}\dot{\varepsilon}_{ij}^{\text{irr}} + E_i\dot{P}_i^{\text{irr}} + H_i\dot{M}_i^{\text{irr}} \geq 0 \quad (3.65)$$

gilt. In Kapitel 5 erfolgt die Entwicklung eines thermodynamisch konsistenten Evolutionsgesetzes zur Beschreibung von Domänenwandverschiebungen. Dort wird Gl. (3.65) zum Nachweis der thermodynamischen Konsistenz erneut aufgegriffen.

Unter Berücksichtigung der Annahmen  $q_i, r = 0$  vereinfacht sich Gl. (3.62) zu

$$\dot{u} = \sigma_{ij}\dot{\varepsilon}_{ij} + E_i\dot{D}_i + H_i\dot{B}_i, \quad (3.66)$$

wobei die unabhängigen Variablen durch die totale Verzerrung  $\varepsilon_{ij}$ , die totale dielektrische Verschiebung  $D_i$  sowie die totale magnetische Induktion  $B_i$  gegeben sind. Aus technischer Sicht ist bei experimentellen Untersuchungen das Anlegen eines elektrischen Potentials  $\varphi^{\text{el}}$ , gegenüber der Vorgabe einer Oberflächenladung, einfacher umzusetzen. Entsprechendes gilt für das magnetische Potential  $\varphi^{\text{mag}}$ . Somit sollten die veränderlichen Größen  $D_i$  und  $B_i$  durch die elektrische und magnetische Feldstärke  $E_i$  und  $H_i$  ersetzt werden. Dies entspricht der Überführung in ein anderes thermodynamisches Potential und wird durch eine zweifache LEGENDRE - Transformation realisiert [149]. Mit

$$\begin{aligned} \Psi(\varepsilon_{ij}, E_i, H_i) &= u(\varepsilon_{ij}, D_i, B_i) - \frac{\partial u(\varepsilon_{ij}, D_i, B_i)}{\partial D_i} D_i - \\ &\quad - \frac{\partial u(\varepsilon_{ij}, D_i, B_i)}{\partial B_i} B_i \end{aligned} \quad (3.67)$$

folgt ein thermodynamisches Potential mit den unabhängigen Größen  $\varepsilon_{ij}$ ,  $E_i$  sowie  $H_i$ . Werden die partiellen Ableitungen  $\partial u/\partial D_i = E_i$  und  $\partial u/\partial B_i = H_i$  sowie Gl. (3.66) in die nach  $t$  abgeleitete Gl. (3.67) eingesetzt, ergibt sich für die zeitliche Änderung des thermodynamischen Potentials  $\Psi$ :

$$\dot{\Psi}(\dot{\varepsilon}_{ij}, \dot{E}_i, \dot{H}_i) = \sigma_{ij}\dot{\varepsilon}_{ij} - D_i\dot{E}_i - B_i\dot{H}_i. \quad (3.68)$$

Der Übersichtlichkeit wegen wird nachfolgend wieder auf die explizite Darstellung der unabhängigen Größen auf der linken Seite der Gleichung verzichtet. Aus dem totalen Differential des thermodynamischen Potentials  $\Psi$

$$d\Psi = \left. \frac{\partial \Psi}{\partial \varepsilon_{ij}} \right|_{E_k, H_l} d\varepsilon_{ij} + \left. \frac{\partial \Psi}{\partial E_k} \right|_{\varepsilon_{ij}, H_l} dE_k + \left. \frac{\partial \Psi}{\partial H_l} \right|_{\varepsilon_{ij}, E_k} dH_l \quad (3.69)$$

folgen nach Division durch  $dt$  und durch Koeffizientenvergleich mit Gl. (3.68) die

<sup>16</sup>Erweiterungen auf nichtlineare ferroelektrische bzw. ferromagnetische Materialien sind in [4, 90] zu finden.

Beziehungen

$$\sigma_{ij} = \left. \frac{\partial \Psi}{\partial \varepsilon_{ij}} \right|_{E_k, H_l}, \quad D_k = - \left. \frac{\partial \Psi}{\partial E_k} \right|_{\varepsilon_{ij}, H_l}, \quad B_l = - \left. \frac{\partial \Psi}{\partial H_l} \right|_{\varepsilon_{ij}, E_k}, \quad (3.70)$$

welche die assoziierten Größen Spannung  $\sigma_{ij}$ , dielektrische Verschiebung  $D_k$  und magnetische Induktion  $B_l$  einführen. Werden ferner die totalen Differentiale dieser Größen betrachtet, so ergeben sich daraus die inkrementellen konstitutiven Gleichungen für ein magnetoelktromechanisches Problem in der allgemeinen Form:

$$d\sigma_{ij} = \left. \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial \varepsilon_{kl}} \right|_{E_m, H_n} d\varepsilon_{kl} + \left. \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial E_m} \right|_{\varepsilon_{kl}, H_n} dE_m + \left. \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial H_n} \right|_{\varepsilon_{kl}, E_m} dH_n, \quad (3.71)$$

$$dD_i = \left. \frac{\partial D_i}{\partial \varepsilon_{kl}} \right|_{E_j, H_m} d\varepsilon_{kl} + \left. \frac{\partial D_i}{\partial E_j} \right|_{\varepsilon_{kl}, H_m} dE_j + \left. \frac{\partial D_i}{\partial H_m} \right|_{\varepsilon_{kl}, E_j} dH_m, \quad (3.72)$$

$$dB_i = \left. \frac{\partial B_i}{\partial \varepsilon_{kl}} \right|_{E_j, H_m} d\varepsilon_{kl} + \left. \frac{\partial B_i}{\partial E_j} \right|_{\varepsilon_{kl}, H_m} dE_j + \left. \frac{\partial B_i}{\partial H_m} \right|_{\varepsilon_{kl}, E_j} dH_m. \quad (3.73)$$

Die partiellen Ableitungen in den Gln. (3.71) bis (3.73) entsprechend den Materialtensoren auf welche nachfolgend eingegangen wird. Integration der Gln. (3.71) bis (3.73) liefert die konstitutiven Beziehungen für endliche Zustandsänderungen. Im Fall linearer Systeme sind die Materialtensoren konstant und die Integration führt mit  $d\sigma_{ij} \rightarrow \sigma_{ij}$ ,  $d\varepsilon_{kl} \rightarrow \varepsilon_{kl}$  etc. zu einem Satz linearer Zustandsgleichungen. Bei nichtlinearen Systemen sind die partiellen Ableitungen selbst Funktionen der unabhängigen Variablen und die Materialtensoren stellen somit lokale Tangenten an die nichtlinearen Funktionsverläufe dar.

Mit Gl. (3.70) folgen aus den Gln. (3.71) bis (3.73)

$$\left. \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial \varepsilon_{kl}} \right|_{E_n, H_m} = \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \varepsilon_{ij} \partial \varepsilon_{kl}} \right|_{E_n, H_m} = C_{ijkl}, \quad (3.74)$$

$$\left. \frac{\partial D_i}{\partial E_l} \right|_{\varepsilon_{mn}, H_m} = - \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial E_i \partial E_l} \right|_{\varepsilon_{mn}, H_m} = \kappa_{il}, \quad (3.75)$$

$$\left. \frac{\partial B_i}{\partial H_l} \right|_{\varepsilon_{mn}, E_n} = - \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial H_i \partial H_l} \right|_{\varepsilon_{mn}, E_n} = \mu_{il}, \quad (3.76)$$

die elastischen ( $C_{ijkl}$ ) und dielektrischen ( $\kappa_{il}$ ) Materialeigenschaften sowie die magnetische Permeabilität ( $\mu_{il}$ ). Diese Tensoren wurden bereits für entkoppelte Probleme in den Gln. (3.41), (3.42) und (3.47) eingeführt. Ferner gehen aus den

Gln. (3.70) bis (3.73) die Kopplungstensoren

$$\left. \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial E_l} \right|_{\varepsilon_{mn}, H_m} = \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \varepsilon_{ij} \partial E_l} \right|_{H_m} = e_{ijl}, \quad (3.77)$$

$$\left. \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial H_l} \right|_{\varepsilon_{mn}, E_r} = \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \varepsilon_{ij} \partial H_l} \right|_{E_r} = q_{ijl}, \quad (3.78)$$

$$\left. \frac{\partial D_l}{\partial \varepsilon_{ij}} \right|_{E_r, H_m} = - \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial E_l \partial \varepsilon_{ij}} \right|_{H_m} = -e_{lij}, \quad (3.79)$$

$$\left. \frac{\partial D_l}{\partial H_i} \right|_{\varepsilon_{mn}, E_r} = - \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial E_l \partial H_i} \right|_{\varepsilon_{mn}} = -g_{li}, \quad (3.80)$$

$$\left. \frac{\partial B_l}{\partial \varepsilon_{ij}} \right|_{E_r, H_m} = - \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial H_l \partial \varepsilon_{ij}} \right|_{E_r} = -q_{lij}, \quad (3.81)$$

$$\left. \frac{\partial B_l}{\partial E_i} \right|_{\varepsilon_{mn}, H_m} = - \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial H_l \partial E_i} \right|_{\varepsilon_{mn}} = -g_{li} \quad (3.82)$$

hervor. Dabei bezeichnet  $e_{ijl}$  den piezoelektrischen Tensor, welcher die Kopplung zwischen elektrischen und mechanischen Feldgrößen beschreibt. Der magnetostruktive Tensor  $q_{ijl}$  verknüpft mechanische und magnetische Feldgrößen. Eine Kopplung elektrischer und magnetischer Feldgrößen wird durch den magnetoelektrischen Tensor  $g_{li}$  beschrieben. Da die in den Gln. (3.74) bis (3.82) eingeführten Zustandsgrößen die Integrabilitätsbedingung<sup>17</sup>

$$\frac{\partial^2 \Psi(Z_1, Z_2)}{\partial Z_1 \partial Z_2} = \frac{\partial^2 \Psi(Z_1, Z_2)}{\partial Z_2 \partial Z_1} \quad (3.83)$$

erfüllen müssen, d. h. die Reihenfolge der Differentiationen nach den unabhängigen Variablen  $Z_1$  und  $Z_2$  darf vertauscht werden, können für die Kopplungstensoren folgende Aussagen getroffen werden:

$$e_{ijl} = \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \varepsilon_{ij} \partial E_l} \right|_{H_m} = \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial E_l \partial \varepsilon_{ij}} \right|_{H_m} = e_{lij}, \quad (3.84)$$

$$q_{ijl} = \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \varepsilon_{ij} \partial H_l} \right|_{E_r} = \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial H_l \partial \varepsilon_{ij}} \right|_{E_r} = q_{lij}, \quad (3.85)$$

$$g_{li} = \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial E_l \partial H_i} \right|_{\varepsilon_{mn}} = \left. \frac{\partial^2 \Psi}{\partial H_i \partial E_l} \right|_{\varepsilon_{mn}} = g_{il}. \quad (3.86)$$

Ferner folgen aus den Gln. (3.77) bis (3.83) die in der Thermodynamik als MAX-

<sup>17</sup>In der Mathematik wird die Integrabilitätsbedingung auch als Satz von SCHWARZ bezeichnet.

WELL - Beziehungen bekannten Zusammenhänge

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial E_k} = -\frac{\partial D_k}{\partial \varepsilon_{ij}}, \quad (3.87)$$

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial H_k} = -\frac{\partial B_k}{\partial \varepsilon_{ij}}, \quad (3.88)$$

$$\frac{\partial D_i}{\partial H_j} = \frac{\partial B_j}{\partial E_i}. \quad (3.89)$$

Diese eröffnen u. a. Alternativen bei der experimentellen Bestimmung von Koppelungskoeffizienten. Weiterhin folgt aus der Integrabilitätsbedingung Gl. (3.83) die Symmetrie des Elastizitätstensors  $C_{ijkl} = C_{klij}$ , des dielektrischen Tensors  $\kappa_{il}$  und der magnetischen Permeabilität  $\mu_{il}$ . Die Symmetrie des magnetoelektrischen Koppelungstensors  $g_{ij}$  kann Gl. (3.86) entnommen werden. Für den piezoelektrischen und magnetostriktiven Materialtensor gilt mit Gl. (3.83)  $e_{ijl} = e_{l ij}$  und  $q_{ijl} = q_{l ij}$ . Aufgrund der Symmetrieeigenschaften der CAUCHYSchen Spannungs- und Verzerrungstensoren gilt darüber hinaus:

$$C_{ijkl} = C_{jtkl} = C_{ijtk}, \quad (3.90)$$

$$e_{ijl} = e_{jil}, \quad (3.91)$$

$$q_{ijl} = q_{jil} \quad (3.92)$$

Im Rahmen dieser Arbeit wird das nichtlineare Verhalten ferroelektrischer, ferromagnetischer und multiferroischer Materialien untersucht. Somit ist nun ein thermodynamisches Potential  $\Psi$  als Funktion der unabhängigen Variablen  $\varepsilon_{ij}$ ,  $E_i$  und  $H_i$  zu formulieren, welches das konstitutive Verhalten dieser Materialien beschreibt:

$$\begin{aligned} \Psi(\varepsilon_{ij}, E_i, H_i) = & \frac{1}{2} C_{ijkl} \varepsilon_{kl} \varepsilon_{ij} - \frac{1}{2} \kappa_{ij} E_i E_j - \frac{1}{2} \mu_{ij} H_i H_j - e_{lij} E_l \varepsilon_{ij} - \\ & - q_{ij} H_l \varepsilon_{ij} - g_{ij} H_i E_j - C_{ijkl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \varepsilon_{ij} + e_{ikl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} E_i + \\ & + q_{ikl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} H_i - P_i^{\text{irr}} E_i - M_i^{\text{irr}} H_i. \end{aligned} \quad (3.93)$$

Wird nun Gl. (3.70) auf Gl. (3.93) angewandt, so folgen die konstitutiven Gleichungen für nichtlineares Verhalten ferroelektrischer, -magnetischer und multiferroischer Materialien:

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} (\varepsilon_{kl} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}}) - e_{lij} E_l - q_{ij} H_l, \quad (3.94)$$

$$D_i = e_{ikl} (\varepsilon_{kl} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}}) + \kappa_{il} E_l + g_{il} H_l + P_i^{\text{irr}}, \quad (3.95)$$

$$B_i = q_{ikl} (\varepsilon_{kl} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}}) + g_{il} E_l + \mu_{il} H_l + M_i^{\text{irr}}. \quad (3.96)$$

Die Nichtlinearitäten sind ursächlich in den Domänen- bzw. BLOCH - Wandverschiebungen verankert und finden sich wieder in  $\varepsilon_{kl}^{\text{irr}}$ ,  $P_i^{\text{irr}}$  und  $M_i^{\text{irr}}$  sowie in der Veränderung aller Materialtensoren in Folge dieser mikrostrukturellen Evolution. Werden in den Gln. (3.94) bis (3.96) die irreversiblen Größen  $\varepsilon_{kl}^{\text{irr}}$ ,  $P_i^{\text{irr}}$  und  $M_i^{\text{irr}}$  zu Null gesetzt, so folgen aus diesen die konstitutiven Gleichungen für den Sonderfall linearen Materialverhaltens wie sie z. B. in [5, 142] zu finden sind. Erfolgt

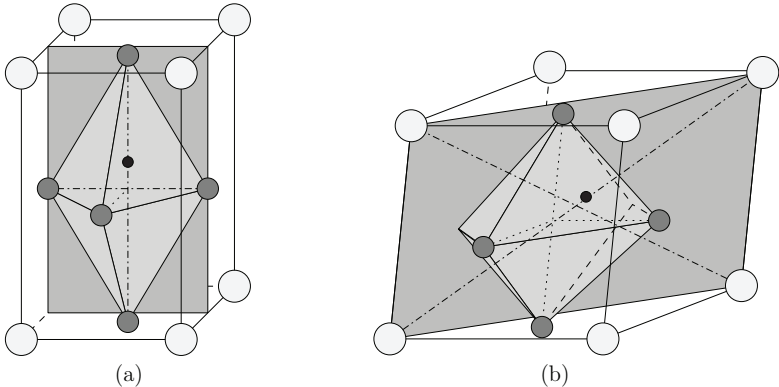
ferner eine Entkoppelung des magnetischen Feldes durch  $q_{lij}, g_{il} = 0$ , so ergeben sich die konstitutiven Gleichungen für lineares piezoelektrisches Materialverhalten wie sie z. B. in [33, 128, 131, 154] niedergeschrieben sind. Die konstitutiven Gleichungen (3.94) bis (3.96) bilden die Grundlage zur Modellierung ferroelektrischer und ferromagnetischer Materialien sowie multiferroischer Komposite.



# 4 Modellierung der mikrostrukturellen inelastischen Prozesse

Die Modellierung des nichtlinearen Verhaltens ferroelektrischer, ferromagnetischer und multiferroischer Materialien setzt die Kenntnis der inelastischen Größen als Resultat der Domänenwandverschiebungen zwingend voraus. Dieses Kapitel befasst sich mit der Modellierung dieser Größen. Für eine tetragonale Elementarzelle sind diese Größen bekannt und lassen sich in diversen Publikationen finden, s. hierzu z. B. [33, 72, 121, 131]. Da in Verbindung mit der hier vorgestellten Kondensierte Methode (KM) auch rhomboedrische Elementarzellen modelliert werden, wird zunächst detailliert auf die Berechnung der inelastischen Größen  $\varepsilon_{kl}^{sp}$  und  $\Delta P_i^{sp}$  eingegangen. Diese Verfahrensweise wird dann auch auf die rhomboedrische Elementarzelle angewandt. Ferner wird gezeigt, dass die Annahme kleiner Verzerrungen gerechtfertigt ist. Daher gehen der LAGRANGE - GREENSche und der EULER-ALMANSISCHE in den CAUCHYSCHEN Verzerrungstensor über.

In der vorliegenden Arbeit werden ausschließlich ebene Probleme und somit Domänenwandverschiebungen, die innerhalb einer Ebene stattfinden, berücksichtigt. In Abb. 4.1 sind die Betrachtungsebenen, in denen Umklappprozesse stattfinden, für tetragonale und rhomboedrische Elementarzellen dargestellt. Die Achsen,



**Abb. 4.1** Betrachtungsebenen für ebene Umklappprozesse bei tetragonaler (a) und rhomboedrischer (b) Elementarzelle

die innerhalb dieser Ebenen liegen und entlang derer Umklappprozesse stattfinden



den, sind durch Strich - Punkt - Linien gekennzeichnet. Kapitel 2 folgend wird die Achse entlang welcher sich die Polarisierung der Elementarzelle ausbildet als polare Achse bezeichnet. Den nachfolgenden Herleitungen zur Modellierung der inelastischen Verzerrung und Polarisationsänderung liegen die Betrachtungsebenen nach Abb. 4.1 zugrunde. Aufgrund der Annahme ebener Probleme werden, im Vergleich zur räumlichen Betrachtung, bei der tetragonalen Elementarzelle zwei und bei der rhomboedriscen Elementarzelle vier Umklapprichtungen vernachlässigt. Diese Vereinfachung wirkt sich auch auf die Berechnung der inelastischen Größen aus. Inelastische Größen für räumliche Probleme sind z. B. in [62, 89, 96, 97] zu finden.

## 4.1 Spontane Verzerrung

### 4.1.1 Tetragonale Einheitszelle

Abb. 4.2 zeigt die ebenen Umklappvarianten einer tetragonalen Elementarzelle mit irreversiblen Beiträgen innerhalb der Betrachtungsebene nach Abb. 4.1. Die Verschiebungsvektoren  $u_i^{(1)}, \dots, u_i^{(4)}$  beschreiben die Verschiebungen der Eckpunkte der Elementarzelle infolge der durch den Umklappprozess hervorgerufenen Streckung bzw. Stauchung. Zunächst ist der LAGRANGE - GREENSche Verzerrungstensor

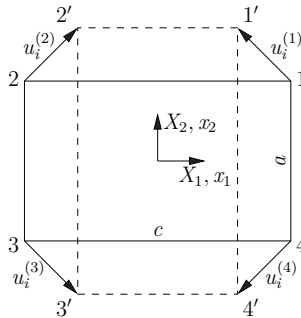


Abb. 4.2 Irreversible Umklappprozesse einer tetragonalen Elementarzelle

vor (3.16) zu bestimmen. Die Beschreibung der Deformation erfolgt i. Allg. durch die Funktion  $x_i(X_i, t)$ , welche die materielle Koordinate  $X_i$  der Referenzkonfiguration, auf die räumliche  $x_i$  der Momentankonfiguration abbildet. Nach Abb. 4.2 gilt:

$$x_i = \left( \begin{array}{c} \left( 1 + \frac{a-c}{a} \right) X_1 \\ \frac{c}{a} X_1 \\ \left( 1 + \frac{c-a}{a} \right) X_2 \end{array} \right) \mathcal{H}(t - t^S). \quad (4.1)$$

Die HEAVISIDE - Funktion  $\mathcal{H}(t - t^S)$  führt den Zeitpunkt des Umklappens  $t^S$  ein und impliziert somit ein unendlich schnelles Ereignis. Der Dynamik des Domäne-

numklappens wird hier keine Bedeutung zugemessen. Aus den Gln. (3.1) und (4.1) folgt dann das Verschiebungsfeld in LAGRANGEScher Darstellung

$$u_i = \begin{pmatrix} \frac{a-c}{c} X_1 \\ \frac{c-a}{a} X_2 \end{pmatrix}, \quad (4.2)$$

wobei nun grundsätzlich  $t > t^S$  unterstellt wird. Basierend auf Gl. (4.1) und unter Verwendung der Gln. (3.8) und (3.10) lautet der Deformationsgradient bzw. dessen Inverse:

$$F_{ij} = \begin{pmatrix} 1 + \frac{a-c}{c} & 0 \\ 0 & 1 + \frac{c-a}{a} \end{pmatrix}, \quad F_{ij}^{-1} = \begin{pmatrix} 1 + \frac{c-a}{a} & 0 \\ 0 & 1 + \frac{a-c}{c} \end{pmatrix}. \quad (4.3)$$

Aus den Gln. (3.13), (3.16) und (4.3) folgt der LAGRANGE - GREENSche Verzerrungstensor für einen  $90^\circ$  - Umklappprozess:

$$E_{ij} = \frac{c-a}{a} \begin{pmatrix} -\frac{a}{c} & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} + \frac{1}{2} \left( \frac{c-a}{a} \right)^2 \begin{pmatrix} \left( \frac{a}{c} \right)^2 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (4.4)$$

Aus den Gln. (3.14), (3.18) und (4.3) folgt der EULER - ALMANSISChe Verzerrungstensor:

$$e_{ij} = \frac{c-a}{a} \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & a \\ 0 & c \end{pmatrix} - \frac{1}{2} \left( \frac{c-a}{a} \right)^2 \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \left( \frac{a}{c} \right)^2 \end{pmatrix}. \quad (4.5)$$

Wird von dem Grenzfall kleiner Verzerrungen, d. h.  $c/a \rightarrow 1$ , ausgegangen, so gilt für den LAGRANGE - GREENSchen wie auch den EULER - ALMANSISchen Verzerrungstensor:

$$\lim_{c/a \rightarrow 1} E_{ij} = \lim_{c/a \rightarrow 1} e_{ij} = \underbrace{\frac{c-a}{a}}_{\varepsilon_D} \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} = \varepsilon_{ij}. \quad (4.6)$$

Es sei an dieser Stelle noch angemerkt, dass die in Gl. (4.6) getroffene Annahme kleiner Verzerrungen nur deswegen gerechtfertigt ist, da bei Raumtemperatur für die Kantenverhältnisse von Bariumtitanat bzw. Bleizirkonatitanat  $c/a \approx 1,011$  bzw.  $c/a \approx 1,029$  gilt, s. [68]. Aufgrund dieser Annahme ist der quadratische Term in den Gln. (4.4) und (4.5) vernachlässigbar gegenüber dem linearen. Der CAUCHYSche Verzerrungstensor  $\varepsilon_{ij}$ , als Grenzfall infinitesimaler Deformationen, geht auch mit Gl. (3.19) aus dem Verschiebungsfeld Gl. (4.2) für  $c/a \rightarrow 1$  hervor. Eine Umkehrung des Umklappprozesses führt dann offensichtlich zu dem Verzerrungstensor

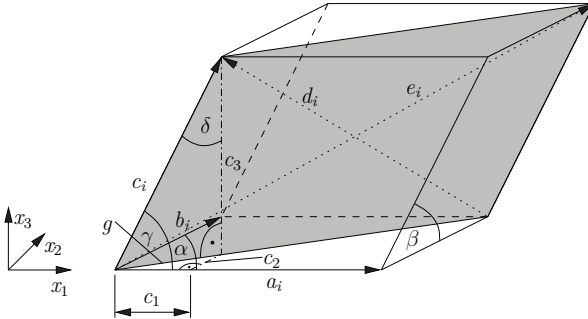
$$\varepsilon_{ij} = \frac{c-a}{a} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (4.7)$$

## 4.1.2 Rhomboedrische Einheitszelle

### 4.1.2.1 Berechnung der Raumdiagonalen der Betrachtungsebene

Im Gegensatz zur tetragonalen Elementarzelle, wo die Betrachtungsebene der Projektion einer Außenfläche entspricht, wird bei der rhomboedrischen Elementarzelle die Betrachtungsebene durch zwei Raumdiagonalen aufgespannt, s. Abb. 4.1(b) und 4.3. Die Berechnung der spontanen Verzerrung erfordert zunächst die Bestimmung der Längen der Raumdiagonalen. Darauf aufbauend können die Verzerrungstensor des Umlappens ermittelt werden.

Zur Bestimmung der Längen der Raumdiagonalen wird allgemein von einem Parallelepiped ausgegangen, s. Abb. 4.3. Hierunter wird ein geometrischer Körper



**Abb. 4.3** Darstellung eines Parallelepipeds zur Veranschaulichung der Berechnung der Raumdiagonalen  $e_i$  und  $d_i$  einer rhomboedrischen Elementarzelle

verstanden, der von sechs paarweise kongruenten, in parallelen Ebenen liegenden Parallelogrammen begrenzt wird. Der im Rahmen dieser Arbeit betrachtete Rhomboeder ist ein Sonderfall des Parallelepipeds, da bei diesem

$$|a_i| = |b_i| = |c_i| = a_0, \quad (4.8)$$

$$\alpha = \beta = \gamma = \alpha^{\text{rh}} \quad (4.9)$$

gilt. Generell sind die Längen der Raumdiagonalen  $e_i$  und  $d_i$  definiert durch:

$$e = |e_i| = |a_i + b_i + c_i|, \quad (4.10)$$

$$d = |d_i| = |c_i - b_i - a_i| \quad (4.11)$$

mit den in der  $x_1 - x_2$  - Ebene liegenden Vektoren

$$a_i = (a_0, 0, 0)^T, \quad b_i = (a_0 \cos \alpha^{\text{rh}}, a_0 \sin \alpha^{\text{rh}}, 0)^T. \quad (4.12)$$

Die Berechnung der Koordinaten des Vektors  $c_i$ ,  $i = 1, 2, 3$ , ist aufwendiger wie die Berechnung der Koordinaten der Vektoren  $a_i$  und  $b_i$ , da der Vektor nicht ausschließlich in einer Ebene liegt. Aus Abb. 4.3 geht jedoch hervor wie die einzelnen Vektorkomponenten zu bestimmen sind.  $c_3$  entspricht der Höhe  $h$  des Rhomboeders

und ist gegeben durch

$$h = c_3 = \frac{V}{G} \quad (4.13)$$

mit dem Volumen

$$V = a_0^3 \sqrt{1 + 2 \cos^3 \alpha^{\text{rh}} - 3 \cos^2 \alpha^{\text{rh}}} \quad (4.14)$$

sowie der Grundfläche

$$G = \varepsilon_{ijk} a_j b_k = a_0^2 \sin \alpha^{\text{rh}} \quad (4.15)$$

des Rhomboeders.<sup>18</sup> Einsetzen der Gln. (4.14) und (4.15) in Gl. (4.13) führt auf:

$$c_3 = \frac{a_0 \sqrt{1 + 2 \cos^3 \alpha^{\text{rh}} - 3 \cos^2 \alpha^{\text{rh}}}}{\sin \alpha^{\text{rh}}}. \quad (4.16)$$

Für den Winkel  $\delta$  gilt, s. Abb. 4.3:

$$\delta = \arccos \left( \frac{\sqrt{1 + 2 \cos^3 \alpha^{\text{rh}} - 3 \cos^2 \alpha^{\text{rh}}}}{\sin \alpha^{\text{rh}}} \right). \quad (4.17)$$

Die Gegenkathete  $g$  des rechtwinkligen Dreiecks ist gegeben durch:

$$g = a_0 \sin \left( \arccos \left( \frac{\sqrt{1 + 2 \cos^3 \alpha^{\text{rh}} - 3 \cos^2 \alpha^{\text{rh}}}}{\sin \alpha^{\text{rh}}} \right) \right). \quad (4.18)$$

Für den Sinus des Arkuscosinus gilt [150]

$$\sin(\arccos(x)) = \sqrt{1 - x^2}. \quad (4.19)$$

Mit den Gln. (4.18) und (4.19) können die Koordinaten  $c_1$  und  $c_2$  des Vektors  $c_i$ , welche in der  $x_1 - x_2$  - Ebene definiert sind, bestimmt werden:

$$c_1 = a_0 \sqrt{1 - \frac{1 + 2 \cos^3 \alpha^{\text{rh}} - 3 \cos^2 \alpha^{\text{rh}}}{\sin^2 \alpha^{\text{rh}}}} \cos \frac{\alpha^{\text{rh}}}{2}, \quad (4.20)$$

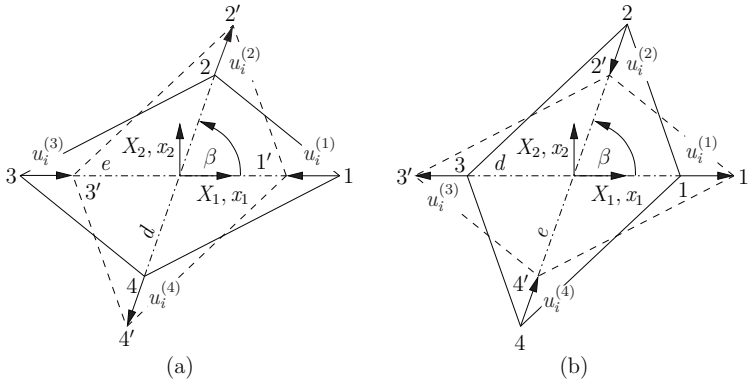
$$c_2 = a_0 \sqrt{1 - \frac{1 + 2 \cos^3 \alpha^{\text{rh}} - 3 \cos^2 \alpha^{\text{rh}}}{\sin^2 \alpha^{\text{rh}}}} \sin \frac{\alpha^{\text{rh}}}{2}. \quad (4.21)$$

Da der Rhomboeder einen Sonderfall des Parallelepiped darstellt, halbiert die Diagonale des durch die Vektoren  $a_i$  und  $b_i$  aufgespannten Parallelogramms den Winkel  $\alpha^{\text{rh}}$ . Dies wurde bei der Berechnung der Koordinaten  $c_1$  und  $c_2$ , Gln. (4.20) und (4.21), bereits berücksichtigt. Durch die Gln. (4.16), (4.20) und (4.21) ist der Vektor  $c_i$  eindeutig bestimmt und die Längen  $d$  bzw.  $e$  der Vektoren  $d_i$  bzw.  $e_i$  können gemäß der Gln. (4.11) und (4.10) in Abhängigkeit der Kantenlänge  $a_0$  und des Winkels  $\alpha^{\text{rh}}$  bestimmt werden.

<sup>18</sup>Ausführliche Herleitung für das Volumen nach Gl. (4.14) ist im Anhang A.3 zu finden.

### 4.1.2.2 Berechnung der spontanen Verzerrung der Betrachtungsebene

Für die Berechnung der spontanen Verzerrung einer rhomboedrischen Elementarzelle wird die Betrachtungsebene nach Abb. 4.3 zugrunde gelegt. Abb. 4.4 zeigt



**Abb. 4.4** Deformation der Betrachtungsebene einer rhomboedrischen Elementarzelle infolge von Umklappprozessen.  $70,5^\circ$ - oder  $-109,5^\circ$ - Umklappprozesse der Domänen 1 und 3 (a) sowie  $-70,5^\circ$ - oder  $109,5^\circ$ - Umklappprozesse der Domänen 2 und 4 (b)

die möglichen Deformationen einer rhomboedrischen Elementarzelle infolge von Umklappprozessen, wobei die Zelle vor dem Umklappen (Referenzkonfiguration) mit einer durchgezogenen und die nach dem Umklappen (Momentankonfiguration) durch eine gestrichelte Linie gekennzeichnet ist. In Abb. 4.4(a) sind die  $70,5^\circ$  oder  $-109,5^\circ$  Umklappprozesse der Domänenvarianten  $n = 1$  und  $n = 3$  zu sehen. Abb. 4.4(b) hingegen zeigt  $-70,5^\circ$  oder  $109,5^\circ$  Umklappprozesse der Domänenvarianten  $n = 2$  und  $n = 4$ . Die Längen der Diagonalen  $d$  und  $e$  beziehen sich auf die Referenzkonfiguration.

Die Funktion

$$x_i = \begin{pmatrix} \left(1 + \frac{d-e}{e}\right) X_1 + \frac{e^2-d^2}{de} \frac{1}{\tan \beta} X_2 \\ \left(1 + \frac{e-d}{d}\right) X_2 \end{pmatrix} \quad (4.22)$$

bildet die in Abb. 4.4(a) dargestellte Referenzkonfiguration auf die Momentankonfiguration ab. Mit den Gln. (3.1) und (4.22) gilt für das Verschiebungsfeld:

$$u_i = \begin{pmatrix} \frac{d-e}{e} X_1 + \frac{e^2-d^2}{de} \frac{1}{\tan \beta} X_2 \\ \frac{e-d}{d} X_2 \end{pmatrix}. \quad (4.23)$$

Unter Verwendung der Gln. (3.8) und (3.10) folgt aus Gl. (4.22) der Deformations-

gradient und dessen Inverse:

$$F_{ij} = \begin{pmatrix} 1 + \frac{d-e}{e} & \frac{e^2-d^2}{de} \frac{1}{\tan\beta} \\ 0 & 1 + \frac{e-d}{d} \end{pmatrix}, \quad F_{ij}^{-1} = \begin{pmatrix} 1 + \frac{e-d}{d} & \frac{d^2-e^2}{de} \frac{1}{\tan\beta} \\ 0 & 1 + \frac{d-e}{e} \end{pmatrix}. \quad (4.24)$$

Der LAGRANGE - GREENSche Verzerrungstensor resultiert somit aus den Gln. (3.16) und (4.24):

$$E_{ij} = \frac{e-d}{d} \begin{pmatrix} -\frac{d}{e} & \frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan\beta} \\ \frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan\beta} & 1 \end{pmatrix} + \frac{1}{2} \left( \frac{e-d}{d} \right)^2 \begin{pmatrix} \left( \frac{d}{e} \right)^2 & -\frac{e+d}{e^2} \frac{d}{\tan\beta} \\ -\frac{e+d}{e^2} \frac{d}{\tan\beta} & 1 + \frac{(e^2-d^2)^2}{(e-d)^2 e^2} \frac{1}{\tan^2\beta} \end{pmatrix}. \quad (4.25)$$

Aus den Gln. (3.18) und (4.24) folgt für den EULER - ALMANSischen Verzerrungstensor:

$$e_{ij} = \frac{e-d}{d} \begin{pmatrix} -1 & \frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan\beta} \\ \frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan\beta} & \frac{d}{e} \end{pmatrix} - \frac{1}{2} \left( \frac{e-d}{d} \right)^2 \begin{pmatrix} 1 & -\frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan\beta} \\ -\frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan\beta} & \left( \frac{d}{e} \right)^2 + \frac{(e^2-d^2)^2}{(e-d)^2 e^2} \frac{1}{\tan^2\beta} \end{pmatrix}. \quad (4.26)$$

Für den Sonderfall kleiner Verzerrungen, d. h.  $e/d \rightarrow 1$ , gehen die Gln. (4.25) und (4.26) ineinander über und entsprechen wieder dem CAUCHYSchen Verzerrungstensor:

$$\lim_{e/d \rightarrow 1} E_{ij} = \lim_{e/d \rightarrow 1} e_{ij} = \varepsilon_{ij} = \frac{e-d}{d} \begin{pmatrix} -1 & \frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan\beta} \\ \frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan\beta} & 1 \end{pmatrix}. \quad (4.27)$$

Die Längen der Diagonalen  $e$  und  $d$  hängen von der Kantenlänge der rhomboedrischen Elementarzelle ab. Mit den in [112] berechneten Längen der Diagonalen folgt für deren Verhältnis  $e/d \approx 1,007$ . Somit ist auch für die rhomboedrische Elementarzelle die Annahme kleiner Verzerrungen gerechtfertigt und die quadratischen Terme in den Gln. (4.25) und (4.26) sind gegenüber den linearen vernachlässigbar.

Auf eine detaillierte Herleitung der in Abb. 4.4(b) dargestellten Umklappprozesse wird, aufgrund der Analogie zu der oben beschriebenen Vorgehensweise, verzichtet. Eine ausführliche Herleitung der LAGRANGE - GREENSchen, EULER - ALMANSischen und CAUCHYSchen Verzerrungstensoren ist im Anhang A.2 zu finden. An

dieser Stelle wird lediglich der CAUCHYSche Verzerrungstensor angegeben:

$$\varepsilon_{ij} = \frac{e-d}{d} \begin{pmatrix} 1 & -\frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan \beta} \\ -\frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan \beta} & -1 \end{pmatrix}. \quad (4.28)$$

Ein Vergleich der Verzerrungstensoren für tetragonale und rhomboedrische Elementarzellen führt zu der Erkenntnis, dass die Nebendiagonalelemente in den Gln. (4.27) und (4.28) von Null verschieden sind. Diese Einträge beschreiben die halbe Winkeländerung der Schubdeformation, s. z. B. [54, 58, 107]. Diese ist aus Abb. 4.4 für  $\pm 70,5^\circ$  sowie  $\pm 109,5^\circ$  Umklappprozesse anschaulich zu entnehmen. Die Ursache für die unterschiedlichen Vorzeichen der Nebendiagonalelemente in den Gln. (4.27) und (4.28) ist in der Winkelzu- und Winkelabnahme der eingeschlossenen Winkel infolge der Umklappprozesse zu finden. Aus Gl. (4.6) wird ersichtlich, dass ein  $\pm 90^\circ$ -Umklappprozess im zugrunde gelegten Koordinatensystem nicht zu einer Scherung führt. Beide Elementarzellen weisen beim Umklappen isochore Zustandsänderungen auf, was an den verschwindenden Spuren der Verzerrungstensoren zu erkennen ist. Aus der Berechnung des Drehtensors  $\Omega_{ij}$  nach Gl. (3.60) wird deutlich, dass bei tetragonalen Elementarzellen keine Rotation vorhanden ist, was auch aus dem Verschiebungsvektor in Gl. (4.2) folgt, da der Verschiebungsgradient ein symmetrischer Tensor ist. Im Gegensatz dazu ist bei der rhomboedrischen Elementarzelle der Drehtensor von Null verschieden. Dies wird dadurch ersichtlich, da der Verschiebungsgradient  $u_{i,j}$ , unter Berücksichtigung des Verschiebungsvektors (4.23), für diesen Typ von Elementarzelle nicht symmetrisch ist.

## 4.2 Änderung der spontanen Polarisation

Eine Umorientierung der Elementarzelle um den Winkel  $\beta$  geht einher mit einer Änderung der spontanen Polarisation  $P_i^{\text{sp}}$ . Unabhängig von der Art der Elementarzelle gilt für diese, s. Abb. 4.5:

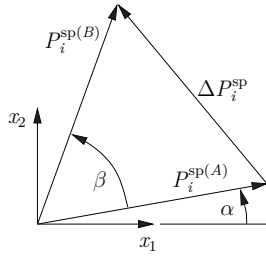
$$\Delta P_i^{\text{sp}} = P_i^{\text{sp}(B)} - P_i^{\text{sp}(A)}, \quad (4.29)$$

wobei  $P_i^{\text{sp}(A)}$  und  $P_i^{\text{sp}(B)}$  die Vektoren der spontanen Polarisation in der Ausgangs- (A) und Momentankonfiguration (B) sind. In Verbindung mit Abb. 4.5 gilt für diese:

$$P_i^{\text{sp}(A)} = P^0 \begin{pmatrix} \cos \alpha \\ \sin \alpha \end{pmatrix}, \quad P_i^{\text{sp}(B)} = P^0 \begin{pmatrix} \cos(\alpha + \beta) \\ \sin(\alpha + \beta) \end{pmatrix}, \quad (4.30)$$

mit dem materialabhängigen Betrag der spontanen Polarisation  $P^0$ . Einsetzen von Gl. (4.30) in Gl. (4.29) führt zu:

$$\Delta P_i^{\text{sp}} = P^0 \begin{pmatrix} \cos(\alpha + \beta) - \cos \alpha \\ \sin(\alpha + \beta) - \sin \alpha \end{pmatrix}. \quad (4.31)$$



**Abb. 4.5** Änderung der spontanen Polarisation  $\Delta P_i^{\text{sp}}$  für einen beliebigen Umklappprozess  $\beta$

Gemäß Abb. 4.5 bezeichnet der Winkel  $\alpha$  die Drehung der Referenzkonfiguration gegenüber dem Koordinatensystem  $x_1, x_2$ . Der Winkel  $\beta$  entspricht dem betrachteten Umklappprozess. Unter Zuhilfenahme der Additionstheoreme für trigonometrische Funktionen,

$$\cos x - \cos y = -2 \sin\left(\frac{x+y}{2}\right) \sin\left(\frac{x-y}{2}\right), \quad (4.32)$$

$$\sin x - \sin y = 2 \cos\left(\frac{x+y}{2}\right) \sin\left(\frac{x-y}{2}\right), \quad (4.33)$$

s. z. B. [19, 20, 163], lässt sich Gl. (4.31) überführen in:

$$\Delta P_i^{\text{sp}} = \underbrace{-2 \sin\left(\frac{\beta}{2}\right)}_{= b} P^0 \begin{pmatrix} \sin\left(\alpha + \frac{\beta}{2}\right) \\ -\cos\left(\alpha + \frac{\beta}{2}\right) \end{pmatrix}. \quad (4.34)$$

Der in Gl. (4.34) eingeführte Faktor  $b$  ist offensichtlich abhängig vom Umklappprozess  $\beta$ . Für die betrachteten Varianten gilt:

$$b = \begin{cases} -2, & \beta = 180^\circ, \\ \mp 1,6332, & \beta = \pm 109,5^\circ, \\ \mp \sqrt{2}, & \beta = \pm 90^\circ, \\ \mp 1,1543, & \beta = \pm 70,5^\circ. \end{cases} \quad (4.35)$$

Für  $\beta = \pm 109,5^\circ$  und  $\beta = 70,5^\circ$  wurden die Ergebnisse auf vier Nachkommastellen gerundet. Die Faktoren, welche Umklappprozesse einer tetragonalen Elementarzelle beschreiben, stimmen mit denen in der Literatur, z. B. [33, 121, 131], überein.





# 5 Kondensierte Modelle für ferroische Materialien

Gegenstand dieses Kapitels ist sowohl die Modellierung des makroskopischen Verhaltens als auch mesoskopischer Effekte, wie z. B. Eigenspannungen auf Kornebene, ferroischer, insbesondere ferroelektrischer, ferromagnetischer und magnetoelektrischer multiferroischer Materialien. Dazu wird zunächst auf die Berechnung makroskopischer Größen eingegangen. Im Anschluss daran werden die einzelnen Modelle für rein ferroelektrisches und -magnetisches Materialverhalten sowie für multiferroische Komposite eingeführt. Abschließend werden zwei Ansätze zur Modellierung der morphotrope Phasengrenze (MPG) vorgestellt und diskutiert.

Da die Finite-Elemente-Methode (FEM) das Standardwerkzeug zur Implementierung entwickelter Materialmodelle ist, erfolgt zunächst eine Gegenüberstellung von FEM und kondensierter Methode (KM), s. Abb. 5.1. Wird das makroskopische

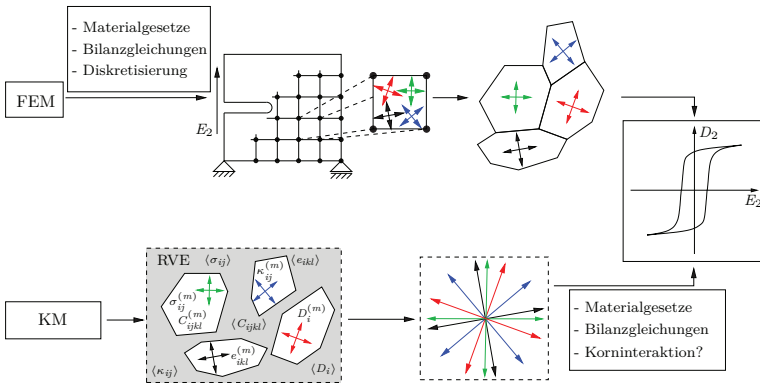


Abb. 5.1 Gegenüberstellung der FEM und der KM [90]

Materialverhalten mit der FEM simuliert, so ist zunächst das repräsentative Volumenelement (RVE) oder die Struktur zu diskretisieren. In Abb. 5.1 ist ein finites Element exemplarisch hervorgehoben. Bei diesem Beispiel handelt es sich um ein Element mit vier Integrationspunkten (IP). Jeder IP repräsentiert die Domänenstruktur eines Korns, s. z. B. [4, 5, 50]. Eine hinreichende Anzahl von Elementen und somit die vierfache Anzahl von Körnern liefert dann das makroskopische Materialverhalten, in Abb. 5.1 beispielhaft durch die dielektrische Hysterese dargestellt.<sup>19</sup>

<sup>19</sup>Bezüglich der FEM Grundlagen sei auf einschlägige Literatur, z. B. [11, 168] verwiesen. Die

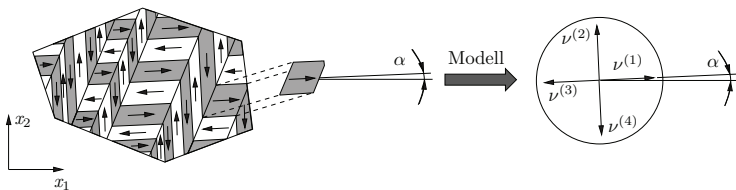
Bei der KM gibt es keine räumliche Diskretisierung. Hier kann man die Körner als in ein effektives Medium eingebettet interpretieren. Dieses wird auf einen globalen materiellen Punkt (MP) kondensiert. Vorteile gegenüber der FEM liegen in der sehr viel einfacheren und zeitsparenderen Implementierung selbst komplexer Materialgesetze, der besseren numerischen Stabilität von Simulationen und einer deutlich geringeren CPU - Zeit. Andererseits können natürlich keine komplexen Randwertprobleme gelöst werden. Im Gegensatz zur FEM, wo die Interaktion zwischen den Körnern durch die räumliche Diskretisierung und die entsprechende Kopplung im Gleichungssystem intrinsisch berücksichtigt wird, ist die Korninteraktion bei der KM nicht inherent. Diese muss allerdings Bestandteil eines Modells für polykristalline ferroische Materialien sein.

## 5.1 Ferroelektrisches Materialverhalten

Dieser Abschnitt befasst sich mit der Modellierung polykristallinen ferroelektrischen Materialverhaltens auf Basis der KM. Zunächst wird auf den Einkristall und dessen Modellierung eingegangen. Im Anschluss daran wird ein Evolutionsgesetz für die Domänenwandverschiebungen formuliert und auf die Ermittlung makroskopischer und mesoskopischer Größen eingegangen. Dann wird die Realisierung der Korninteraktion bei der KM erläutert.

### 5.1.1 Betrachtung eines polydomänen Einkristalls

Abb. 5.2 (links) zeigt die Domänenstruktur eines ferroelektrischen Kornes mit tetragonalen Elementarzellen. Diese besteht aus  $90^\circ$ - und  $180^\circ$ - Domänenwänden. Wird ein Korn mit rhomboedrischen Elementarzellen betrachtet, so sind  $70,5^\circ$ -,  $109,5^\circ$ - und  $180^\circ$ - Domänenwände vorhanden. Nachfolgend werden Erläuterungen anhand der tetragonalen Elementarzelle vorgenommen. Die Orientierung einer



**Abb. 5.2** Domänenstruktur eines Einkristalls (links) und die Übertragung der Domänenstruktur in das Modell unter Verwendung der inneren Variablen  $\nu^{(n)}$  (rechts) [90]

Domäne  $n$  gegenüber dem globalen Koordinatensystem  $(x_1, x_2)$  ist gegeben durch den Winkel  $\alpha$ . In Abb. 5.2 (rechts) wird die mikromechanische Bedeutung der inneren Variablen  $\nu^{(n)}$  veranschaulicht. Bei diesem Modell, welches auf HUBER et al.

---

Implementierung eines mikroelektromechanischen Modells für ferroelektrisches Materialverhaltens in die FEM ist z. B. in [49] zu finden.

[62] zurückgeht, wird die Domänenstruktur auf einen lokalen materiellen Punkt abgebildet. Aufgrund der Reduktion auf ebene Probleme verfügt jedes Korn über vier mögliche Polarisationsrichtungen. Diese charakterisieren die Domänen, deren Volumenanteile im mikromechanischen Modell durch innere Variablen  $\nu^{(n)}$ ,  $n = 1, \dots, 4$ , gewichtet werden. Die  $\nu^{(n)}$  müssen nachfolgende Bedingungen erfüllen [33, 62, 90, 99]:

$$0 \leq \nu^{(n)} \leq 1, \quad \sum_{n=1}^4 \nu^{(n)} = 1. \quad (5.1)$$

Wenn nicht anders erwähnt, wird stets von einem nichtpolaren Anfangszustand ausgegangen, d. h. für alle  $n$  gilt  $\nu^{(n)} = \nu_0 = 0,25$ .

Auf makroskopischer Ebene führen die Umklappprozesse zu einer Änderung der irreversiblen Größen:

$$d\epsilon_{kl}^{\text{irr}} = \sum_{n=1}^4 \epsilon_{kl}^{\text{sp}(n)} d\nu^{(n)}, \quad dP_i^{\text{irr}} = \sum_{n=1}^4 \Delta P_i^{\text{sp}(n)} d\nu^{(n)}. \quad (5.2)$$

Die in Gl. (5.2) steuernden Größen sind die infinitesimalen bzw. im numerischen Sinne inkrementellen Änderungen der inneren Variablen  $d\nu^{(n)}$ . Diese führen zu einer schrittweisen Änderung der inelastischen Verzerrung  $d\epsilon_{kl}^{\text{irr}}$  und Polarisation  $dP_i^{\text{irr}}$ , was physikalisch als Domänenwandverschiebung zu interpretieren ist. Die Materialeigenschaften eines Kornes ergeben sich in ähnlicher Weise als gewichtete Summen

$$C_{ijkl} = \sum_{n=1}^4 C_{ijkl}^{(n)} \nu^{(n)}, \quad e_{ikl} = \sum_{n=1}^4 e_{ikl}^{(n)} \nu^{(n)}, \quad \kappa_{ij} = \sum_{n=1}^4 \kappa_{ij}^{(n)} \nu^{(n)} \quad (5.3)$$

wobei  $C_{ijkl}^{(n)}$ ,  $e_{ikl}^{(n)}$  und  $\kappa_{ij}^{(n)}$  die elastischen, piezoelektrischen und dielektrischen Tensoren der Domäne  $n$  sind.

### 5.1.2 Umklappkriterium und Evolutionsgesetz der inneren Variable $\nu^{(n)}$

Nachdem in Abschnitt 5.1.1 auf die Materialeigenschaften und irreversiblen Größen des Einkristalls eingegangen wurde, steht die Formulierung eines Umklappkriteriums und die Entwicklung eines Evolutionsgesetzes in diesem Abschnitt im Vordergrund. Das in dieser Arbeit verwendete Umklappkriterium geht auf HWANG et al. [65] zurück. Hierbei handelt es sich um ein einfaches energetisches Kriterium, welches die mit dem Umklappen einer Domäne  $n$  verbundene dissipative Arbeit  $w^{\text{diss}(n)}$  auf eine Energiebarriere  $w^{\text{crit}}$  bezieht. Demnach kommt es zum Umklappen, wenn

$$w_{(\beta)}^{\text{diss}(n)} \geq w_{(\beta)}^{\text{crit}} \quad (5.4)$$

erfüllt ist.  $\beta$  in Gl. (5.4) bezeichnet die in Kapitel 4 diskutierten Umklappvarianten.

Die linke Seite von Gl. (5.4) ist gegeben durch:

$$w_{(\beta)}^{\text{diss}(n)} = \sigma_{ij} \varepsilon_{ij(\beta)}^{\text{sp}(n)} + E_i \Delta P_{i(\beta)}^{\text{sp}(n)}. \quad (5.5)$$

Das Umklappkriterium in Gl. (5.4) erfüllt, unter der Berücksichtigung von Gl. (5.2), somit die generalisierte CLAUSIUS - DUHEM - Ungleichung (3.65), da  $w_{(\beta)}^{\text{crit}}$  stets positiv ist. Da zunächst ein rein ferroelektrisches Problem betrachtet wird, spielt der Term  $H_i \dot{M}_i^{\text{irr}}$  aus Gl. (3.65) hier keine Rolle. Für eine vollständige thermodynamische Konsistenz muss Gl. (5.5) um die dissipativen Beiträge infolge von Änderungen der Materialeigenschaften erweitert werden. Eine solche Erweiterung wurde von KESSLER und BALKE [78] vorgeschlagen. Die damit einhergehenden quadratischen Terme in Spannung  $\sigma_{ij}$  und elektrischer Feldstärke  $E_i$  sind bei schwacher Anisotropie oder weichen Ferroelektrika gegenüber den in Gl. (5.5) aufgeführten Termen vernachlässigbar, s. hierzu [78]. Ferner wird in Gl. (5.5) angenommen, dass Spannung  $\sigma_{ij}$  und elektrische Feldstärke  $E_i$  konstant während des Umklappvorganges sind. Diese Annahme stellt eine generalisierte REUSS - Approximation dar [62, 65, 78, 90, 91, 121].

Für die rechte Seite des Umklappkriteriums (5.4) gibt es in der Literatur zwei unterschiedliche Ansätze. In z. B. [12, 46, 65, 113, 132] wird  $w^{\text{crit}} = 2E_c P^0$  gewählt. Damit wird gewährleistet, dass ein elektrisches Feld der Stärke  $E_c$  entgegen der Polungsrichtung notwendig ist, um einen  $180^\circ$  - Umklappprozess zu initiieren. Auch bei  $90^\circ$ -Umklappvorgängen wird in der oben genannten Literatur derselbe kritische Wert, sowohl bei mechanischer als auch elektromechanischer Last, verwendet. Andererseits gilt, bei rein elektrischer Last, nach z. B. [121, 139] für die Energiebarriere:

$$w_{(\beta)}^{\text{crit}} = E_c^{(\beta)} \frac{\Delta P_{i(\beta)}^{\text{sp}}}{|\Delta P_{i(\beta)}^{\text{sp}}|} \Delta P_{i(\beta)}^{\text{sp}}. \quad (5.6)$$

Mit Gl. (5.6) wird die elektrische Arbeit bestimmt, welche ein elektrisches Feld, dessen Projektion auf den Vektor der Änderung der spontanen Polarisation  $\Delta P_{i(\beta)}^{\text{sp}}$  der Koerzitivfeldstärke  $E_c^{(\beta)}$  entspricht, verrichten muss, damit eine Elementarzelle um den Winkel  $\beta$  umorientiert wird. Die zugehörige Koerzitivfeldstärke folgt durch Umstellen:

$$E_c^{(\beta)} = w_{(\beta)}^{\text{crit}} \frac{|\Delta P_{i(\beta)}^{\text{sp}}|}{\Delta P_{i(\beta)}^{\text{sp}} \Delta P_{i(\beta)}^{\text{sp}}}. \quad (5.7)$$

Da bei diesem Ansatz  $w_{(\beta)}^{\text{crit}} = w^{\text{crit}} = 2P^0 E_c$  gilt und nach Abschnitt 4.2 die Vektoren der Änderung der spontanen Polarisation  $\Delta P_i^{\text{sp}}$  sowie deren Beträge  $|\Delta P_i^{\text{sp}}|$  bekannt sind, würde dies zu unterschiedlichen Koerzitivfeldstärken  $E_c^{(\beta)}$  führen. Diese Tatsache ist aus physikalischer Sicht äußerst zweifelhaft, da die Koerzitivfeldstärke als materialabhängiger Parameter eingeführt wurde. Demnach geht der zweite in der Literatur zu findende Ansatz [62] davon aus, dass die Koerzitivfeldstärke identisch für jeden Umorientierungsprozess ist. Bezogen auf die Energiebarriere für  $180^\circ$ -Umklappprozesse nach HWANG et al. [65] kann für eine Umorientierung um den Winkel  $\beta$  allgemein  $E_c^{(\beta)} = E_c^{(180^\circ)}$  zugrunde gelegt werden. Mit Gl. (5.7) führt

dies auf:

$$w_{(\beta)}^{\text{crit}} = w_{(180^\circ)}^{\text{crit}} \frac{\Delta P_{i(\beta)}^{\text{sp}} \Delta P_{i(\beta)}^{\text{sp}}}{\Delta P_{i(180^\circ)}^{\text{sp}} \Delta P_{i(180^\circ)}^{\text{sp}}} \frac{|\Delta P_{i(180^\circ)}^{\text{sp}}|}{|\Delta P_{i(\beta)}^{\text{sp}}|}. \quad (5.8)$$

Unter Berücksichtigung der in Abschnitt 4.2 eingeführten Vektoren der Änderung der spontanen Polarisation für tetragonale Elementarzellen folgt aus Gl. (5.8) der auch in [62, 75] zu findende Zusammenhang:

$$w_{(\pm 90^\circ)}^{\text{crit}} = \frac{w_{(180^\circ)}^{\text{crit}}}{\sqrt{2}}. \quad (5.9)$$

Mit der kritischen Arbeit für  $180^\circ$  - Umklappprozesse ergeben sich für tetragonale Ferroelektrika folgende Energiebarrieren, s. auch z. B. [47, 81, 90, 99]:

$$w_{(\pm 90^\circ)}^{\text{crit}} = \sqrt{2} P^0 E_c, \quad w_{(180^\circ)}^{\text{crit}} = 2 P^0 E_c. \quad (5.10)$$

Die Energiebarrieren für Phasen mit rhomboedrischen Elementarzellen folgen ebenfalls aus Gl. (5.8). Hier ergeben sich folgende Zusammenhänge zwischen den Energiebarrieren der Umklappvarianten  $\beta = \pm 70,5^\circ$ ,  $\beta = \pm 109,5^\circ$  und  $\beta = 180^\circ$ :<sup>20</sup>

$$w_{(\pm 70,5^\circ)}^{\text{crit}} \approx 0,5768 w_{(180^\circ)}^{\text{crit}}, \quad w_{(\pm 109,5^\circ)}^{\text{crit}} \approx 0,8166 w_{(180^\circ)}^{\text{crit}}. \quad (5.11)$$

Analog zur Phase mit tetragonalen Elementarzellen können die Energiebarrieren als Funktion von spontaner Polarisation  $P^0$  und Koerzitivfeldstärke geschrieben werden:

$$w_{(\pm 70,5^\circ)}^{\text{crit}} \approx 1,1536 P^0 E_c, \quad w_{(\pm 109,5^\circ)}^{\text{crit}} \approx 1,6332 P^0 E_c, \quad w_{(180^\circ)}^{\text{crit}} = 2 P^0 E_c. \quad (5.12)$$

Der in Gl. (5.12) errechnete Wert für  $w_{(\pm 70,5^\circ)}^{\text{crit}}$  entspricht dem in der Literatur [121]. In [121] wird jedoch nur die Umklappvariante mit dem geringsten Schwellenwert betrachtet. Für die Übrigen gilt dort  $w_{(\pm 109,5^\circ)}^{\text{crit}} = w_{(180^\circ)}^{\text{crit}} = \infty$ . Da in [121] räumliche und keine ebenen Elementarzellen untersucht werden, können die Umklappvarianten  $\beta = \pm 109,5^\circ$  und  $\beta = 180^\circ$  durch zwei- bzw. dreifaches Umorientieren der Variante  $\beta = \pm 70,5^\circ$  erreicht werden.

Die Evolutionsgleichung der inneren Variablen  $\nu^{(n)}$  folgt aus Gl. (5.4), s. auch [5, 90]:

$$d\nu^{(n)} = -d\nu_0 \mathcal{H} \left( \frac{w^{\text{diss}(n)}}{w_{(\beta)}^{\text{crit}}} - 1 \right), \quad w^{\text{diss}(n)} = \max \{ w_{(\beta)}^{\text{diss}(n)} \}. \quad (5.13)$$

Bei der Größe  $d\nu_0 > 0$  handelt es sich um einen Modellparameter. Dieser gibt an, wie groß der umklappende Volumenanteil einer Domäne in einem Prozessschritt ist. Gemäß Abb. 5.3 ist die HEAVISIDE - Funktion  $\mathcal{H}$  Null im Fall von  $w^{\text{diss}(n)} < w^{\text{crit}}$  und Eins für  $w^{\text{diss}(n)} \geq w^{\text{crit}}$ . Des Weiteren geht aus Gl. (5.13) hervor, dass

<sup>20</sup>Die nachfolgenden Werte der Energiebarrieren sind auf vier Nachkommastellen gerundet. Daher wird im Zusammenhang mit Energiebarrieren für die Umklappvarianten  $\beta = \pm 70,5^\circ$  und

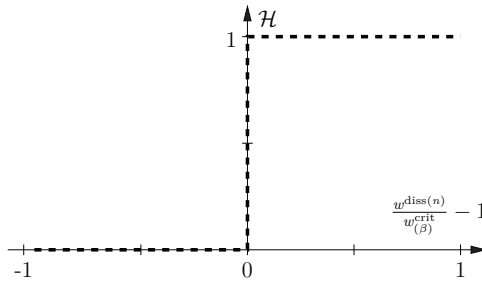


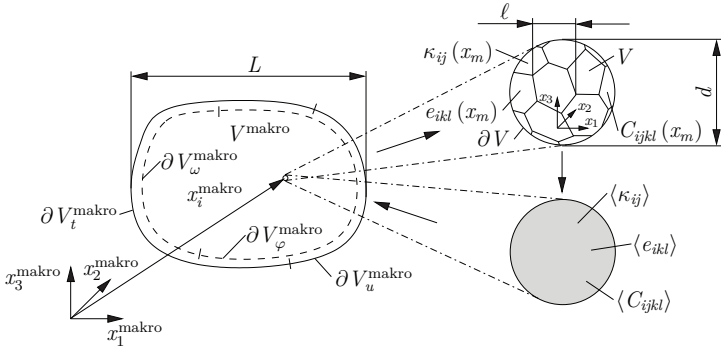
Abb. 5.3 HEAVISIDE-Funktion aufgetragen gemäß Gl. (5.13) [112]

ausschließlich die Umklappvariante einer Domäne betrachtet wird, deren dissipative Arbeit am größten ist. Damit Gl. (5.1) erfüllt ist, muss sich der Volumenanteil einer anderen Domäne um den selben Betrag  $d\nu^{(n)}$  erhöhen, um welchen die Domäne  $n$  reduziert wird.

### 5.1.3 Volumenmittelungen

Reale Materialien, auch wenn sie makroskopisch homogen erscheinen mögen, verfügen über nichtstetige Strukturen. Nach GROSS und SEELIG [53] können mikroskopischen Heterogenitäten zum Beispiel in Gestalt von Rissen, Hohlräumen, Fremdeinschlüssen, Korngrenzen oder Unregelmäßigkeiten im Kristallgitteraufbau vorliegen. Heterogenitäten, welche nachfolgend allgemein als Defekte bezeichnet werden, beeinflussen das globale Materialverhalten. Ein mögliches Szenario ist, dass es aufgrund von Spannungskonzentrationen an Defekten zu einer Bildung bzw. Vereinigung von Mikrorissen kommt, was zur Materialschädigung führt, s. z. B. [53]. Da die Vorstellung der KM Gegenstand dieses Kapitels ist, wird an dieser Stelle von einem defektfreien Material ausgegangen. In diesem Abschnitt soll es darum gehen, wie die makroskopischen Materialeigenschaften bei der KM zu berechnen sind. Eine ausführliche Darstellung zur Bestimmung effektiver Materialeigenschaften infolge von Rissen oder Poren ist in Kapitel 6 zu finden. Die bereits eingeführten Begriffe makro- und mikroskopisch werden anhand von Abb. 5.4 verdeutlicht. Zunächst sei an dieser Stelle darauf hingewiesen, dass die Definition der Makro- und Mikroebene abhängig von der Problemstellung bzw. Modellbildung ist [53]. Die hier betrachteten Materialien und Materialsysteme sind auf der Makroebene homogen, d. h. alle Eigenschaften sind unabhängig vom Ortsvektor  $x_i^{\text{makro}}$ . In Abb. 5.4 wird durch Vergrößerung des materiellen Punktes am Ort  $x_i^{\text{makro}}$  die feinskalige Mikrostruktur sichtbar, hier durch die Kornstruktur dargestellt. Mit Hilfe des Koordinatensystems  $x_m$  der Mikroebene können die elastischen  $C_{ijkl}(x_m)$ , piezoelektrischen  $e_{ikl}(x_m)$  und dielektrischen Koeffizienten  $\kappa_{ij}(x_m)$  der Mikrostruktur beschrieben werden. Die Mikroebene wiederum wird beschrieben durch den Volumenbereich  $V$ , welcher repräsentativ für das gesamte Material gelten soll. Dieser Volumenbereich bildet die Grundlage für die effektiven Materialeigenschaften  $\langle C_{ijkl} \rangle$ ,  $\langle e_{ikl} \rangle$  und  $\langle \kappa_{ij} \rangle$  der

$\beta = \pm 109,5^\circ$  ein  $\approx$  anstatt = verwendet.



**Abb. 5.4** Homogenisierung eines gemischten RWP mit mechanischen (volle Linie) und elektrischen (gestrichelte Linie) Randbedingungen. Aufteilung der Ränder nach NEUMANN-Randbedingungen auf  $\partial V_t^{\text{makro}}$ ,  $\partial V_\omega^{\text{makro}}$  und DIRICHLET-Randbedingungen auf  $\partial V_u^{\text{makro}}$ ,  $\partial V_\varphi^{\text{makro}}$  [53]

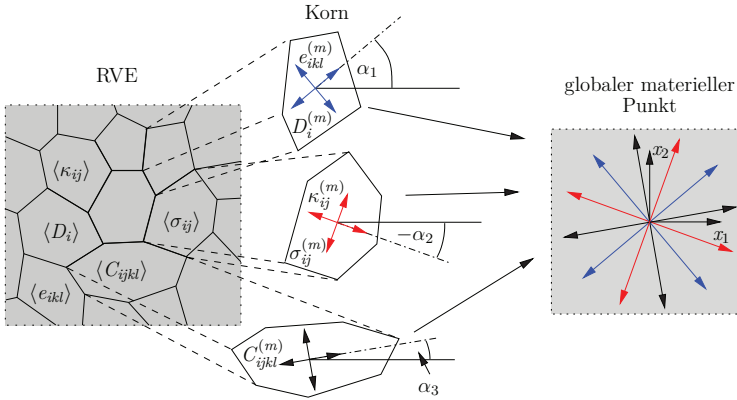
Makroebene, welche aus der nachfolgend vorgestellten Volumenmittelung folgen. Den Prozess der Bestimmung effektiver Felder und Materialkoeffizienten bezeichnet man als Homogenisierung. Nachfolgend werden makroskopische Größen durch das Klammersymbol  $\langle \bullet \rangle$  gekennzeichnet. Damit die makroskopischen Größen unabhängig von  $x_i^{\text{makro}}$  sind, müssen nach [53] die Defekte bzw. Kornorientierungen und -größen, s. Abb. 5.2, statistisch homogen im Material verteilt sein. Ferner dürfen die makroskopischen Eigenschaften nicht von der Größe oder Form des Volumenbereiches  $V$  abhängen. Weiterhin muss die Abmessung  $d$  der Mikroebene sehr viel größer sein als die charakteristische Länge  $\ell$  der Mikrostruktur. Im Kontext der im folgenden vorgestellten Homogenisierung bietet sich als charakteristische Länge die Größe eines Kornes an. Dem gegenüber steht, dass der Volumenbereich  $V$  so klein sein muss, dass er makroskopisch als Punkt angesehen werden kann. Eine charakteristische Länge  $L$  der Makroebene kann zum Beispiel durch den Körper gegeben sein. Erfüllt der Volumenbereich  $V$  die oben genannten Kriterien, welche auch in der Forderung

$$\ell \ll d \ll L \quad (5.14)$$

zusammengefasst werden können, so wird dieser als repräsentatives Volumenelement (RVE) bezeichnet.

In Abb. 5.5 ist das RVE eines Polykristalls an einem beliebigen Ort  $x_i^{\text{makro}}$  dargestellt. Wie zu Beginn dieses Kapitels erwähnt, verzichtet die KM auf eine räumliche Diskretisierung. Dennoch soll das Materialverhalten eines Polykristalls an einem globalen materiellen Punkt modelliert werden. Zur Veranschaulichung sind drei Körner mit unterschiedlichen Orientierungen  $\alpha_i$  hervorgehoben. Basierend auf Abschnitt 5.1.1 und Abb. 5.2 werden die vier ebenen Domänenvarianten eines Kornes durch ein Polarisationskreuz dargestellt. Wie Abb. 5.5 zu entnehmen ist, werden diese auf einen globalen materiellen Punkt kondensiert. Umklappprozesse können





**Abb. 5.5** RVE eines Polykristalls (links) sowie Skizze zur Veranschaulichung der KM (rechts) [90]

allerdings nur innerhalb eines jeden farbigen Kreuzes stattfinden.

Nach z. B. [53, 120] wird bei einer Mehrskalentrachtung einem globalen materiellen Punkt ein Volumenbereich  $V$  der Mikroebene zugeordnet. Aufgrund der fluktuierenden mikroskopischen Spannung und dielektrischen Verschiebung werden die makroskopischen Größen als Volumenmittelwerte

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \frac{1}{V} \int_V \sigma_{ij}(x_k) \, dV, \quad \langle D_i \rangle = \frac{1}{V} \int_V D_i(x_k) \, dV \quad (5.15)$$

der mikroskopischen Felder definiert [53]. Es besteht die Möglichkeit, den Volumenbereich  $V$  in  $M$  Teilvolumina  $V^{(m)}$ ,  $m = 1, \dots, M$ , aufzuteilen, wenn die Materialeigenschaften innerhalb der Teilvolumina konstant sind [53]. In diesem Fall wird von einer Mikrostruktur mit diskreten Bereichen ausgegangen. Für die makroskopischen Größen solcher Mikrostrukturen gilt:

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \sum_{m=1}^M c^{(m)} \langle \sigma_{ij} \rangle^{(m)}, \quad \langle D_i \rangle = \sum_{m=1}^M c^{(m)} \langle D_i \rangle^{(m)}, \quad (5.16)$$

wobei

$$c^{(m)} = \frac{V^{(m)}}{V}, \quad \sum_{m=1}^M c^{(m)} = 1 \quad (5.17)$$

der Volumenanteil eines Teilvolumens  $m$  ist und

$$\langle \sigma_{ij} \rangle^{(m)} = \frac{1}{V^{(m)}} \int_{V^{(m)}} \sigma_{ij} \, dV, \quad \langle D_i \rangle^{(m)} = \frac{1}{V^{(m)}} \int_{V^{(m)}} D_i \, dV \quad (5.18)$$

die Bereichsmittelwerte der Spannung und der dielektrischen Verschiebung sind.

Übertragen auf das in Abb. 5.5 dargestellte Problem wird in dieser Arbeit ein Teilvervolumen  $V^{(m)}$  als Korn bezeichnet. Des Weiteren wird nachfolgend die Annahme getroffen, dass innerhalb eines Kornes  $m$  alle Feldgrößen räumlich konstant sind, d. h. z. B.  $\langle \sigma_{ij} \rangle^{(m)} = \sigma_{ij}^{(m)}(x_k)$  und  $\langle D_i \rangle^{(m)} = D_i^{(m)}(x_k)$  in  $V^{(m)}$ . Die Größen  $\sigma_{ij}^{(m)}$  und  $D_i^{(m)}$  stellen die Spannungen und die dielektrischen Verschiebungen des Kornes  $m$  dar. Gl. (5.16) und Gl. (5.18) können dann überführt werden in:

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \frac{\sum_{m=1}^M \sigma_{ij}^{(m)} V^{(m)}}{\sum_{m=1}^M V^{(m)}}, \quad \langle D_i \rangle = \frac{\sum_{m=1}^M D_i^{(m)} V^{(m)}}{\sum_{m=1}^M V^{(m)}}. \quad (5.19)$$

Wird darüber hinaus angenommen, dass alle Körner die selbe Größe haben, d. h.  $V = MV^{(m)}$ , so kann Gl. (5.19) zu

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \sigma_{ij}^{(m)}, \quad \langle D_i \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M D_i^{(m)} \quad (5.20)$$

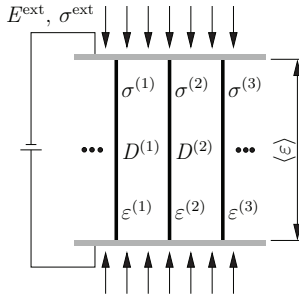
vereinfacht werden. Mit Gl. (5.20) besteht nun die Möglichkeit, makroskopische Größen im Kontext der KM zu bestimmen. Aufbauend auf der Argumentation der Gln. (5.16) bis (5.20) folgen die makroskopischen Materialeigenschaften aus

$$\langle C_{ijkl} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M C_{ijkl}^{(m)}, \quad \langle e_{ikl} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M e_{ikl}^{(m)}, \quad \langle \kappa_{ij} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \kappa_{ij}^{(m)}, \quad (5.21)$$

wobei  $C_{ijkl}^{(m)}$ ,  $e_{ikl}^{(m)}$  und  $\kappa_{ij}^{(m)}$  die elastischen, piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften des Kornes  $m$  sind und aus Gl. (5.3) folgen, s. hierzu auch [90, 135].

### 5.1.4 Korninteraktion im Polykristall

Nachdem in den vorherigen Abschnitten auf die Grundlagen des Einkristalls, das Evolutionsgesetz sowie die Berechnung makroskopischer Größen eingegangen wurde, werden nun diese Aspekte zusammengefasst, auf ein RVE angewandt und der wesentliche Aspekt der Korninteraktion wird methodisch umgesetzt. In Abb. 5.6 wird zunächst die Grundidee des Interaktionsmodells anhand eines eindimensionalen elektromechanischen Problems veranschaulicht. Aufgrund der Eindimensionalität wird bei der Erläuterung dieses Beispiels auf die Verwendung von Indizes verzichtet. Hierzu werden Körner gedanklich durch ein System von Stäben ersetzt, welches durch eine elektromechanische Last  $\sigma^{\text{ext}}$  und  $E^{\text{ext}}$  beaufschlagt wird. Die horizontalen dickeren grauen Linien repräsentieren starre Körper, die dem Stabsystem einen kinematischen Zwang auferlegen und zugleich als Elektroden dienen. Für die Steifigkeiten, piezoelektrischen und dielektrischen Koeffizienten der Stäbe



**Abb. 5.6** Veranschaulichung der Realisierung der Korninteraktion bei der KM anhand eines einfachen Stabsystems

gelte:

$$C^{(1)} \neq C^{(2)} \neq \dots \neq C^{(m)}, \quad (5.22)$$

$$e^{(1)} \neq e^{(2)} \neq \dots \neq e^{(m)}, \quad (5.23)$$

$$\kappa^{(1)} \neq \kappa^{(2)} \neq \dots \neq \kappa^{(m)}. \quad (5.24)$$

Aufgrund der in Abb. 5.6 getroffenen kinematischen Annahme und der gemeinsamen Elektroden gilt hinsichtlich der Verzerrungen und der elektrischen Feldstärke der einzelnen Stäbe:

$$\varepsilon^{(1)} = \varepsilon^{(2)} = \dots = \varepsilon^{(m)} = \langle \varepsilon \rangle, \quad (5.25)$$

$$E^{(1)} = E^{(2)} = \dots = E^{(m)} = E^{\text{ext}}. \quad (5.26)$$

Somit folgt wegen der Gln. (5.22) bis (5.24) für die Spannungen  $\sigma^{(m)}$  und die dielektrischen Verschiebungen  $D^{(m)}$ :

$$\sigma^{(1)} \neq \sigma^{(2)} \neq \dots \neq \sigma^{(m)}, \quad (5.27)$$

$$D^{(1)} \neq D^{(2)} \neq \dots \neq D^{(m)}. \quad (5.28)$$

Sind die piezoelektrischen Konstanten, etwa durch unterschiedliche Polungsrichtungen sehr verschieden, bewirkt die elektrische Last in den Stäben erhebliche mechanische Zug- oder Druckspannungen, die als Eigenspannungen  $\sigma^{(m)}$  interpretiert werden können. Die konstitutiven Beziehungen für  $\sigma^{(m)}$  und  $D^{(m)}$  entsprechen den Gln. (3.94) und (3.95). Aufgrund der in Kapitel 3 eingeführten Bilanzgleichungen muss zudem

$$\langle \sigma \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \sigma^{(m)} = \sigma^{\text{ext}} \quad (5.29)$$

gelten und die mittlere dielektrische Verschiebung lautet:

$$\langle D \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M D^{(m)}. \quad (5.30)$$

Bei diesem eindimensionalen Beispiel wird die Interaktion zwischen den Stäben durch die einheitliche Verzerrung  $\langle \varepsilon \rangle$  und elektrische Feldstärke  $E^{\text{ext}}$  realisiert. Kontinuumsmechanisch interpretiert liegt hier eine generalisierte VOIGT - Approximation zugrunde. Werden nun die konstitutiven Beziehungen, Gln. (3.94) und (3.95), in die Gln. (5.29) und (5.30) eingesetzt, so folgt für  $\langle \sigma \rangle$  und  $\langle D \rangle$ :

$$\langle \sigma \rangle = \langle C \rangle \bar{\varepsilon} - \langle C \varepsilon^{\text{irr}} \rangle - \langle e \rangle \bar{E}, \quad (5.31)$$

$$\langle D \rangle = \langle e \rangle \bar{\varepsilon} - \langle e \varepsilon^{\text{irr}} \rangle + \langle \kappa \rangle \bar{E} + \langle P^{\text{irr}} \rangle. \quad (5.32)$$

Größen welche für die Homogenisierung konstant gehalten werden, sind nachfolgend mit einem  $\bar{\bullet}$  gekennzeichnet. Nach Abb. 5.6 werden dort die Spannung und elektrische Feldstärke als äußere Lasten vorgegeben, d. h.  $\langle \sigma \rangle = \sigma^{\text{ext}}$  und  $\bar{E} = E^{\text{ext}}$ . Somit kann die Verzerrung  $\bar{\varepsilon} = \langle \varepsilon \rangle$  aus Gl. (5.31) bestimmt werden. Die Eigenspannung  $\sigma^{(m)}$  eines Stabes  $m$  lautet daher:

$$\sigma^{(m)} = C^{(m)} \left( \underbrace{\langle C \rangle^{-1} \left( \sigma^{\text{ext}} + \langle C \varepsilon^{\text{irr}} \rangle + \langle e \rangle E^{\text{ext}} \right)}_{\bar{\varepsilon}} - \varepsilon^{\text{irr}(m)} \right) - e^{(m)} E^{\text{ext}}. \quad (5.33)$$

Mit Hilfe der Verzerrung  $\bar{\varepsilon}$  in Gl. (5.33) wird eine Interaktion zwischen den einzelnen Stäben realisiert, da der Term  $\bar{\varepsilon}$  sowohl die Materialeigenschaften und irreversiblen Größen aller Stäbe als auch die äußeren Lasten enthält. Analog zu Gl. (5.33) kann so auch die dielektrische Verschiebung  $D^{(m)}$  des einzelnen Stabes oder durch Einsetzen von  $\bar{\varepsilon}$  in Gl. (5.32) die dielektrische Verschiebung des Gesamtsystems bestimmt werden.

Für eine generelle kontinuumsmechanische Formulierung sind die Größen Verzerrung  $\varepsilon_{kl}$ , elektrische Feldstärke  $E_i$ , Spannung  $\sigma_{ij}$  und dielektrische Verschiebung  $D_i$  als tensorielle Größen einzuführen. Es sind drei generalisierte Approximationen möglich: Die erste Möglichkeit ist eine generalisierte VOIGT - Approximation. Hier sind Verzerrung und elektrische Feldstärke homogen im RVE und somit in jedem Korn  $m$  identisch:

$$\langle \varepsilon_{kl} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \varepsilon_{kl}^{(m)} = \varepsilon_{kl}^{(m)} = \bar{\varepsilon}_{kl}, \quad \langle E_i \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M E_i^{(m)} = E_i^{(m)} = \bar{E}_i. \quad (5.34)$$

Eine zweite Möglichkeit ist eine gemischte REUSS/VOIGT - Approximation, wo für Verzerrung und dielektrische Verschiebung

$$\langle \varepsilon_{kl} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \varepsilon_{kl}^{(m)} = \varepsilon_{kl}^{(m)} = \bar{\varepsilon}_{kl}, \quad \langle D_i \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M D_i^{(m)} = D_i^{(m)} = \bar{D}_i \quad (5.35)$$

im RVE gilt. Die dritte Variante ist eine generalisierte REUSS - Approximation.

Hier wird für Spannung und dielektrische Verschiebung des RVE

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \sigma_{ij}^{(m)} = \sigma_{ij}^{(m)} = \bar{\sigma}_{ij}, \quad \langle D_i \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M D_i^{(m)} = D_i^{(m)} = \bar{D}_i \quad (5.36)$$

angenommen. Nachfolgend wird auf die Approximationen näher eingegangen. Die REUSS - Approximation (5.36) ist für die Zielstellung der Arbeit ungeeignet, da diese keine Eigenspannungen infolge von Domänenwandverschiebungen hervorbringt. Somit sind auch gemischte Approximationen, welche ein  $\bar{\sigma}_{ij} = \text{const}$  fordern, für den weiteren Verlauf nicht von Interesse und werden daher nicht näher betrachtet.

#### 5.1.4.1 Generalisierte Voigt - Approximation

Um die Korninteraktion auf Basis einer generalisierten VOIGT - Approximation (5.34) und die daraus resultierenden Eigenspannungen  $\sigma_{ij}^{(m)}$  sowie dielektrischen Verschiebungen  $D_i^{(m)}$  zu berechnen, müssen die konstitutiven Gleichungen (3.94) und (3.95) zunächst für ein Korn  $m$  angeschrieben werden:

$$\sigma_{ij}^{(m)} = C_{ijkl}^{(m)} \left( \varepsilon_{kl}^{(m)} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} \right) - e_{lij}^{(m)} E_l^{(m)}, \quad (5.37)$$

$$D_i^{(m)} = e_{ikl}^{(m)} \left( \varepsilon_{kl}^{(m)} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} \right) + \kappa_{il}^{(m)} E_l^{(m)} + P_i^{\text{irr}(m)}. \quad (5.38)$$

Die Materialtensoren sowie die irreversiblen Größen der Gln. (5.37) und (5.38) folgen aus den Gln. (5.2) und (5.3). Zunächst sind die makroskopischen konstitutiven Gleichungen des RVE zu bestimmen. Unter Berücksichtigung von Gl. (5.20) und Gl. (5.37) folgt nach LANGE und RICOEUR [90] für die makroskopische Spannung  $\langle \sigma_{ij} \rangle$ :

$$\begin{aligned} \langle \sigma_{ij} \rangle &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \sigma_{ij}^{(m)} \\ &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( C_{ijkl}^{(m)} \left( \varepsilon_{kl}^{(m)} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} \right) - e_{lij}^{(m)} E_l^{(m)} \right) \\ &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M C_{ijkl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{(m)} - \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M C_{ijkl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} - \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M e_{lij}^{(m)} E_l^{(m)}. \end{aligned} \quad (5.39)$$

Werden ferner die Gln. (5.21) und (5.34) angewendet, so vereinfacht sich Gl. (5.39) zu:

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \langle C_{ijkl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} - \langle e_{lij} \rangle \bar{E}_l - \langle C_{ijkl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \rangle. \quad (5.40)$$

Die makroskopische dielektrische Verschiebung  $\langle D_i \rangle$  folgt ebenfalls aus Gl. (5.20) und Gl. (5.38):

$$\begin{aligned}
 \langle D_i \rangle &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M D_i^{(m)} \\
 &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( e_{ikl}^{(m)} \left( \varepsilon_{kl}^{(m)} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} \right) + \kappa_{il}^{(m)} E_l^{(m)} + P_i^{\text{irr}(m)} \right) \\
 &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M e_{ikl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{(m)} - \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M e_{ikl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} + \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \kappa_{il}^{(m)} E_l^{(m)} + \\
 &\quad + \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M P_i^{\text{irr}(m)}.
 \end{aligned} \tag{5.41}$$

Werden, analog zur makroskopischen Spannung  $\langle \sigma_{ij} \rangle$ , die Gln. (5.21) und (5.34) in Gl. (5.41) berücksichtigt, so folgt die Beziehung

$$\langle D_i \rangle = \langle e_{ikl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} + \langle \kappa_{il} \rangle \bar{E}_l - \langle e_{ikl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \rangle + \langle P_i^{\text{irr}} \rangle. \tag{5.42}$$

Die Gln. (5.40) und (5.42) sind die makroskopischen konstitutiven Gleichungen eines repräsentativen Volumenelements unter Berücksichtigung einer generalisierten VOIGT-Approximation (5.34). Abhängig von der abzubildenden Randwertaufgabe sind die unbekannteren Größen aus der makroskopischen Spannung  $\langle \sigma_{ij} \rangle$ , dielektrischen Verschiebung  $\langle D_i \rangle$ , Verzerrung  $\bar{\varepsilon}_{kl}$  und elektrischen Feldstärke  $\bar{E}_l$  zu wählen.

Ausgehend von den aufgeprägten äußeren Feldern ergeben sich bei einem ferroelektrischen Problem vier mögliche Kombinationen:  $\bar{\varepsilon}_{kl} = \varepsilon_{kl}^{\text{ext}}$  und  $\bar{E}_l = E_l^{\text{ext}}$ ,  $\langle \sigma_{ij} \rangle = \sigma_{ij}^{\text{ext}}$  und  $\langle D_i \rangle = D_i^{\text{ext}}$ ,  $\bar{\varepsilon}_{kl} = \varepsilon_{kl}^{\text{ext}}$  und  $\langle D_i \rangle = D_i^{\text{ext}}$  sowie  $\langle \sigma_{ij} \rangle = \sigma_{ij}^{\text{ext}}$  und  $\bar{E}_l = E_l^{\text{ext}}$ . In experimentellen Untersuchungen wird bei der Vorgabe äußerer Felder entweder von  $\bar{\varepsilon}_{kl} = \varepsilon_{kl}^{\text{ext}}$  und  $\bar{E}_l = E_l^{\text{ext}}$  oder  $\langle \sigma_{ij} \rangle = \sigma_{ij}^{\text{ext}}$  und  $\bar{E}_l = E_l^{\text{ext}}$  ausgegangen. Dies hängt damit zusammen, dass ein elektrisches Potential einfacher aufzuprägen ist als eine Oberflächenladung. Im Hinblick auf experimentelle Untersuchungen wird nachfolgend auf diese beiden Kombinationen eingegangen.

Mit  $\bar{\varepsilon}_{kl} = \varepsilon_{kl}^{\text{ext}}$  und  $\bar{E}_l = E_l^{\text{ext}}$  als aufgeprägte Größen können die makroskopischen assoziierten Größen  $\langle \sigma_{ij} \rangle$  und  $\langle D_i \rangle$  direkt aus den Gln. (5.40) und (5.42) bestimmt werden. Da sowohl die irreversiblen Größen  $\varepsilon_{kl}^{\text{irr}}$  und  $P_i^{\text{irr}}$  als auch die Materialtensoren  $\langle C_{ijkl} \rangle$ ,  $\langle e_{ikl} \rangle$  und  $\langle \kappa_{il} \rangle$  von den inneren Variablen  $\nu^{(n)}$  abhängen, ist, unabhängig von den aufgeprägten Größen, ein iterativer Prozess erforderlich. Die Eigenspannungen  $\sigma_{ij}^{(m)}$  und die dielektrischen Verschiebungen  $D_i^{(m)}$  eines Kornes  $m$  folgen unter Berücksichtigung von  $\varepsilon_{kl}^{(m)} = \bar{\varepsilon}_{kl} = \varepsilon_{kl}^{\text{ext}}$  und  $E_l^{(m)} = \bar{E}_l = E_l^{\text{ext}}$  unmittelbar aus den Gln. (5.37) und (5.38).

Wird von  $\langle \sigma_{ij} \rangle = \sigma_{ij}^{\text{ext}}$  und  $\bar{E}_l = E_l^{\text{ext}}$  als aufgeprägte Felder ausgegangen, so folgt die makroskopische Verzerrung aus Gl. (5.40):

$$\bar{\varepsilon}_{kl} = \langle C_{ijkl} \rangle^{-1} \left( \sigma_{ij}^{\text{ext}} + \langle C_{ijmn} \varepsilon_{mn}^{\text{irr}} \rangle + \langle e_{mij} \rangle \bar{E}_m \right). \tag{5.43}$$

Ausgehend von Gl. (5.43) können nun die Eigenspannungen  $\sigma_{ij}^{(m)}$  sowie die dielektrischen Verschiebungen  $D_i^{(m)}$  eines lokalen materiellen Punktes  $m$  aus den Gln. (5.37)

und (5.38) bestimmt werden:

$$\sigma_{ij}^{(m)} = C_{ijkl}^{(m)} \left( \langle C_{mnkl} \rangle^{-1} \left( \sigma_{mn}^{\text{ext}} + \langle C_{mnop} \varepsilon_{op}^{\text{irr}} \rangle + \langle e_{pmn} \rangle E_p^{\text{ext}} \right) - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} \right) - e_{ij}^{(m)} E_l^{\text{ext}}, \quad (5.44)$$

$$D_i^{(m)} = e_{ikl}^{(m)} \left( \langle C_{mnkl} \rangle^{-1} \left( \sigma_{mn}^{\text{ext}} + \langle C_{mnop} \varepsilon_{op}^{\text{irr}} \rangle + \langle e_{pmn} \rangle E_p^{\text{ext}} \right) - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} \right) + \kappa_{il}^{(m)} E_l^{\text{ext}} + P_i^{\text{irr}}. \quad (5.45)$$

Die makroskopische dielektrische Verschiebung  $\langle D_i \rangle$  folgt aus Gl. (5.20) in Verbindung mit Gl. (5.45) oder direkt durch einsetzen von Gl. (5.43) in Gl. (5.42) unter Berücksichtigung von  $\overline{E}_l = E_l^{\text{ext}}$ .

### 5.1.4.2 Generalisierte Reuss/Voigt - Approximation

Für die Anwendung der generalisierten REUSS/VOIGT - Approximation nach Gl. (5.35) müssen die konstitutiven Gleichungen (3.94) und (3.95), bei Vernachlässigung magnetischer Einflüsse, als Funktion der unabhängigen Variablen Verzerrung  $\varepsilon_{kl}$  und dielektrische Verschiebung  $D_i$  formuliert werden. Die elektrische Feldstärke folgt aus Gl. (3.95):

$$E_i = -\alpha_{ikl} \left( \varepsilon_{kl} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \right) + \gamma_{il} \left( D_l - P_l^{\text{irr}} \right). \quad (5.46)$$

Die Spannung  $\sigma_{ij}$ , mit den unabhängigen Größen Verzerrung  $\varepsilon_{kl}$  und dielektrischer Verschiebung  $D_l$ , folgt durch einsetzen von Gl. (5.46) in Gl. (3.94):

$$\sigma_{ij} = \chi_{ijkl} \left( \varepsilon_{kl} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \right) - \alpha_{lij} \left( D_l - P_l^{\text{irr}} \right). \quad (5.47)$$

Die Gln. (5.46) und (5.47) sind in dieser Form z. B. auch in [57, 63] zu finden, wobei die Größen  $\chi_{ijkl}$ ,  $\alpha_{ikl}$  und  $\gamma_{ij}$  die elastischen, piezoelektrischen und inversen dielektrischen Eigenschaften beschreiben. Die Zusammenhänge mit  $C_{ijkl}$ ,  $e_{ikl}$  und  $\kappa_{ij}$  lauten:

$$\chi_{ijkl} = C_{ijkl} + e_{mij} \kappa_{nm}^{-1} e_{nkl}, \quad \alpha_{ikl} = \kappa_{ji}^{-1} e_{jkl}, \quad \gamma_{ij} = \kappa_{ij}^{-1}. \quad (5.48)$$

Ein Vergleich der Gln. (3.94) und (3.95) mit den Gln. (5.46) und (5.47) macht deutlich, dass die Spannung  $\sigma_{ij}$  neben der irreversiblen Verzerrung  $\varepsilon_{kl}^{\text{irr}}$  nun auch von der irreversiblen Polarisation  $P_i^{\text{irr}}$  abhängt. Inwieweit sich dies auf die makroskopischen Größen auswirkt, wird in Kapitel 7 untersucht.

Gemäß der in Abschnitt 5.1.3 eingeführten Volumenmittelung gilt für die assoziierten makroskopischen Größen Spannung  $\langle \sigma_{ij} \rangle$  und elektrische Feldstärke  $\langle E_i \rangle$ :

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \sigma_{ij}^{(m)}, \quad \langle E_i \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M E_i^{(m)}. \quad (5.49)$$

Die konstitutiven Gleichungen (5.46) und (5.47) lauten für ein Korn  $m$ :

$$\sigma_{ij}^{(m)} = \chi_{ijkl}^{(m)} (\varepsilon_{kl}^{(m)} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)}) - \alpha_{lij}^{(m)} (D_l^{(m)} - P_l^{\text{irr}(m)}), \quad (5.50)$$

$$E_i^{(m)} = -\alpha_{ikl}^{(m)} (\varepsilon_{kl}^{(m)} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)}) + \gamma_{il}^{(m)} (D_l^{(m)} - P_l^{\text{irr}(m)}). \quad (5.51)$$

Gesucht werden, der Vorgehensweise der generalisierten VOIGT - Approximation in Abschnitt 5.1.4.1 folgend, die makroskopischen konstitutiven Gleichungen. Die makroskopische Spannung  $\langle \sigma_{ij} \rangle$  ergibt sich durch Anwendung der Gln. (5.49) und (5.50):

$$\begin{aligned} \langle \sigma_{ij} \rangle &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \sigma_{ij}^{(m)} \\ &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( \chi_{ijkl}^{(m)} (\varepsilon_{kl}^{(m)} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)}) - \alpha_{lij}^{(m)} (D_l^{(m)} - P_l^{\text{irr}(m)}) \right) \\ &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \chi_{ijkl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{(m)} - \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \chi_{ijkl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} - \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \alpha_{lij}^{(m)} D_l^{(m)} + \\ &\quad + \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \alpha_{lij}^{(m)} P_l^{\text{irr}(m)}, \end{aligned} \quad (5.52)$$

wobei Gl. (5.52) sich durch die Annahme einer generalisierten REUSS/VOIGT - Approximation (5.35) zu

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \langle \chi_{ijkl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} - \langle \alpha_{lij} \rangle \bar{D}_l - \langle \chi_{ijkl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \rangle + \langle \alpha_{lij} P_l^{\text{irr}} \rangle \quad (5.53)$$

vereinfachen lässt. Für die makroskopische elektrische Feldstärke  $\langle E_i \rangle$  folgt aus den Gln. (5.49) und (5.51):

$$\begin{aligned} \langle E_i \rangle &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M E_i^{(m)} \\ &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( -\alpha_{ikl}^{(m)} (\varepsilon_{kl}^{(m)} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)}) + \gamma_{il}^{(m)} (D_l^{(m)} - P_l^{\text{irr}(m)}) \right) \\ &= -\frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \alpha_{ikl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{(m)} + \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \alpha_{ikl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} + \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \gamma_{il}^{(m)} D_l^{(m)} - \\ &\quad - \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \gamma_{il}^{(m)} P_l^{\text{irr}(m)}. \end{aligned} \quad (5.54)$$

Analog zu Gl. (5.52) lässt sich auch Gl. (5.54) unter Berücksichtigung von Gl. (5.35) überführen in:

$$\langle E_i \rangle = -\langle \alpha_{ikl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} + \langle \gamma_{il} \rangle \bar{D}_l + \langle \alpha_{ikl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \rangle - \langle \gamma_{il} P_l^{\text{irr}} \rangle. \quad (5.55)$$

Auf eine ausführliche Diskussion von aufgeprägten Feldern für abzubildende Randwertaufgaben wird an dieser Stelle verzichtet, da den in Kapitel 7 gezeigten Ergebnissen für eine generalisierte REUSS/VOIGT - Approximation als aufgeprägte



Felder  $\langle \sigma_{ij} \rangle = \sigma_{ij}^{\text{ext}}$  und  $\langle E_i \rangle = E_i^{\text{ext}}$  zugrunde liegen. Nach Gl. (5.53) folgt daraus für die Verzerrung  $\bar{\varepsilon}_{kl}$ :

$$\bar{\varepsilon}_{kl} = \langle \chi_{ijkl} \rangle^{-1} \left( \sigma_{ij}^{\text{ext}} + \langle \chi_{ijmn} \varepsilon_{mn}^{\text{irr}} \rangle + \langle \alpha_{mij} \rangle \bar{D}_m - \langle \alpha_{mij} P_m^{\text{irr}} \rangle \right). \quad (5.56)$$

Die in Gl. (5.56) noch unbekannte makroskopische dielektrische Verschiebung  $\bar{D}_p$  folgt aus den Gln. (5.55) und (5.56):

$$\begin{aligned} \bar{D}_i = & \left( \langle \gamma_{ij} \rangle - \langle \alpha_{ikl} \rangle \langle \chi_{klmn} \rangle^{-1} \langle \alpha_{jmn} \rangle \right)^{-1} \left( E_j^{\text{ext}} + \langle \alpha_{jop} \rangle \langle \chi_{opqr} \rangle^{-1} \left( \sigma_{qr}^{\text{ext}} + \right. \right. \\ & \left. \left. + \langle \chi_{qrst} \varepsilon_{st}^{\text{irr}} \rangle - \langle \alpha_{sqr} P_s^{\text{irr}} \rangle \right) - \langle \alpha_{jop} \varepsilon_{op}^{\text{irr}} \rangle + \langle \gamma_{jp} P_p^{\text{irr}} \rangle \right). \end{aligned} \quad (5.57)$$

Mit Hilfe der Gln. (5.50), (5.51), (5.56) und (5.57) lassen sich nun die Eigenspannungen  $\sigma_{ij}^{(m)}$  sowie die elektrische Feldstärke  $E_i^{(m)}$  eines Kornes  $m$  berechnen.

## 5.2 Ferromagnetisches Materialverhalten

Gegenstand dieses Abschnittes ist die Modellierung nichtlinearen ferromagnetischen Materialverhaltens. Diese beschränkt sich auf Hartmagnete. Zur Modellierung von Hartmagneten wird ausschließlich der zweite Bereich gemäß Abb. 2.10(b) betrachtet. Die irreversiblen Prozesse, infolge der sogenannten BARKHAUSEN-Sprünge [4, 100], werden mit Hilfe eines mikrophysikalischen Modells analog dem für ferroelektrische Materialien abgebildet, s. Abschnitt 5.1.1 sowie [4]. Die reversiblen Bereiche eins, drei und vier werden in der vorliegenden Arbeit nicht näher betrachtet. Bei Annahme eines ebenen Problems liegen vier WEISSsche Bezirke vor, die jeweils diskrete Umklapporientierungen um  $\pm 90^\circ$  odere  $180^\circ$  aufweisen können. Die Volumenanteile werden weiterhin durch die inneren Variablen  $\nu^{(n)}$  beschrieben, die die Bedingungen nach Gl. (5.1) erfüllen müssen. Bei ferromagnetischen Materialien gilt für die Änderung der irreversiblen Größen der Makroskala, in Anlehnung an Gl. (5.2):

$$d\varepsilon_{kl}^{\text{irr}} = \sum_{n=1}^4 \varepsilon_{kl}^{\text{sp}(n)} d\nu^{(n)}, \quad dM_i^{\text{irr}} = \sum_{n=1}^4 \Delta M_i^{\text{sp}(n)} d\nu^{(n)}. \quad (5.58)$$

Auf die Bestimmung von  $\Delta M_i^{\text{sp}}$  wurde in Kapitel 4 nicht explizit eingegangen. Da das Modell zur Darstellung nichtlinearen ferromagnetischen Materialverhaltens an das der Ferroelektrika angelehnt ist, handelt es sich bei  $\Delta M_i^{\text{sp}}$  um das Äquivalent zu  $\Delta P_i^{\text{sp}}$ . Wie auch bei ferroelektrischen Materialien führt die inkrementelle Änderung der inneren Variablen  $d\nu^{(n)}$  zu einer schrittweisen Änderung der inelastischen Verzerrung  $d\varepsilon_{kl}^{\text{irr}}$  und Magnetisierung  $dM_i^{\text{irr}}$ . Aus den gewichteten Mittelwerten, in Anlehnung an Gl. (5.3), ergeben sich die effektiven Materialeigenschaften eines ferromagnetischen Kornes:

$$C_{ijkl} = \sum_{n=1}^4 C_{ijkl}^{(n)} \nu^{(n)}, \quad \kappa_{ij} = \sum_{n=1}^4 \kappa_{ij}^{(n)} \nu^{(n)}, \quad \mu_{ij} = \sum_{n=1}^4 \mu_{ij}^{(n)} \nu^{(n)}, \quad (5.59)$$

wobei  $C_{ijkl}^{(n)}$ ,  $\kappa_{ij}^{(n)}$  und  $\mu_{ij}^{(n)}$  die elastischen, dielektrischen und magnetischen Eigenschaften des WEISSschen Bezirkes  $n$  repräsentieren. Dielektrische Koeffizienten werden, ebenso wie später dielektrische Verschiebungen, eingeführt, um Anwendungen des Modells in magnetoelastischen Kompositen zu ermöglichen. Dabei wird stets von nicht-leitenden Ferromagnetika ausgegangen.

Das Umklappkriterium (5.4) sowie das Evolutionsgesetz der inneren Variablen (5.13) gilt in dieser allgemeinen Form auch für ferromagnetisches Materialverhalten. Aufbauend auf Gl. (5.5) und [5] folgend, gilt für die dissipative Arbeit:

$$w_{(\beta)}^{\text{diss}(n)} = \sigma_{ij} \varepsilon_{ij(\beta)}^{\text{sp}(n)} + H_i \Delta M_{i(\beta)}^{\text{sp}(n)}. \quad (5.60)$$

Die Berechnung der Energiebarrieren  $w_{(\beta)}^{\text{crit}}$  erfolgt analog zu der in Abschnitt 5.1.2 beschriebenen Vorgehensweise. Da in Verbindung mit ferromagnetischen Materialien ausschließlich Rotationen der Elementarmagnete von  $\pm 90^\circ$  und  $180^\circ$  betrachtet werden, gilt für die entsprechenden Energiebarrieren:

$$w_{(\pm 90^\circ)}^{\text{crit}} = \sqrt{2} M^0 H_c, \quad w_{(180^\circ)}^{\text{crit}} = 2 M^0 H_c. \quad (5.61)$$

Hinsichtlich der zu wählenden Approximation nach den Gln. (5.34), (5.35) und (5.36) wird bei der Modellierung von ferromagnetischem Materialverhalten ausschließlich die VOIGT - Approximation angewendet. Wie auch bei Ferroelektrika ist eine generalisiert REUSS - Approximation keine sinnvolle Wahl, da auch bei Ferromagnetika eine Interaktion durch Eigenspannungen der lokalen materiellen Punkte realisiert werden soll. Eine REUSS/VOIGT - Approximation, wo von konstanter Verzerrung und magnetischer Induktion ausgegangen wird, ist umsetzbar, wird aber dennoch nicht weiter verfolgt.

Für makroskopische Verzerrung  $\langle \varepsilon_{kl} \rangle$  und elektrische Feldstärke  $\langle E_i \rangle$  gilt weiterhin Gl. (5.34). Die makroskopische magnetische Feldstärke  $\langle H_i \rangle$  ist gegeben durch:

$$\langle H_i \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M H_i^{(m)} = H_i^{(m)} = \bar{H}_i. \quad (5.62)$$

Analog der Vorgehensweise bei ferroelektrischen Materialien werden auch bei der Modellierung von Ferromagnetika die einzelnen Körner  $m$  als Teilvolumina  $V^{(m)}$  des Volumenbereichs  $V$  angesehen. Für die assoziierten makroskopischen Größen  $\langle \sigma_{ij} \rangle$ ,  $\langle B_i \rangle$  und  $\langle D_i \rangle$ , Abschnitt 5.1.3 und [53] folgend, gilt:

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \sigma_{ij}^{(m)}, \quad \langle B_i \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M B_i^{(m)}, \quad \langle D_i \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M D_i^{(m)}. \quad (5.63)$$

Die ferromagnetischen konstitutiven Gleichungen folgen aus den Gln. (3.94) bis (3.96), wobei  $e_{ikl}$ ,  $q_{ikl}$ ,  $g_{ij} = 0$  und  $P_i^{\text{irr}} = 0$  gilt. Somit reduzieren sich die allgemeinen

konstitutiven Gleichungen für ein Korn  $m$  auf:

$$\sigma_{ij}^{(m)} = C_{ijkl}^{(m)} (\varepsilon_{kl}^{(m)} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)}), \quad (5.64)$$

$$B_i^{(m)} = \mu_{ij}^{(m)} H_j^{(m)} + M_i^{\text{irr}(m)}, \quad (5.65)$$

$$D_i^{(m)} = \kappa_{ij}^{(m)} E_j^{(m)}. \quad (5.66)$$

Das zu Null setzen der magnetostriktiven Koeffizienten in den Gln. (5.64) und (5.65) wird durch das makroskopische Materialverhalten von Ferromagnetika begründet. Diese zeigen für hohe magnetische Feldstärken eine Sättigung in der Schmetterlingshysterese, s. auch Abb. 2.11(b). Von Null verschiedene magnetostriktive Koeffizienten würden aufgrund des linearen Zusammenhangs von magnetostriktiven Eigenschaften und magnetischer Feldstärke zu einem linearen Verhalten bei hohen magnetischen Feldstärken führen. Bei dem hier vorgestellten Modell werden die glatten Hysteresen von Ferromagnetika durch die irreversiblen Beiträge von Verzerrung  $\varepsilon_{kl}^{\text{irr}}$  und Magnetisierung  $M_i^{\text{irr}}$  infolge der Rotationen der Elementarmagnete dargestellt. Für die makroskopischen Größen nach Gl. (5.63) folgt unter Berücksichtigung der Gln. (5.34), (5.62) sowie (5.64) bis (5.66):

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \langle C_{ijkl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} - \langle C_{ijkl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \rangle, \quad (5.67)$$

$$\langle B_i \rangle = \langle \mu_{ij} \rangle \bar{H}_j + \langle M_i^{\text{irr}} \rangle, \quad (5.68)$$

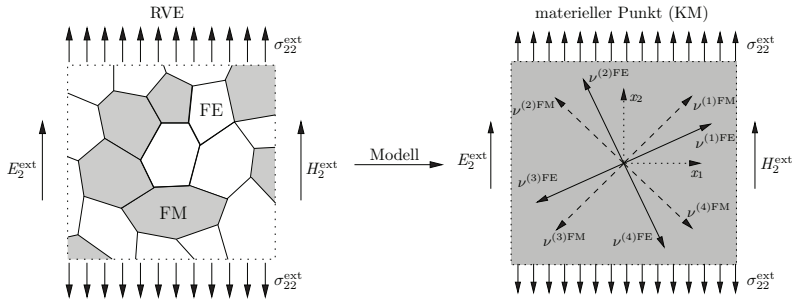
$$\langle D_i \rangle = \langle \kappa_{ij} \rangle \bar{E}_j. \quad (5.69)$$

Ausgehend von der abzubildenden Randwertaufgabe sind die aufgeprägten Felder aus den unbekanntenen Größen  $\langle \sigma_{ij} \rangle$ ,  $\langle B_i \rangle$ ,  $\langle D_i \rangle$ ,  $\bar{\varepsilon}_{kl}$ ,  $\bar{H}_j$  und  $\bar{E}_j$  zu wählen. Die Vorgehensweise wurde für eine generalisierte VOIGT - Approximation bei Ferroelektrika, s. Abschnitt 5.1.4.1, erläutert. Da das Vorgehen dem der Ferroelektrika analog ist, wird hier auf eine ausführliche Erläuterung verzichtet.

### 5.3 Ferroelektrisch-ferromagnetisches Komposit

In diesem Abschnitt werden zwei kondensierte Modelle für ein multiferroisches Komposit vorgestellt. Das erste Modell berücksichtigt ausschließlich lineares Verhalten für das ferroelektrische und -magnetische Material. Im zweiten Modell wird für beide Komponenten nichtlineares Materialverhalten angenommen. Ziel dieser Modelle ist die Vorhersage magnetoelektrischer Kopplungskoeffizienten.

In Abb. 5.7 ist ein RVE eines multiferroischen Komposits unter elektromagnetomechanischer Beanspruchung und die Umsetzung in der KM schematisch dargestellt. Graue Körner stellen ferromagnetisches Material dar, weiße Körner ferroelektrisches. Somit entspricht in der KM ein Polarisationskreuz nach Abb. 5.2 entweder dem ferroelektrischen oder dem ferromagnetischen Material. Das in Abb. 5.7 dargestellte RVE ähnelt einem 0-3 Partikelkomposit mit ausgeglichenem Volumenverhältnis beider Komponenten, wie es z. B. in [4, 85] mit der FEM untersucht wird. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass mit der KM ein Komposit nicht eins zu eins abgebildet werden kann. Dies wird schon dadurch begründet, dass die KM eine diskretisierungsfreie Methode ist und somit Effekte welche aus der räum-



**Abb. 5.7** Schematische Darstellung eines repräsentativen Volumenelementes eines multiferroischen Komposits unter elektromagnetomechanischer Beanspruchung (FE: ferroelektrisch, FM: ferromagnetisch)

lichen Anordnung resultieren nicht berücksichtigt werden können. Auf der anderen Seite ist es sehr wohl möglich wichtige Aspekte wie die Kopplung der elektrischen und magnetischen Feldstärke, in Folge der auftretenden mechanischen Spannungen, abzubilden. In wie weit ein kondensiertes Modell zur Vorhersage von magnetoelektrischer Kopplung verwendet werden kann, wird in Kapitel 7 untersucht.

Hinsichtlich der Berechnung der assoziierter Größen gilt Gl. (5.63). Trotzdem das ein Komposit aus mehreren Materialien besteht, hat Gl. (5.63) weiterhin Gültigkeit, da alle Körner, unabhängig vom Material, über dasselbe Volumen verfügen, d. h.  $V_{\text{FE}}^{(m)} = V_{\text{FM}}^{(m)} = V^{(m)}$  und  $V = M_{\text{FE}} V_{\text{FE}}^{(m)} + M_{\text{FM}} V_{\text{FM}}^{(m)} = MV^{(m)}$ .

### 5.3.1 Lineares Materialverhalten

Zur Berechnung der magnetoelektrischen Kopplungseigenschaften eines linearen multiferroischen Komposits sind die konstitutiven Gleichungen für einen lokalen materiellen Punkt  $m$  durch

$$\sigma_{ij}^{(m)} = C_{ijkl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{(m)} - e_{lij}^{(m)} E_l^{(m)} - q_{lij}^{(m)} H_l^{(m)}, \quad (5.70)$$

$$D_i^{(m)} = e_{ikl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{(m)} + \kappa_{il}^{(m)} E_l^{(m)}, \quad (5.71)$$

$$B_i^{(m)} = q_{ikl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{(m)} + \mu_{il}^{(m)} H_l^{(m)} \quad (5.72)$$

gegeben, s. [5, 85, 142]. Die Gln. (5.70) bis (5.72) sind in allgemeiner Form für sowohl die ferroelektrischen als auch -magnetischen Komponenten angeschrieben, d. h. für einen ferroelektrischen materiellen Punkt ist der magnetostriktive Tensor  $q_{lij}^{(m)}$  Null, entsprechend verschwindet der piezoelektrische  $e_{lij}^{(m)}$  bei ferromagnetischen materiellen Punkten. In Kapitel 3 wurde ferner noch der magnetoelektrische Materialtensor eingeführt. Auf diesen wird in den Gln. (5.70) bis (5.72) verzichtet, da die entsprechenden Kopplungseigenschaften nicht in den einzelnen Komponenten sondern in Folge der mechanisch induzierten Kopplungseffekte nur im Komposit auftreten.

Die makroskopischen konstitutiven Gleichungen für  $\langle \sigma_{ij} \rangle$ ,  $\langle D_i \rangle$  und  $\langle B_i \rangle$  folgen

aus Gl. (5.63), mit  $M = M_{\text{FE}} + M_{\text{FM}}$ , sowie den Gln. (5.70) bis (5.72):

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \frac{1}{M} \left( \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} C_{ijkl}^{(m_{\text{FE}})} \varepsilon_{kl}^{(m_{\text{FE}})} + \sum_{m_{\text{FM}}=1}^{M_{\text{FM}}} C_{ijkl}^{(m_{\text{FM}})} \varepsilon_{kl}^{(m_{\text{FM}})} - \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} e_{lij}^{(m_{\text{FE}})} E_l^{(m_{\text{FE}})} - \sum_{m_{\text{FM}}=1}^{M_{\text{FM}}} q_{lij}^{(m_{\text{FM}})} H_l^{(m_{\text{FM}})} \right), \quad (5.73)$$

$$\langle D_i \rangle = \frac{1}{M} \left( \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} e_{ikl}^{(m_{\text{FE}})} \varepsilon_{kl}^{(m_{\text{FE}})} + \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} \kappa_{il}^{(m_{\text{FE}})} E_l^{(m_{\text{FE}})} + \sum_{m_{\text{FM}}=1}^{M_{\text{FM}}} \kappa_{il}^{(m_{\text{FM}})} E_l^{(m_{\text{FM}})} \right), \quad (5.74)$$

$$\langle B_i \rangle = \frac{1}{M} \left( \sum_{m_{\text{FM}}=1}^{M_{\text{FM}}} q_{ikl}^{(m_{\text{FM}})} \varepsilon_{kl}^{(m_{\text{FM}})} + \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} \mu_{il}^{(m_{\text{FE}})} H_l^{(m_{\text{FE}})} + \sum_{m_{\text{FM}}=1}^{M_{\text{FM}}} \mu_{il}^{(m_{\text{FM}})} H_l^{(m_{\text{FM}})} \right). \quad (5.75)$$

Unter Berücksichtigung einer generalisierten VOIGT - Approximation, s. Gln. (5.34) und (5.62), gilt für die Gln. (5.73) bis (5.75):

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \langle C_{ijkl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} - \langle e_{lij} \rangle \bar{E}_l - \langle q_{lij} \rangle \bar{H}_l, \quad (5.76)$$

$$\langle D_i \rangle = \langle e_{ikl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} + \langle \kappa_{il} \rangle \bar{E}_l, \quad (5.77)$$

$$\langle B_i \rangle = \langle q_{ikl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} + \langle \mu_{il} \rangle \bar{H}_l. \quad (5.78)$$

Bei den makroskopischen konstitutiven Gleichungen (5.76) bis (5.78) ist zu beachten, dass der piezoelektrische und der magnetostriktive Tensor  $\langle e_{lij} \rangle$  und  $\langle q_{lij} \rangle$  aus der piezoelektrischen oder der piezomagnetischen Komponente hervorgehen, bei der Volumenmittelung allerdings auf die gesamte Anzahl aller materiellen Punkte  $M$  bezogen werden. Abhängig von den aufgeprägten Feldern sind die unbekanntenen Größen aus  $\langle \sigma_{ij} \rangle$ ,  $\langle D_i \rangle$ ,  $\langle B_i \rangle$ ,  $\bar{\varepsilon}_{kl}$ ,  $\bar{E}_i$  und  $\bar{H}_i$  zu wählen.

Die magnetoelektrische Kopplung tritt bei Kompositen infolge mechanisch induzierter Kopplungseffekte zwischen den ferroelektrischen und -magnetischen Komponenten auf. Wird von  $\langle \sigma_{ij} \rangle = \sigma_{ij}^{\text{ext}}$ ,  $\bar{E}_i = E_i^{\text{ext}}$  und  $\bar{H}_i = H_i^{\text{ext}}$  als aufgeprägte Felder ausgegangen, so folgt für die Verzerrung  $\bar{\varepsilon}_{kl}$  des RVE:

$$\bar{\varepsilon}_{kl} = \langle C_{ijkl} \rangle^{-1} \left( \sigma_{ij}^{\text{ext}} + \langle e_{mij} \rangle E_m^{\text{ext}} + \langle q_{mij} \rangle H_m^{\text{ext}} \right). \quad (5.79)$$

Einsetzen von Gl. (5.79) in die Gln. (5.77) und (5.78) führt für die dielektrische Verschiebung und magnetische Induktion des repräsentativen Volumenelements  $\langle D_i \rangle$

und  $\langle B_i \rangle$  zu:

$$\begin{aligned} \langle D_i \rangle &= \langle e_{ikl} \rangle \langle C_{mnkl} \rangle^{-1} \sigma_{mn}^{\text{ext}} + (\langle e_{ikl} \rangle \langle C_{mnkl} \rangle \langle e_{jmn} \rangle + \langle \kappa_{ij} \rangle) E_j^{\text{ext}} + \\ &\quad + \langle e_{ikl} \rangle \langle C_{mnkl} \rangle^{-1} \langle q_{jmn} \rangle H_j^{\text{ext}}, \end{aligned} \quad (5.80)$$

$$\begin{aligned} \langle B_i \rangle &= \langle q_{ikl} \rangle \langle C_{mnkl} \rangle^{-1} \sigma_{mn}^{\text{ext}} + \langle q_{ikl} \rangle \langle C_{mnkl} \rangle^{-1} \langle e_{jmn} \rangle E_j^{\text{ext}} + \\ &\quad + (\langle q_{ikl} \rangle \langle C_{mnkl} \rangle^{-1} \langle q_{jmn} \rangle + \langle \mu_{ij} \rangle) H_j^{\text{ext}}. \end{aligned} \quad (5.81)$$

Dielektrische Verschiebung und magnetische Induktion  $\langle D_i \rangle$  und  $\langle B_i \rangle$  in den Gln. (5.80) und (5.81) sind nun Funktionen der aufgeprägten Felder  $\sigma_{ij}^{\text{ext}}$ ,  $E_i^{\text{ext}}$  und  $H_i^{\text{ext}}$ . Für ein sich änderndes elektrisches Feld, bei  $\sigma_{ij}^{\text{ext}}, H_i^{\text{ext}} = \text{const}$ , folgt für die magnetoelektrische Kopplung  $\langle g_{ij}^{(\sigma,H)} \rangle$ :

$$\langle g_{ij}^{(\sigma,H)} \rangle = \left. \frac{\partial \langle B_i \rangle}{\partial E_j^{\text{ext}}} \right|_{\sigma,H} = \langle q_{ikl} \rangle \langle C_{mnkl} \rangle^{-1} \langle e_{jmn} \rangle \approx \left. \frac{\Delta \langle B_i \rangle}{\Delta E_j^{\text{ext}}} \right|_{\sigma,H}. \quad (5.82)$$

Analog dazu gilt für die magnetoelektrische Kopplung bei einem sich ändernden magnetischen Feld, mit  $\sigma_{ij}^{\text{ext}}, E_i^{\text{ext}} = \text{const}$ :

$$\langle g_{ij}^{(\sigma,E)} \rangle = \left. \frac{\partial \langle D_i \rangle}{\partial H_j^{\text{ext}}} \right|_{\sigma,E} = \langle e_{ikl} \rangle \langle C_{mnkl} \rangle^{-1} \langle q_{jmn} \rangle \approx \left. \frac{\Delta \langle D_i \rangle}{\Delta H_j^{\text{ext}}} \right|_{\sigma,E}. \quad (5.83)$$

Aus dem Vergleich der Gln. (5.82) und (5.83) geht hervor, dass die MAXWELL-Relation, welche besagt, dass die partiellen Differentiale bzw. die Quotienten der Gln. (5.82) und (5.83) dieselben Kopplungskoeffizienten hervorbringen müssen, erfüllt wird. Numerische Ergebnisse zur magnetoelektrischen Kopplung in multiferroischen Kompositen bei linearem Materialverhalten sind in Abschnitt 7.3 zu finden.

### 5.3.2 Nichtlineares Materialverhalten

Der Modellierung eines multiferroischen Kompositen mit nichtlinearem Materialverhalten liegen die konstitutiven Gleichungen (5.37) und (5.38) des ferroelektrischen und die Gln. (5.64) bis (5.66) des ferromagnetischen Materialverhaltens zugrunde. In Abschnitt 5.1 wurden die magnetischen Eigenschaften ferroelektrischer Materialien nicht berücksichtigt, da bei rein ferroelektrischen Randwertproblemen die Kopplung mit magnetischen Größen eine untergeordnete Rolle spielt.<sup>21</sup> Da diese Eigenschaften im weiteren Verlauf jedoch von Bedeutung sind, gelte für die magnetische Induktion eines lokalen materiellen Punktes  $m$  der ferroelektrischen Phase:

$$B_i^{(m)} = \mu_{ij}^{(m)} H_j^{(m)}, \quad (5.84)$$

wobei dieser Zusammenhang aus Gl. (3.96) mit  $q_{ikl}, g_{ij}, M_i^{\text{irr}} = 0$  folgt. Wie bereits in den Abschnitten 5.1, 5.2 und 5.3.1 sind die makroskopischen konstitutiven Gleichungen des RVE zu bestimmen. Die makroskopischen assoziierten Größen

<sup>21</sup>Eine schwache Kopplung liegt durch den Einfluss der inneren Variablen  $\nu^{(n)}$  auf die magnetische Permeabilität vor, s. Gl. (5.59)

$\langle \sigma_{ij} \rangle$ ,  $\langle D_i \rangle$  und  $\langle B_i \rangle$  sind durch Gl. (5.63) definiert. Unter Berücksichtigung der Gln. (5.37), (5.38) und (5.84) sowie (5.64) bis (5.66) folgt mit  $M = M_{\text{FE}} + M_{\text{FM}}$  für die makroskopischen Größen:

$$\begin{aligned} \langle \sigma_{ij} \rangle = & \frac{1}{M} \left( \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} C_{ijkl}^{(m_{\text{FE}})} \varepsilon_{kl}^{(m_{\text{FE}})} + \sum_{m_{\text{FM}}=1}^{M_{\text{FM}}} C_{ijkl}^{(m_{\text{FM}})} \varepsilon_{kl}^{(m_{\text{FM}})} - \right. \\ & - \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} C_{ijkl}^{(m_{\text{FE}})} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m_{\text{FE}})} - \sum_{m_{\text{FM}}=1}^{M_{\text{FM}}} C_{ijkl}^{(m_{\text{FM}})} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m_{\text{FM}})} - \\ & \left. - \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} e_{lij}^{(m_{\text{FE}})} E_l^{(m_{\text{FE}})} \right), \end{aligned} \quad (5.85)$$

$$\begin{aligned} \langle D_i \rangle = & \frac{1}{M} \left( \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} e_{ikl}^{(m_{\text{FE}})} \varepsilon_{kl}^{(m_{\text{FE}})} - \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} e_{ikl}^{(m_{\text{FE}})} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m_{\text{FE}})} + \right. \\ & + \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} \kappa_{il}^{(m_{\text{FE}})} E_l^{(m_{\text{FE}})} + \sum_{m_{\text{FM}}=1}^{M_{\text{FM}}} \kappa_{il}^{(m_{\text{FM}})} E_l^{(m_{\text{FM}})} + \\ & \left. + \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} P_i^{\text{irr}(m_{\text{FE}})} \right), \end{aligned} \quad (5.86)$$

$$\begin{aligned} \langle B_i \rangle = & \frac{1}{M} \left( \sum_{m_{\text{FE}}=1}^{M_{\text{FE}}} \mu_{ij}^{(m_{\text{FE}})} H_j^{(m_{\text{FE}})} + \sum_{m_{\text{FM}}=1}^{M_{\text{FM}}} \mu_{ij}^{(m_{\text{FM}})} H_j^{(m_{\text{FM}})} + \right. \\ & \left. + \sum_{m_{\text{FM}}=1}^{M_{\text{FM}}} M_i^{\text{irr}(m_{\text{FM}})} \right). \end{aligned} \quad (5.87)$$

Mit der generalisierten VOIGT - Approximation, s. Gln. (5.34) und (5.62), folgt für die makroskopischen Felder:

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \langle C_{ijkl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} - \langle e_{lij}^{\text{FE}} \rangle \bar{E}_l - \langle C_{ijkl}^{\text{FE}} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(\text{FE})} \rangle + \langle C_{ijkl}^{\text{FM}} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(\text{FM})} \rangle, \quad (5.88)$$

$$\langle D_i \rangle = \langle e_{ikl}^{\text{FE}} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} + \langle \kappa_{il} \rangle \bar{E}_l - \langle e_{ikl}^{\text{FE}} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(\text{FE})} \rangle + \langle P_i^{\text{irr}(\text{FE})} \rangle, \quad (5.89)$$

$$\langle B_i \rangle = \langle \mu_{ij} \rangle \bar{H}_j + \langle M_i^{\text{irr}(\text{FM})} \rangle. \quad (5.90)$$

Hier sei nochmals darauf hingewiesen, dass die makroskopischen Felder der Gln. (5.88) und (5.89) nicht explizit von der magnetischen Feldstärke abhängen. Dies ist zum einen dadurch begründet, dass die ferroelektrische Komponente über keine magnetostriktiven Eigenschaften verfügt, d. h.  $q_{lij}^{\text{FE}} = 0$ . Zum anderen wird gemäß Abschnitt 5.2 das nichtlineare ferromagnetische Materialverhalten ohne Berücksichtigung der magnetostriktiven Eigenschaften abgebildet. Die Annahme  $q_{lij}^{\text{FM}} = 0$  kann damit begründet werden, dass bei der Darstellung der Schmetterlingshysterese für Ferromagnetika ein  $q_{lij}^{\text{FM}} \neq 0$  zu einem linearen Verhalten, anstatt einer Sättigung, für große magnetische Feldstärken führt. Wie bereits in Abschnitt 5.3.1, diskutiert sind abhängig von den aufgeprägten Feldern die Unbekannten aus den makroskopischen Größen  $\langle \sigma_{ij} \rangle$ ,  $\langle D_i \rangle$ ,  $\langle B_i \rangle$ ,  $\bar{\varepsilon}_{kl}$ ,  $\bar{E}_r$  und  $\bar{H}_j$  zu wählen. Im Hinblick auf die in Abschnitt 7.3 vorgestellten Ergebnisse werden  $\langle \sigma_{ij} \rangle = \sigma_{ij}^{\text{ext}}$ ,  $\bar{E}_i = E_i^{\text{ext}}$  und  $\bar{H}_i = H_i^{\text{ext}}$  als äußere Lasten vorgegeben. Damit kann aus Gl. (5.88) die ma-

makroskopische Verzerrung berechnet werden:

$$\bar{\varepsilon}_{kl} = \langle C_{ijkl} \rangle^{-1} \left( \sigma_{ij}^{\text{ext}} + \langle c_{mij}^{\text{FE}} \rangle E_m^{\text{ext}} + \langle C_{ijmn}^{\text{FE}} \varepsilon_{mn}^{\text{irr(FE)}} + C_{ijmn}^{\text{FM}} \varepsilon_{mn}^{\text{irr(FM)}} \rangle \right) = \varepsilon_{kl}^{(m)}. \quad (5.91)$$

In den Gln. (5.88) und (5.91) erfolgt der Einfluss des Magnetfeldes auf die mechanischen Felder mittelbar über die inelastische Verzerrung  $\varepsilon_{kl}^{\text{irr(FM)}}$  und in geringem Maße durch den Elastizitätstensor  $C_{ijkl}^{\text{FM}}$ , der über die Evolution der inneren Variablen ebenfalls durch die magnetische Feldstärke beeinflusst wird. Durch Einsetzen von Gl. (5.91) in Gl. (5.37) und Gl. (5.64) können die Eigenspannungen lokaler materieller Punkte des ferroelektrischen und -magnetischen Materials berechnet werden. Aus Gl. (5.91) ist ferner ersichtlich, dass durch die makroskopische Verzerrung  $\bar{\varepsilon}_{kl}$  irreversible Prozesse beider Komponenten sich gegenseitig beeinflussen. So folgt z. B. aus den Gln. (5.37) und (5.64), dass auch bei einer rein magnetischen Belastung mechanische Spannungen in der ferroelektrischen Phase zu Domänenwandverschiebung führen können. Sowohl weitere makroskopische Größen, als auch solche lokaler materieller Punkte, können mit Gl. (5.91) durch einsetzen in die entsprechenden konstitutiven Beziehungen bestimmt werden. Eine Berechnung der magnetoelektrischen Kopplung analog dem Vorgehen in Abschnitt 5.3.1 ist bei nichtlinearem Materialverhalten nicht möglich, da die dielektrische Verschiebung und die magnetische Induktion nicht explizit von der magnetischen Feldstärke und der elektrischen Feldstärke abhängen. Aus den Gln. (3.80) und (3.82) geht jedoch der allgemeine Zusammenhang zwischen dielektrischer Verschiebung bzw. magnetischer Induktion und der magnetoelektrischen Kopplung  $g_{ij}$  hervor. Mit Bezug auf die in Kapitel 7 vorgestellten Ergebnisse folgt bei  $\sigma_{ij}^{\text{ext}}, H_i^{\text{ext}} = \text{const}$  für die magnetoelektrische Kopplung:

$$\langle g_{ij}^{(\sigma, H)} \rangle = \left. \frac{\partial \langle B_i \rangle}{\partial E_j^{\text{ext}}} \right|_{\sigma, H} \approx \left. \frac{\Delta \langle B_i \rangle}{\Delta E_j^{\text{ext}}} \right|_{\sigma, H}. \quad (5.92)$$

Auf eine explizite Darstellung der magnetoelektrischen Kopplung  $\langle g_{ij}^{(\sigma, E)} \rangle$  mit  $\sigma_{ij}^{\text{ext}}, E_i^{\text{ext}} = \text{const}$  wird an dieser Stelle verzichtet, da diese Variante der äußeren Lasten in Kapitel 7 nicht weiter verfolgt wird. Die Berechnung erfolgt jedoch analog zu Gl. (5.92).

## 5.4 Modellierung der morphotropen Phasengrenze bei PZT - Keramiken

In diesem Abschnitt werden zwei Ansätze zur Modellierung der MPG vorgestellt. Aus der Aufnahme mit einem Rasterelektronenmikroskop (REM), s. Abb. 5.8, geht hervor, dass sowohl tetragonale als auch rhomboedrische Phasen in einem Korn vorkommen. Basierend auf diesen experimentellen Untersuchungen und aufbauend auf Abschnitt 5.1.1 ist in Abb. 5.8 die modellierte Domänenstruktur eines Einkristalls an der morphotropen Phasengrenze dargestellt. Dabei bezeichnen  $\overset{\ell}{\bullet}$  und  $\overset{r}{\bullet}$  Größen der tetragonalen und rhomboedrischen Phasen. Die Lage der Polarisationskreuze beider Phasen ist durch die Winkel  $\overset{\ell}{\alpha}$  bzw.  $\overset{r}{\alpha}$  im globalen Koordinatensystem  $x_1, x_2$



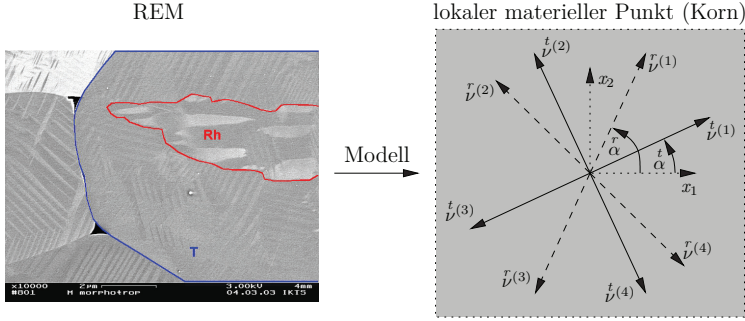


Abb. 5.8 Aufnahme eines Kornes (PZT) an der morphotropen Phasengrenze mit dem Rasterelektronenmikroskop (REM) [140] sowie Modellierung der Domänenstruktur auf Basis der kondensierten Methode

festgelegt. Für die inneren Variablen beider Phasen,  ${}^t\nu^{(n)}$  und  ${}^r\nu^{(n)}$ , gelten die Bedingungen nach Gl. (5.1). Die Volumenanteile eines  $H$ -phasigen Kornes sind durch die zusätzlichen inneren Variablen  $\eta^{(h)}$  mit  $h \in [1, H]$  gegeben. Es gilt:

$$0 \leq \eta^{(h)} \leq 1, \quad \sum_{h=1}^H \eta^{(h)} = 1. \quad (5.93)$$

Die vorliegende Arbeit beschränkt sich auf den Sonderfall eines zweiphasigen Kornes ( $H = 2$ ). Bei gegebenem Volumenanteil der tetragonalen Phase  ${}^t\eta$  gilt

$${}^r\eta = 1 - {}^t\eta \quad (5.94)$$

für den rhomboedrischen Volumenanteil. Aufbauend auf dieser Bedingung werden nachfolgend die beiden Modellierungsansätze vorgestellt und diskutiert.

### 5.4.1 Modellierungsansatz 1: Phaseninteraktion auf Kornebene

Bei dem hier betrachteten Modell wird von einer Interaktion der Phasen auf Kornebene ausgegangen. Mit Hilfe dieses Ansatzes können Eigenspannungen der Phasen eines Kornes ermittelt werden, die ihre Ursache in den Domänenwandverschiebungen innerhalb der Phasen haben. Hierzu werden zunächst die konstitutiven Gleichungen für jede Phase eines Kornes  $m$  angeschrieben:

$$\sigma_{ij}^{(m)} = C_{ijkl}^{(m)} \left( \varepsilon_{kl}^{(m)} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} \right) - e_{lij}^{(m)} E_l^{(m)}, \quad (5.95)$$

$$\bar{\sigma}_{ij}^{(m)} = \bar{C}_{ijkl}^{(m)} \left( \bar{\varepsilon}_{kl}^{(m)} - \bar{\varepsilon}_{kl}^{\text{irr}(m)} \right) - \bar{e}_{lij}^{(m)} \bar{E}_l^{(m)}, \quad (5.96)$$

$$D_i^{(m)} = e_{ikl}^{(m)} \left( \varepsilon_{kl}^{(m)} - \varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} \right) + \kappa_{il}^{(m)} E_l^{(m)} + P_i^{\text{irr}(m)}, \quad (5.97)$$

$$\bar{D}_i^{(m)} = \bar{e}_{ikl}^{(m)} \left( \bar{\varepsilon}_{kl}^{(m)} - \bar{\varepsilon}_{kl}^{\text{irr}(m)} \right) + \bar{\kappa}_{il}^{(m)} \bar{E}_l^{(m)} + \bar{P}_i^{\text{irr}(m)}. \quad (5.98)$$

Materialeigenschaften beider Phasen in den Gln. (5.95) bis (5.98) werden nach Gl. (5.3) in Abhängigkeit der inneren Variablen  $\mathcal{L}^{(n)}$  und  $\mathcal{V}^{(n)}$  bestimmt. Die inelastische Verzerrung und die spontane Polarisierung sind Kapitel 4 zu entnehmen. Für die Spannung und die dielektrische Verschiebung eines Kornes  $m$  gilt:

$$\sigma_{ij}^{(m)} = \overset{t}{\eta}^{(m)} \overset{t}{\sigma}_{ij}^{(m)} + \left(1 - \overset{t}{\eta}^{(m)}\right) \overset{r}{\sigma}_{ij}^{(m)}, \quad (5.99)$$

$$D_i^{(m)} = \overset{t}{\eta}^{(m)} \overset{t}{D}_i^{(m)} + \left(1 - \overset{t}{\eta}^{(m)}\right) \overset{r}{D}_i^{(m)}. \quad (5.100)$$

Aus den Gln. (5.99) und (5.100) wird ersichtlich, dass sich Spannung und dielektrische Verschiebung eines Kornes aus den gewichteten Beiträgen der jeweiligen Phasen ergeben.

Die makroskopische Spannung  $\langle \sigma_{ij} \rangle$  und dielektrische Verschiebung  $\langle D_i \rangle$  eines morphotropen Polykristalls mit  $M$  Körnern folgen aus den Gln. (5.20), (5.99) und (5.100):

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \sigma_{ij}^{(m)} = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( \overset{t}{\eta}^{(m)} \overset{t}{\sigma}_{ij}^{(m)} + \left(1 - \overset{t}{\eta}^{(m)}\right) \overset{r}{\sigma}_{ij}^{(m)} \right), \quad (5.101)$$

$$\langle D_i \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M D_i^{(m)} = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( \overset{t}{\eta}^{(m)} \overset{t}{D}_i^{(m)} + \left(1 - \overset{t}{\eta}^{(m)}\right) \overset{r}{D}_i^{(m)} \right). \quad (5.102)$$

Des Weiteren wird, Abschnitt 5.1.4 folgend, von einer generalisierten VOIGT - Approximation (5.34) ausgegangen, d. h. Verzerrung  $\varepsilon_{kl}$  und elektrische Feldstärke  $E_l$  sind homogen für das betrachtete RVE und somit auch homogen für die Phasen eines Kornes. Für die makroskopischen Materialeigenschaften eines RVE mit  $M$  Körnern, wobei jedes Korn aus  $H$  Phasen besteht, gilt allgemein:

$$\langle C_{ijkl} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( \sum_{h=1}^{H^{(m)}} \eta^{(m,h)} C_{ijkl}^{(m,h)} \right), \quad (5.103)$$

$$\langle e_{ikl} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( \sum_{h=1}^{H^{(m)}} \eta^{(m,h)} e_{ikl}^{(m,h)} \right), \quad (5.104)$$

$$\langle \kappa_{ij} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( \sum_{h=1}^{H^{(m)}} \eta^{(m,h)} \kappa_{ij}^{(m,h)} \right). \quad (5.105)$$

Der Vollständigkeit halber sei an dieser Stelle erwähnt, dass die Materialeigenschaften einer Phase,  $C_{ijkl}^{(m,h)}$ ,  $e_{ikl}^{(m,h)}$  und  $\kappa_{ij}^{(m,h)}$ , gemäß Gl. (5.3) berechnet werden. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde hier auf eine detailliertere Darstellung verzichtet. Einsetzen der konstitutiven Gleichungen (5.95) bis (5.98) in die Gln. (5.101) und (5.102) führt, unter Berücksichtigung der makroskopischen Materialeigenschaften (5.103) bis (5.105), auf die makroskopischen konstitutiven Gleichungen eines

Polykristalls mit mehrphasigen lokalen materiellen Punkten:

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \langle C_{ijkl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} - \langle e_{lij} \rangle \bar{E}_l - \langle C_{ijkl}^t \varepsilon_{kl}^{t\text{irr}} + C_{ijkl}^r \varepsilon_{kl}^{r\text{irr}} \rangle, \quad (5.106)$$

$$\langle D_i \rangle = \langle e_{ikl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} + \langle \kappa_{il} \rangle \bar{E}_l - \langle e_{ikl}^t \varepsilon_{kl}^{t\text{irr}} + e_{ikl}^r \varepsilon_{kl}^{r\text{irr}} \rangle + \langle P_i^{\text{Dirr}} \rangle, \quad (5.107)$$

wobei für die Mittelungen insbesondere

$$\begin{aligned} \langle C_{ijkl}^t \varepsilon_{kl}^{t\text{irr}} + C_{ijkl}^r \varepsilon_{kl}^{r\text{irr}} \rangle &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( \eta^{(m)} C_{ijkl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{t\text{irr}(m)} + \right. \\ &\quad \left. + \left( 1 - \eta^{(m)} \right) C_{ijkl}^r \varepsilon_{kl}^{r\text{irr}(m)} \right), \end{aligned} \quad (5.108)$$

$$\begin{aligned} \langle e_{ikl}^t \varepsilon_{kl}^{t\text{irr}} + e_{ikl}^r \varepsilon_{kl}^{r\text{irr}} \rangle &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( \eta^{(m)} e_{ikl}^{(m)} \varepsilon_{kl}^{t\text{irr}(m)} + \right. \\ &\quad \left. + \left( 1 - \eta^{(m)} \right) e_{ikl}^r \varepsilon_{kl}^{r\text{irr}(m)} \right), \end{aligned} \quad (5.109)$$

$$\langle P_i^{\text{Dirr}} \rangle = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \left( \eta^{(m)} P_i^{t\text{irr}(m)} + \left( 1 - \eta^{(m)} \right) P_i^{r\text{irr}(m)} \right) \quad (5.110)$$

gilt. Gemäß Abschnitt 5.1.4 sind die Unbekannten  $\langle \sigma_{ij} \rangle$ ,  $\langle D_i \rangle$ ,  $\bar{\varepsilon}_{kl}$  und  $\bar{E}_l$  abhängig von den aufgeprägten äußeren Lasten zu wählen. Ausgehend von Spannung und elektrischer Feldstärke als äußere Last, d. h.  $\langle \sigma_{ij} \rangle = \sigma_{ij}^{\text{ext}}$  und  $\bar{E}_i = E_i^{\text{ext}}$ , folgt die makroskopische Verzerrung aus Gl. (5.106):

$$\bar{\varepsilon}_{kl} = \langle C_{ijkl} \rangle^{-1} \left( \sigma_{ij}^{\text{ext}} + \langle C_{ijmn}^t \varepsilon_{mn}^{t\text{irr}} + C_{ijmn}^r \varepsilon_{mn}^{r\text{irr}} \rangle + \langle e_{mij} \rangle E_m^{\text{ext}} \right) = \varepsilon_{kl}^{(m)} = \varepsilon_{kl}^{r(m)}. \quad (5.111)$$

Mit Gl. (5.111) kann die Eigenspannung einer Phase, z. B. der tetragonalen Phase eines Kornes  $m$ , nach Gl. (5.95) bestimmt werden:

$$\begin{aligned} \sigma_{ij}^{(m)} &= C_{ijkl}^{(m)} \left( \langle C_{mnkl} \rangle^{-1} \left( \sigma_{mn}^{\text{ext}} + \langle C_{mnop}^t \varepsilon_{op}^{t\text{irr}} + C_{mnop}^r \varepsilon_{op}^{r\text{irr}} \rangle + \langle e_{pmn} \rangle E_p^{\text{ext}} \right) - \right. \\ &\quad \left. - \varepsilon_{kl}^{t\text{irr}(m)} \right) - e_{lij}^{(m)} E_l^{\text{ext}}. \end{aligned} \quad (5.112)$$

Analog zu Gl. (5.112) folgt die Eigenspannung der rhomboedrischen Phase aus den Gln. (5.96) und (5.111). Des Weiteren kann, unter Verwendung der Gln. (5.95), (5.96) und (5.111), die Eigenspannung eines Kornes nach Gl. (5.99) berechnet werden. Ferner ist mit Gl. (5.111) die Berechnung der dielektrischen Verschiebung auf Phasen-, Korn- und Markoebene möglich.<sup>22</sup>

## 5.4.2 Modellierungsansatz 2: diskrete Phasen auf Kornebene

Der zweite Ansatz basiert auf den konstitutiven Gleichungen eines Kornes  $m$  nach den Gln. (5.37) und (5.38). Im Gegensatz zu dem Ansatz aus Abschnitt 5.4.1,

<sup>22</sup>Siehe hierzu die Gln. (5.97), (5.98), (5.100) und (5.107).

werden hier keine konstitutiven Gleichungen für jede Phase zugrunde gelegt. Vielmehr wird hier die Mehrphasigkeit eines Korns unmittelbar über die Materialeigenschaften und inelastischen Größen berücksichtigt, welche wiederum in die konstitutiven Gleichungen (5.37) und (5.38) eingehen. Hinsichtlich der Modellierung der Domänenstruktur gilt weiterhin Abb. 5.8.

Die elastischen, piezoelektrischen und dielektrischen Koeffizienten eines mehrphasigen Korns  $m$  lauten:

$$C_{ijkl}^{(m)} = \sum_{h=1}^{H^{(m)}} \left( \eta^{(m,h)} \sum_{n=1}^{N^{(m,h)}} C_{ijkl}^{(m,h,n)} \nu^{(m,h,n)} \right), \quad (5.113)$$

$$e_{ikl}^{(m)} = \sum_{h=1}^{H^{(m)}} \left( \eta^{(m,h)} \sum_{n=1}^{N^{(m,h)}} e_{ikl}^{(m,h,n)} \nu^{(m,h,n)} \right), \quad (5.114)$$

$$\kappa_{ij}^{(m)} = \sum_{h=1}^{H^{(m)}} \left( \eta^{(m,h)} \sum_{n=1}^{N^{(m,h)}} \kappa_{ij}^{(m,h,n)} \nu^{(m,h,n)} \right). \quad (5.115)$$

In den Gln. (5.113) bis (5.115) wird ein Korn mit  $H$  Phasen,  $h = 1, \dots, H$ , betrachtet. Des Weiteren wird zur Wahrung der Allgemeinheit angenommen, dass die Anzahl der Domänen  $N^{(m,h)}$ ,  $n = 1, \dots, N^{(m,h)}$ , einer jeden Phase variieren kann.<sup>23</sup> Der Volumenanteil einer Phase  $h$  wird durch  $\eta^{(m,h)}$  beschrieben. Die Änderung inelastischer Größen, die ihre Ursache in der Domänenwandverschiebung haben, sind gegeben durch:

$$d\varepsilon_{kl}^{\text{irr}(m)} = \sum_{h=1}^{H^{(m)}} \left( \eta^{(m,h)} \sum_{n=1}^{N^{(m,h)}} \varepsilon_{kl}^{\text{sp}(m,h,n)} d\nu^{(m,h,n)} \right), \quad (5.116)$$

$$dP_i^{\text{irr}(m)} = \sum_{h=1}^{H^{(m)}} \left( \eta^{(m,h)} \sum_{n=1}^{N^{(m,h)}} \Delta P_i^{\text{sp}(m,h,n)} d\nu^{(m,h,n)} \right). \quad (5.117)$$

Die Gln. (5.113) bis (5.117) berücksichtigen die Mehrphasigkeit eines Korns. Somit sind nun die Materialeigenschaften und inelastischen Größen für ein solches Korn gegeben und können in die konstitutiven Gleichungen (5.37) und (5.38) eingesetzt werden.

Wie in Abschnitt 5.4.1 bereits angenommen, wird auch bei diesem Modellierungsansatz von einer generalisierten VOIGT - Approximation nach Gl. (5.34) ausgegangen. Des Weiteren werden Körner konstanter Größe angenommen, sodass die makroskopische Spannung  $\langle \sigma_{ij} \rangle$  und dielektrische Verschiebung  $\langle D_i \rangle$  mit Gl. (5.20) bestimmt werden können. Aufgrund der hier getroffenen Annahmen, gelten die makroskopischen konstitutiven Gleichungen (5.40) und (5.42) auch für den hier vorgestellten Modellierungsansatz, wenn in den konstitutiven Gleichungen (5.37) und (5.38) eines Korns  $m$  die Materialtensoren und inelastischen Größen der Gln. (5.113) bis (5.117) berücksichtigt werden. Die Berechnung der unbekanntem Größen in Abhängigkeit der aufgeprägten Felder entspricht dem in Abschnitt 5.1.4 dargestellten Verfahren.

<sup>23</sup>Dies ist bei einer räumlichen Modellierung der morphotropen Phasengrenze der Fall, da eine räumliche tetragonale Phase aus sechs und eine rhomboedrische Phase aus acht Domänenvarianten besteht.

Aus physikalischer Sicht haben beide Ansätze ihr Berechtigung. Die in Abschnitt 5.4.1 vorgestellte Modellierung einer Phaseninteraktion berücksichtigt bereits Interaktionsprozesse auf Kornebene, wohingegen die Annahme diskreter Phasen in Abschnitt 5.4.2 diese Prozesse außen vorlässt und eine Interaktion hier ausschließlich auf RVE - Ebene stattfindet. Die Mehrphasigkeit eines Korns ist bei diesem Ansatz über die Materialeigenschaften sowie die inelastischen Größen berücksichtigt.

# 6 Ein High-Cycle-Fatigue-Modell zur Lebensdauervorhersage ferroelektrischer Materialien

In diesem Kapitel wird ein Modell zur Lebensdauervorhersage für ferroelektrische Materialien vorgestellt. Dieses basiert u. A. auf dem von PARIS und ERDOGAN [126] eingeführten Gesetz zur Bestimmung von Risswachstumsraten bei unterkritischer Last. Ein wichtiger Aspekt des Modellierungsansatzes ist die effiziente Beschreibung sehr vieler Lastzyklen, um CPU - Zeiten möglichst gering zu halten. Ferner müssen effektive Materialeigenschaften bei rissartiger Defektphase berechnet werden, um der Rückwirkung der Schädigungsevolution auf alle Feldgrößen und somit auf das Domänenumklappen Rechnung zu tragen.

## 6.1 Berechnung effektiver Materialeigenschaften

Dieser Abschnitt befasst sich mit der Berechnung effektiver Materialeigenschaften mesoskopischer repräsentativer Volumenelemente, s. auch Abb. 5.4. Dabei wird davon ausgegangen, dass es sich bei den Inhomogenitäten des RVE ausschließlich um Poren oder Risse handelt, s. Abb. 6.1(a) und (b).

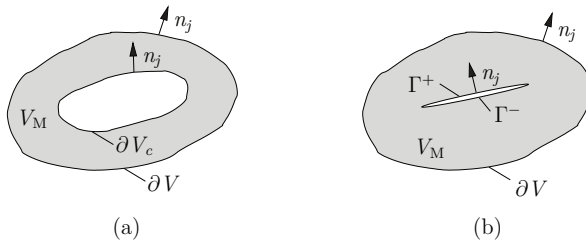


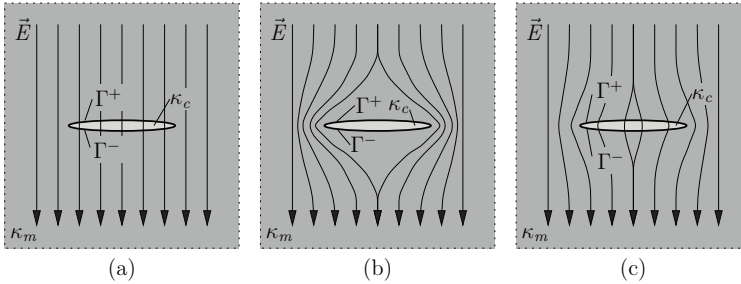
Abb. 6.1 Volumen  $V$  mit Rand  $\partial V$  und Pore  $\partial V_c$  (a) und Riss mit  $\Gamma = \Gamma^+ + \Gamma^-$  (b) [53]

### 6.1.1 Elektromechanische Rissmodelle

Für die betrachteten Mehrfeldprobleme sollen zunächst die Randbedingungen auf den Rissufern  $\Gamma = \Gamma^+ + \Gamma^-$  erörtert werden. Bei elektromechanischen Randwertproblemen erfahren Grenzflächen und somit Rissufer mechanische Lasten infolge der elektrischen Last oder piezoelektrischer Kopplungseffekte. Diese werden als

MAXWELL- oder COULOMB - Spannungen bezeichnet. Ein erster Ansatz zu deren Modellierung wurde von KEMMER und BALKE [77] vorgeschlagen und z. B. in [48, 88] erweitert. Die Wirkung der MAXWELL- bzw. COULOMB - Spannungen ist aufgrund ihrer risschließenden Wirkung nicht unbedeutend [48, 132]. Aufgrund der Komplexität eines Schädigungsmodells auf Basis dieser Randbedingungen werden die Rissufer nachfolgend als spannungsfrei angenommen.

Hinsichtlich der elektrischen Randbedingung auf den Rissufern gibt es drei Möglichkeiten, welche in Abb. 6.2 dargestellt sind und nachfolgend kurz gegenübergestellt werden. In Abb. 6.2(a) ist die DIRICHLETSche Randbedingung dargestellt,



**Abb. 6.2** Elektromechanische Rissmodelle mit dielektrischer Konstante der Matrix-  $\kappa_m$  bzw. Defektphase  $\kappa_c$ : (a) permeabel, (b) impermeabel und (c) semipermeabel

welche z. B. von PARTON und KUDRYAVTSEV [128] vorgestellt wurde. Bei der auch als permeable Randbedingung bekannten Annahme wird das elektrische Feld nicht durch den Riss beeinflusst. Diese wird selbst bei  $\kappa_c \ll \kappa_m$  näherungsweise dann erfüllt, wenn ein sehr dünner Risspalt den direkten Weg der Feldlinien energetisch begünstigt, s. auch [110]. Es gilt dann für die Rissufer  $\Gamma^+$  und  $\Gamma^-$ :

$$\varphi^+(x_1) = \varphi^-(x_1). \quad (6.1)$$

Abb. 6.2(b) zeigt die NEUMANNsche Randbedingung. Diese Annahme, welche z. B. von SOSA [147] und SUO [151] untersucht worden ist, wird auch als impermeable Randbedingung bezeichnet, da die Feldlinien den Riss durchdringungsfrei umschließen. Dies wird dadurch begründet, dass die dielektrische Konstante des Risses  $\kappa_c$  viel kleiner ist als die des Materials  $\kappa_m$ , woraufhin der Feldverlauf im Festkörper, bei hinreichend großer Rissöffnung, energetisch günstiger ist, s. z. B. [110]. Entsprechend gilt bei diesem Modell die Randbedingung für die Rissufer  $\Gamma^+$  und  $\Gamma^-$ :

$$D_2^+(x_1) = D_2^-(x_1) = 0. \quad (6.2)$$

Die in den Gln. (6.1) und Gl. (6.2) erörterten Randbedingungen stellen Sonderfälle dar. Ein realistischeres Modell ist in Abb. 6.2(c) zu sehen. Hier werden die elektrischen Feldlinien zwar durch den Riss abgelenkt, verlaufen aber weiterhin auch durch den Risspalt. Die semipermeable Randbedingung wurde von HAO und SHEN [56] vorgeschlagen und basiert auf einer Analogiebetrachtung von Plattenkondensator

und Riss.<sup>24</sup> Hier wird eine dielektrische Verschiebung im Risspalt angenommen. Im Gegensatz zur Randbedingung nach Gl. (6.1) ist diese beim semipermeablen Modell abhängig von der Rissöffnungsverschiebung  $\Delta u_2 = u_2^+ - u_2^-$  und dem Potentialsprung  $\Delta\varphi = \varphi^+ - \varphi^-$ . Auf den Rissufern gilt daher die Randbedingung:

$$D_2^c(x_1) = \kappa_c E_2^c(x_1) = \kappa_c \frac{\Delta\varphi(x_1)}{\Delta u_2(x_1)}. \quad (6.3)$$

$D_2^c$  in Gl. (6.3) wird auch als intrinsische Rissuferladungsdichte bezeichnet. Das semipermeable Rissmodell wird in diversen Arbeiten, z. B. [34, 109, 162], angewendet und hat sich im Vergleich zu den permeablen und impermeablen Grenzfällen bei elektromechanischen Rissproblemen als geeignet erwiesen.

Bei den zitierten Arbeiten wurde keine Homogenisierung zur Bestimmung effektiver Materialeigenschaften vorgenommen. Da die Berechnung effektiver Materialeigenschaften mit Hilfe analytischer Methoden nicht-trivial ist und das hier vorgestellte Modell ein erster Ansatz zur Lebensdauervorhersage ist, wird nachfolgend für die Rissufer eine impermeable Randbedingung gemäß Gl. (6.2) angenommen. Methoden zur Berechnung effektiver Eigenschaften piezoelektrischer Materialien mit Rissen und nicht-trivialen Randbedingungen auf den Rissufern werden von MERKEL und RICOEUR [111] vorgestellt, im Rahmen dieser Arbeit aber nicht weiter verfolgt.

### 6.1.2 Analytische Homogenisierung für zweiphasige RVE mit Poren oder Rissen

Die in dieser Arbeit betrachteten ferroelektrischen Materialien weisen ein nichtlineares Verhalten auf, s. auch Abb. 2.8. Dieses Verhalten geht auf die Domänenwandverschiebungen zurück und führt dazu, dass die elektromechanische Last inkrementell erhöht werden muss. Bei der Berechnung der effektiven Eigenschaften eines ferroelektrischen Festkörpers wird in jedem Lastschritt lineares piezoelektrisches Materialverhalten zugrunde gelegt. Trotz der physikalischen Nichtlinearität ist diese Verfahrensweise gerechtfertigt, da bei den Modellen zu Domänenprozessen und Schädigung sämtliche nichtlinearen Prozesse innerhalb eines jeden Lastschrittes bereits erfolgt sind. Auf effektive Eigenschaften piezoelektrischer Körper wird z. B. in [51, 91, 157, 158] eingegangen. Die linearen konstitutiven Beziehung sind z. B. in [47, 90, 91] zu finden:

$$\begin{pmatrix} \langle \varepsilon_{ij} \rangle \\ \langle E_i \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_{ijkl}^* & d_{lij}^* \\ -d_{ikl}^* & \beta_{il}^* \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle \sigma_{kl} \rangle \\ \langle D_l \rangle \end{pmatrix}, \quad (6.4)$$

$$\begin{pmatrix} \langle \sigma_{ij} \rangle \\ \langle D_i \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{ijkl}^* & -e_{ij}^* \\ e_{ikl}^* & \kappa_{il}^* \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle \varepsilon_{kl} \rangle \\ \langle E_l \rangle \end{pmatrix}. \quad (6.5)$$

In den Gln. (6.4) und (6.5) bezeichnen  $\langle \varepsilon_{ij} \rangle$ ,  $\langle E_i \rangle$ ,  $\langle \sigma_{ij} \rangle$  und  $\langle D_i \rangle$  wieder die bereits in Kapitel 5 eingeführte gemittelte makroskopische Verzerrung, elektrische Feldstärke, Spannung und dielektrische Verschiebung eines RVEs.  $S_{ijkl}^*$ ,  $d_{lij}^*$  und  $\beta_{il}^*$  in Gl. (6.4)

<sup>24</sup>Auf eine Abbildung zur Analogiebetrachtung wird verzichtet. Der interessierte Leser sei auf die Abb. 5.5 in [33] oder Abb. 3.7 in [110] verwiesen.



stehen für die elastische Nachgiebigkeit, die piezoelektrischen Kopplungseigenschaften und die dielektrische Impermeabilität.  $C_{ijkl}$ ,  $e_{lij}$  and  $\kappa_{il}$  in Gl. (6.5) bezeichnen die in Kapitel 3 eingeführten elastischen, piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften. Der Zusatz „\*“ in den Gln. (6.4) und (6.5) kennzeichnet die Materialeigenschaften als effektive Größen. In komprimierter Notation können die Gln. (6.4) und (6.5) auch in der Form

$$\langle Z_p \rangle = F_{pq}^* \langle \Pi_q \rangle, \quad (6.6)$$

$$\langle \Pi_p \rangle = C_{pq}^* \langle Z_q \rangle, \quad (6.7)$$

dargestellt werden, wobei  $\langle Z_p \rangle$  und  $\langle \Pi_q \rangle$  die generalisierte Verzerrung und Spannung sowie  $F_{pq}^*$  und  $C_{pq}^*$  die generalisierte effektive Nachgiebigkeit und Steifigkeit bezeichnen.

Z. B. nach [53] wird die makroskopische Verzerrung  $\langle \varepsilon_{ij} \rangle$  bei einer Mikrostruktur mit Poren oder Rissen aufgespalten in einen Matrix- und einen Defektanteil. Für die mittlere Verzerrung der Matrixphase  $\langle \varepsilon_{ij} \rangle_M$ , s. Abb. 6.1(a), gilt unter Anwendung des GAUSSSchen Integralsatzes:

$$\begin{aligned} \langle \varepsilon_{ij} \rangle_M &= \frac{1}{2V_M} \int_{V_M} (u_{i,j} + u_{j,i}) \, dV \\ &= \frac{1}{2V_M} \int_{\partial V} (u_i n_j + u_j n_i) \, dA - \frac{1}{2V_M} \int_{\partial V_c} (u_i n_j + u_j n_i) \, dA, \end{aligned} \quad (6.8)$$

wobei der Volumenanteil der Matrix durch  $c_M = V_M/V$  gegeben ist und  $\partial V_c$  den Rand des Hohlraums bezeichnet. Die allgemeine mittlere makroskopische Verzerrung  $\langle \varepsilon_{ij} \rangle$  ist gegeben durch:

$$\langle \varepsilon_{ij} \rangle = \frac{1}{2V} \int_{\partial V} (u_i n_j + u_j n_i) \, dA. \quad (6.9)$$

Bei Berücksichtigung des Volumenanteils der Matrixphase und Einsetzen von Gl. (6.9) in Gl. (6.8) kann für die makroskopische Verzerrung

$$\begin{aligned} \langle \varepsilon_{ij} \rangle &= c_M \langle \varepsilon_{ij} \rangle_M + \frac{1}{2V} \int_{\partial V_c} (u_i n_j + u_j n_i) \, dA \\ &= c_M \langle \varepsilon_{ij} \rangle_M + \langle \varepsilon_{ij} \rangle_c \end{aligned} \quad (6.10)$$

geschrieben werden, woraus die additive Zerlegung in Matrix- und Defektverzerrung hervorgeht. Für den in Abb. 6.1(b) dargestellten Riss als Defektphase folgt aus Gl. (6.10) mit  $\partial V_c \rightarrow \Gamma = \Gamma^+ + \Gamma^-$  und der Rissöffnungsverschiebung  $\Delta u_i = u_i^+ - u_i^-$  die Verzerrung:

$$\langle \varepsilon_{ij} \rangle_c = \frac{1}{2V} \int_{\Gamma} (\Delta u_i n_j + \Delta u_j n_i) \, dA. \quad (6.11)$$

Da hier ein Mehrfeldproblem betrachtet wird, gilt analog für die makroskopische

elektrische Feldstärke der Matrixphase, s. hierzu auch LANGE und RICOEUR [91]:

$$\begin{aligned}\langle E_i \rangle_M &= -\frac{1}{V_M} \int_{V_M} \varphi_{,i} dV \\ &= -\frac{1}{V_M} \int_{\partial V} \varphi n_i dA + \frac{1}{V_M} \int_{\partial V_c} \varphi n_i dA.\end{aligned}\quad (6.12)$$

Analog zur mittleren Verzerrung  $\langle \varepsilon_{ij} \rangle$ , ist die mittlere elektrische Feldstärke gegeben durch:

$$\langle E_i \rangle = -\frac{1}{V} \int_{\partial V} \varphi n_i dA. \quad (6.13)$$

Gl. (6.13) und  $V_M = c_M V$  eingesetzt in Gl. (6.12) führt für die makroskopische elektrische Feldstärke zu:

$$\begin{aligned}\langle E_i \rangle &= c_M \langle E_i \rangle_M - \frac{1}{V} \int_{\partial V_c} \varphi n_i dA \\ &= c_M \langle E_i \rangle_M + \langle E_i \rangle_c.\end{aligned}\quad (6.14)$$

Mit dem Potentialsprung  $\Delta\varphi$  folgt die elektrische Feldstärke der Defektphase für Risse:

$$\langle E_i \rangle_c = -\frac{1}{V} \int_{\Gamma} \Delta\varphi n_i dA. \quad (6.15)$$

Aus den Gln. (6.10) und (6.14) geht hervor, dass Verzerrung und elektrische Feldstärke und wegen  $\langle Z_p \rangle = (\langle \varepsilon_{ij} \rangle, \langle E_i \rangle)^T$  auch die generalisierte Verzerrung  $\langle Z_p \rangle$ , additiv zerlegt werden können in einen Matrix-  $\langle Z_p \rangle_M$  und Defektanteil  $\langle Z_p \rangle_c$ .

Aufgrund der in Abschnitt 6.1.1 getroffenen Annahme mechanisch spannungs-freier Rissufer, ist die makroskopische Spannung  $\langle \sigma_{ij} \rangle$  gegeben durch die gemittelte Matrixspannung  $\langle \sigma_{ij} \rangle_M$ :

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = c_M \langle \sigma_{ij} \rangle_M. \quad (6.16)$$

Für die makroskopische dielektrische Verschiebung  $\langle D_i \rangle$  gilt analog:

$$\langle D_i \rangle = c_M \langle D_i \rangle_M. \quad (6.17)$$

Die Gln. (6.16) und (6.17) können in der generalisierten Spannung

$$\langle \Pi_p \rangle = c_M \langle \Pi_p \rangle_M \quad (6.18)$$

zusammengefasst werden, welche in dieser Form allgemein für Poren mit ladungs-freien Rändern bzw. feldfreien Inneren gültig ist. Da nachfolgend ausschließlich Risse betrachtet werden, ist der Volumenanteil der Defektphase vernachlässigbar [53, 91], d. h. für den Volumenanteil der Matrixphase gilt  $c_M = 1$ . Ferner wird davon ausgegangen, dass das Material homogen ist, d. h.  $C_{pq}^M = \text{const}$ . Damit können

die Gln. (6.6) und (6.7) für die Matrixphase angeschrieben werden:

$$\langle Z_p \rangle_M = F_{pq}^M \langle \Pi_q \rangle_M, \quad (6.19)$$

$$\langle \Pi_p \rangle_M = C_{pq}^M \langle Z_q \rangle_M. \quad (6.20)$$

Mit  $\langle Z_p \rangle_M = \langle Z_p \rangle - \langle Z_p \rangle_c$  sowie den Gln. (6.16), (6.19) und (6.20) folgt:

$$\langle \Pi_p \rangle = C_{pq}^M (\langle Z_q \rangle - \langle Z_q \rangle_c), \quad (6.21)$$

$$\langle Z_p \rangle = F_{pq}^M \langle \Pi_q \rangle + \langle Z_p \rangle_c. \quad (6.22)$$

Hier sei nochmal darauf hingewiesen, dass die Gln. (6.21) und (6.22) nur für ein repräsentatives Volumenelement (RVE) mit Riss ( $c_M = 1$ ) und darüber hinaus für ladungsfreie Rissufer ( $\langle \Pi_p \rangle = \langle \Pi_p \rangle_M$ ) gelten. Nun wird ein Einflusstensor  $D_{pq}$  eingeführt [53], der die Verzerrung der Defektphase  $\langle Z_p \rangle_c$  und am RVE aufgeprägte generalisierte Makroverzerrung  $\langle Z_q \rangle^\infty$  linear verknüpft:

$$\langle Z_p \rangle_c = D_{pq} \langle Z_q \rangle^\infty. \quad (6.23)$$

Dieser Zugang wird in Verbindung mit einer VOIGT - Approximation gewählt, wonach  $\langle Z_p \rangle$  im gesamten RVE der aufgeprägten generalisierten Verzerrung  $\langle Z_p \rangle^\infty$  entspricht. Der in Gl. (6.23) eingeführte Einflusstensor  $D_{pq}$  kann infolge der Reduktion der effektiven Steifigkeit des RVE bei Risswachstum als Schädigungsmaß interpretiert werden. Der Einflusstensor ist zunächst unbekannt. Auf dessen Berechnung, die auch von den Randbedingungen an den Rissufern abhängt, wird in Abschnitt 6.1.3 eingegangen.

Wie auch die generalisierte Verzerrung der Matrixphase in Gl. (6.6) werden nun auch jene der Defektphase über einen ergänzenden Nachgiebigkeitstensor  $F_{pq}^c$  mit generalisierten Spannungen verknüpft [53, 91, 135]:

$$\langle Z_p \rangle_c = F_{pq}^c \langle \Pi_q \rangle^\infty. \quad (6.24)$$

Dieser kann natürlich nicht als Nachgiebigkeit einer nicht-materiellen Defektphase im engeren Sinne interpretiert werden, sondern repräsentiert vielmehr den linearen Zusammenhang von generalisierter Rissöffnung und am RVE aufgeprägten Lasten  $\langle \Pi_p \rangle^\infty$ . Gl. (6.24) impliziert eine REUSS - Approximation wonach  $\langle \Pi_p \rangle$  im gesamten RVE der aufgeprägten Spannung  $\langle \Pi_p \rangle^\infty$  entspricht. Einsetzen der Gln. (6.7) und (6.23) in Gl. (6.21) oder Gln. (6.6) und (6.24) in Gl. (6.22) führt auf die effektive Steifigkeit  $C_{pq}^*$  basierend auf einer VOIGT- oder REUSS - Approximation:

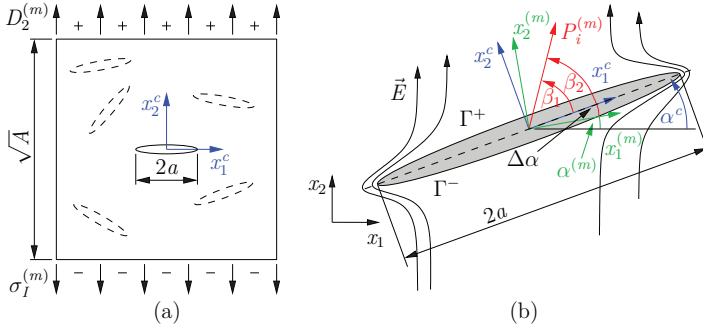
$$C_{pq}^* = C_{pr}^M (\delta_{rq} - D_{rq}), \quad (6.25)$$

$$C_{pq}^* = \left( F_{pq}^M + F_{pq}^c \right)^{-1}. \quad (6.26)$$

### 6.1.3 Modellierung der Defektphase zur Berechnung der Einflusstensoren und effektiven Materialeigenschaften

Zur Bestimmung der generalisierten effektiven Steifigkeit ist es zwingend erforderlich den Einflusstensor  $D_{ij}$  oder den ergänzenden Nachgiebigkeitstensor  $F_{ij}^c$  zu

berechnen. In diesem Abschnitt wird auf die Modelle und Randbedingungen eingegangen, die zur Bestimmung der Einflusstensoren notwendig sind. Für die Berechnung der effektiven Materialeigenschaften wird ein RVE mit der Kantenlänge  $\sqrt{A}$  und mehreren Rissen mit beliebiger Orientierung unter einer elektromechanischen Beanspruchung  $\sigma_I^{(m)}$  und  $D_2^{(m)}$  angenommen, s. Abb. 6.3(a). Ferner ist das rissfeste Koordinatensystem gegeben durch  $x_1^c$  und  $x_2^c$ . Die Kantenlänge des RVE ist ein



**Abb. 6.3** Modellierung der Defektphase: (a) RVE  $m$  unter elektromechanischer Last und (b) Feldlinien und Polarisationsvektor sowie Koordinatensysteme eines zufällig orientierten Risses [91, 135]

numerischer Parameter mit dem die Rissdichte

$$f = \frac{4a^2}{A} \quad (6.27)$$

eingeführt werden kann, welche das Verhältnis der Quadrate von charakteristischer Länge des Defektes  $\ell = 2a$  und Kantenlänge des RVE beschreibt. Durch die Definition nach Gl. (6.27) wird gewährleistet, dass  $f = 1$  ist, wenn das RVE vollständig geschädigt ist, d. h.  $\ell = \sqrt{A}$ .

Für die weitere Vorgehensweise wird hinsichtlich der Interaktion von Rissen von einer wechselwirkungsfreien Defektverteilung ausgegangen, welche auf KACHANOV [70] zurückgeht. Von dieser Annahme kann dann gesprochen werden, wenn die Defekte in der homogenen Matrix soweit voneinander und dem Rand entfernt sind, dass Wechselwirkungen untereinander und mit dem Rand vernachlässigbar sind. In diesem Fall kann ein einzelner Riss in einem unendlichen Gebiet unter der Wirkung der aufgeprägten Makrogrößen  $\langle Z_p \rangle^\infty$  oder  $\langle \Pi_p \rangle^\infty$  betrachtet werden. Damit diese Annahme zulässig ist, muss die charakteristische Länge der Defekte klein gegenüber den Abständen untereinander sowie zum Rand des RVE sein, d. h.  $f \ll 1$ . Aus der Literatur sind einige Methoden bekannt die eine Interaktion von Defekten berücksichtigen. Diese sind z. B. die Selbstkonsistenzmethode, das Differentialschema oder das MORI - TANAKA - Modell [53, 60, 116, 124]. Da diese nicht weiter betrachtet werden, wird auf eine Erläuterung der einzelnen Methoden verzichtet.

Hinsichtlich der Orientierung des Risses werden dessen Ufer senkrecht zur maxi-

malen Hauptnormalspannung  $\sigma_I^{(m)}$  orientiert, s. Abb. 6.3(a), wobei

$$\sigma_{I,II}^{(m)} = \frac{1}{2} (\sigma_{11}^{(m)} + \sigma_{22}^{(m)}) \pm \sqrt{\frac{1}{4} (\sigma_{11}^{(m)} - \sigma_{22}^{(m)})^2 + (\sigma_{12}^{(m)})^2}, \quad (6.28)$$

mit  $\sigma_I^{(m)} > \sigma_{II}^{(m)}$  gilt. Diese Vorgehensweise ist gerechtfertigt, da diese Rissorientierung hinsichtlich des Versagens des RVE die kritischste ist. Somit stimmen das lokale Risskoordinatensystem und die Orientierung des RVE mit den Hauptachsen des Spannungsfeldes überein. In der Realität werden die Achsen der Hauptspannungen während des Rissfortschritts rotieren, was zu einer Ablenkung des Riss führen wird. In dem hier vorgestellten Modell zum Ermüdungsrisswachstum wird eine Rotation des Hauptspannungssystems nicht berücksichtigt, sodass hier ein gerades Risswachstum vorliegt. Im Gegensatz zu einem abgelenkten Riss erfährt der hier zugrunde gelegte Riss eine vollständige Mode-I Belastung. In der Realität wird eher eine Mixed-Mode Beanspruchung vorliegen, weswegen das hier vorgestellte Modell eine konservative Abschätzung der Lebensdauer darstellt. Des Weiteren werden dielektrische Verschiebungen parallel zum Riss nicht berücksichtigt, da diese aus bruchmechanischer Sicht meist eine untergeordnete Rolle spielen. Effekte, die mit zum Riss parallelen elektrischen Feldern und mechanischen Lasten einher gehen werden in [48, 134] erörtert.

Neben dem in Abb. 6.3(a) dargestellten rissfesten Koordinatensystem sind weitere zur Bestimmung der effektiven Materialeigenschaften notwendig, s. Abb. 6.3(b). Hier werden zusätzlich das globale Koordinatensystem  $(x_1, x_2)$  und das Koordinatensystem eines lokalen materiellen Punktes  $m$   $(x_1^{(m)}, x_2^{(m)})$  eingeführt. Ferner beschreiben die Winkel  $\beta_1$  und  $\beta_2$  die Orientierung des Polarisationsvektors  $P_i^{(m)}$  bezüglich des rissfesten und des lokalen Koordinatensystems. Die Winkel  $\alpha^{(m)}$  und  $\alpha^c$  beschreiben die Orientierungen des lokalen und des rissfesten Koordinatensystems bezüglich des globalen. Die Differenz zwischen diesen wird mit  $\Delta\alpha = \alpha^c - \alpha^{(m)}$  bezeichnet und ist für die Berechnung der IRWIN - Matrix  $Y_{MN}$  [131, 133] und der effektiven Materialeigenschaften notwendig.

Der in den Gln. (6.11) bzw. (6.15) eingeführte Verschiebungssprung  $\Delta u_i$  bzw. Potentialsprung  $\Delta\varphi$  wird nachfolgend im generalisierten Verschiebungssprung  $\Delta u_M = (\Delta u_i, \Delta\varphi)^T$  zusammengefasst [48, 125, 133]. Unter Berücksichtigung einer impermeablen Randbedingung auf den Rissufern, nach Gl. (6.2), gilt für den Verschiebungssprung

$$\Delta u_M = 2 \begin{pmatrix} Y_{11} & Y_{12} & Y_{13} & Y_{14} \\ Y_{21} & Y_{22} & Y_{23} & Y_{24} \\ Y_{31} & Y_{32} & Y_{33} & Y_{34} \\ Y_{41} & Y_{42} & Y_{43} & Y_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_{12}^\infty \\ \sigma_{22}^\infty \\ \sigma_{32}^\infty \\ D_2^\infty \end{pmatrix} \sqrt{a^2 - (x_1^c)^2}, \quad (6.29)$$

wobei die Konstanten der IRWIN - Matrix  $Y_{MN}$  von den Materialkoeffizienten sowie der Orientierung des Polarisationsvektors gegenüber dem Rissufer abhängen [133]. Da das rissfeste Koordinatensystem mit dem Hauptachsensystem eines lokalen materiellen Punktes  $m$  zusammenfällt und ausschließlich zweidimensionale Probleme

betrachtet werden, kann Gl. (6.29) entsprechend reduziert werden [91]:

$$\Delta u_M = \begin{pmatrix} \Delta u_1 \\ \Delta u_2 \\ \Delta \varphi \end{pmatrix} = 2 \begin{pmatrix} Y_{11} & Y_{12} & Y_{14} \\ Y_{21} & Y_{22} & Y_{24} \\ Y_{41} & Y_{24} & Y_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ \sigma_I^{(m)} \\ D_2^{(m)} \end{pmatrix} \sqrt{a^2 - (x_1^c)^2}. \quad (6.30)$$

Der ergänzende Nachgiebigkeitstensor  $F_{pq}^c$  folgt somit aus den Gln. (6.24), (6.11), (6.15) und (6.30). Es ist zu beachten, dass aufgrund der betrachteten zweidimensionalen Probleme für die Verzerrungen der Defektphase

$$\langle \varepsilon_{ij} \rangle_c = \frac{1}{2A} \int_{-a}^a (\Delta u_i n_j + \Delta u_j n_i) dx_1^c, \quad (6.31)$$

$$\langle E_i \rangle_c = -\frac{1}{A} \int_{-a}^a \Delta \varphi n_i dx_1^c \quad (6.32)$$

gilt. Somit kann  $F_{pq}^c$  berechnet werden:

$$F_{pq}^c = \frac{1}{4} \pi f \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & Y_{22} & 0 & 0 & Y_{24} \\ 0 & Y_{12} & 0 & 0 & Y_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -Y_{42} & 0 & 0 & -Y_{44} \end{pmatrix}. \quad (6.33)$$

Die Berechnung des Einflusstensors  $D_{pq}$  aus Gl. (6.23) erfolgt analog zu  $F_{pq}^c$ . Die generalisierte Defektverzerrung ist gegeben durch die Gln. (6.31) und (6.32). Ersetzt man in Gl. (6.26)  $\langle \Pi_q \rangle^\infty$  mit Gl. (6.7) durch  $\langle Z_q \rangle^\infty$ , so liefert ein Vergleich mit Gl. (6.23) den Einflusstensor:

$$D_{pq} = \frac{1}{4} \pi f \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ Y_{22} C_{21}^M + Y_{24} e_{21}^M & Y_{22} C_{22}^M + Y_{24} e_{22}^M & Y_{22} C_{23}^M + Y_{24} e_{23}^M \\ Y_{12} C_{21}^M + Y_{14} e_{21}^M & Y_{12} C_{22}^M + Y_{14} e_{22}^M & Y_{12} C_{23}^M + Y_{14} e_{23}^M \\ 0 & 0 & 0 \\ -Y_{42} C_{21}^M - Y_{44} e_{21}^M & -Y_{42} C_{22}^M - Y_{44} e_{22}^M & -Y_{42} C_{23}^M - Y_{44} e_{23}^M \\ 0 & 0 & 0 \\ Y_{24} \kappa_{21}^M - Y_{22} e_{12}^M & Y_{24} \kappa_{22}^M - Y_{22} e_{22}^M & \\ Y_{14} \kappa_{21}^M - Y_{12} e_{12}^M & Y_{14} \kappa_{22}^M - Y_{12} e_{22}^M & \\ 0 & 0 & \\ Y_{42} e_{12}^M - Y_{44} \kappa_{21}^M & Y_{42} e_{22}^M - Y_{44} \kappa_{22}^M & \end{pmatrix}. \quad (6.34)$$

Mit den für impermeable Randbedingungen bestimmten ergänzenden Nachgiebigkeitstensor (6.33) und dem Einflusstensor (6.34) kann die generalisierte effektive Steifigkeit  $C_{pq}^*$  nach Gl. (6.26) oder (6.25) bestimmt werden. Untersuchungen zum Einfluss der Rissdichte  $f$  auf die effektiven Materialeigenschaften sind in Abschnitt 7.4 zu finden.

## 6.2 Modell zur Lebensdauervorhersage

Ziel des hier vorgestellten Modells ist es, die Lebensdauer auf Grundlage einiger numerischer Berechnungszyklen in Verbindung mit der in Kapitel 5 vorgestellten kondensierten Methode (KM) vorherzusagen. Das Modell muss allerdings nicht zwingendermaßen mit der KM sondern kann auch mit anderen Berechnungsverfahren umgesetzt werden. Aufgrund der hier untersuchten elektromechanischen Belastungen tritt der Fall  $K_I = K_{IC}$ , d. h. kritisches Risswachstum, nicht auf, was eine Fallunterscheidung überflüssig macht.

Das von LANGE und RICOEUR [91] vorgestellte Modell zur Lebensdauervorhersage basiert auf dem von PARIS und ERDOGAN [126] eingeführten Gesetz. Wenngleich dieses in erster Linie für makroskopisches Risswachstum gültig ist, haben in der jüngeren Vergangenheit experimentelle Untersuchungen zum unterkritischen Risswachstum bei Strukturkeramiken gezeigt, dass das PARIS - Gesetz auch auf Mikrorisse anwendbar ist [14, 82, 102, 152]. Abb. 6.4 zeigt den schematischen Ab-

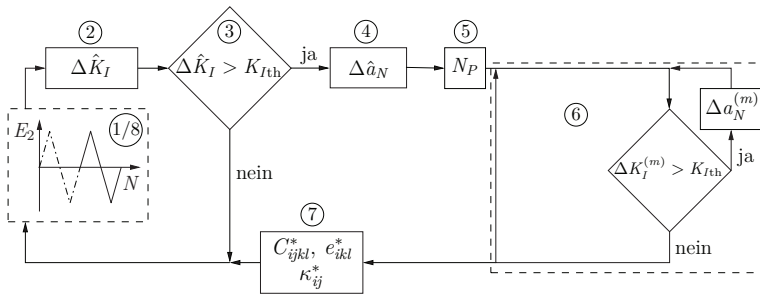


Abb. 6.4 Schematische Darstellung des High - Cycle - Fatigue Modells zur Lebensdauervorhersage

lauf der Berechnung. Anhand der acht Schritte soll die Funktionsweise des Modells nachfolgend erklärt werden. Im ersten Schritt wird ein vollständiger numerischer Lastzyklus  $N$  mit Hilfe der KM simuliert. Dabei wird ein RVE mit  $M$  lokalen materiellen Punkten berücksichtigt. Abhängig von der gewählten VOIGT- bzw. REUSS/VOIGT - Approximation folgen die Eigenspannungen eines lokalen materiellen Punktes  $m$  aus Gl. (5.44) bzw. (5.50), unter Berücksichtigung der Gln. (5.56) und (5.57). Die einem RVE gemäß Abb. 6.3(a) aufgeprägte mechanische Last  $\sigma_I^{(m)}$  folgt aus Gl. (6.28).<sup>25</sup> Im zweiten Schritt wird mit

$$\Delta K_I^{(m)} = \Delta \sigma_I^{(m)} \sqrt{\pi a_{N-1}^{(m)}}, \quad (6.35)$$

die Amplitude des Spannungsintensitätsfaktors eines materiellen Punktes  $m$  bestimmt, wobei  $\Delta \sigma_I^{(m)} = \sigma_I^{\max(m)} - \sigma_I^{\min(m)}$  gilt. Darauf aufbauend werden der maximale Spannungsintensitätsfaktor (SIF)  $\Delta \hat{K}_I = \max \{ \Delta K_I^{(m)} \}$  und der zugehörige

<sup>25</sup>In dieser Arbeit wurde der Schritt 1 mit der KM durchgeführt. Eine alternative Berechnungsmethode, z. B. die FEM, zur Bestimmung der Eigenspannungen  $\sigma_{ij}^{(m)}$  ist jedoch auch möglich.

ge materielle Punkt ermittelt. Der Kompaktheit wegen wird  $\Delta K_I$  nachfolgend nur noch als SIF bezeichnet. Wenn der jeweilige materielle Punkt noch nicht geschädigt ist, entspricht die Risslänge in Gl. (6.35) für  $N \geq 1$  der Anfangsrisslänge  $a_0$ . Im dritten Schritt wird überprüft, ob der berechnete SIF größer als der Grenzwert für Ermüdungsrisswachstum  $K_{Ith}$  ist, bei dem Rissinitiierung eintritt. Falls beim ersten numerischen Zyklus  $N = 1$  das Kriterium nicht erfüllt wird, endet die Simulation aufgrund eines für Schädigungsprozesse offensichtlich unzureichenden Lastniveaus. Wird bei  $N = 1$  Risswachstum initiiert, bei einem späteren Lastschritt  $N > 1$  jedoch nicht, so wird die Anzahl der physikalischen Zyklen  $N_P$  um eins erhöht und der nächste numerische Zyklus wird simuliert. Andernfalls wird der Rissfortschritt  $\Delta \hat{a}_N$  für den aktuellen Lastzyklus  $N$  wie folgt berechnet:

$$\Delta \hat{a}_N = \gamma \hat{a}_{N-1}. \quad (6.36)$$

An dieser Stelle sei nochmal darauf aufmerksam gemacht, dass sich mit  $\hat{\bullet}$  gekennzeichnete Größen auf den lokalen materiellen Punkt  $m$  mit dem maximalen SIF  $\Delta \hat{K}_I$  beziehen. Die in Gl. (6.36) eingeführte Größe  $\gamma$  ist ein numerischer Parameter, welcher das Verhältnis zwischen Rissfortschritt und aktueller Risslänge beschreibt. Mit Gl. (6.36) folgt für die neue Risslänge  $\hat{a}_N$ :

$$\begin{aligned} \hat{a}_N &= \hat{a}_{N-1} + \Delta \hat{a}_N \\ &= (1 + \gamma) \hat{a}_{N-1}. \end{aligned} \quad (6.37)$$

Gegenstand des vierten Schrittes ist die Berechnung der physikalischen Lastzyklen  $N_P$  die notwendig sind, dass der Riss um das in Gl. (6.36) festgelegte Inkrement  $\Delta \hat{a}_N$  wachsen kann. Da Rissfortschritt alleine durch die mechanische Beanspruchungsgröße  $\Delta K_I^{(m)}$  nach Gl. (6.35) kontrolliert wird und elektrische Lasten mittelbar über Eigenspannungen Einzug halten, wird zur Bestimmung von  $N_P$  das klassische PARIS - Gesetz [126]

$$\frac{da}{dN} = C (\Delta K_I)^\eta \quad (6.38)$$

verwendet. Mit dem in Gl. (6.38) beschriebenen PARIS - Gesetz wird der lineare, zweite Bereich, im  $\log(da/dN) - \Delta K_I$  - Diagramm abgebildet. Erweiterungen, welche besser mit experimentellen Ergebnissen übereinstimmen und somit sowohl den Rissinitiierungsbereich (1. Bereich) als auch den Übergang zum Gewaltbruch (3. Bereich) abbilden, sind z. B. in [36, 44] zu finden.<sup>26</sup>  $C$  und  $\eta$  in Gl. (6.38) bezeichnen die materialabhängigen PARIS - Konstanten. Zur Vorhersage der Lebensdauer wird neben den in Kapitel 5 eingeführten inneren Variablen  $\nu^{(n)}$  eine weitere innere Variable zur Beschreibung der Schädigung benötigt. Weiterhin ist für diese ein Evolutionsgesetz notwendig. Als innere Variable zur Beschreibung der Schädigung bietet sich die in Gl. (6.27) eingeführte Rissdichte an, da mit ihr eine eindeutige Aussage hinsichtlich der Schädigung eines RVE getroffen werden kann. Ein Evolutionsgesetz für  $f$  folgt aus den Gln. (6.27) und (6.38). Gl. (6.27) kann zunächst

<sup>26</sup>Auf eine Darstellung der Risswachstumskurve wird an dieser Stelle verzichtet. Diese ist in verschiedenen Literaturwerken, wie z. B. Abb. 3.51 in [83] oder Abb. 4.46 in [53], dargestellt.



nach der Risslänge  $a$  umgestellt werden. Da die Fläche des RVE  $A$  konstant ist, folgt für die Ableitung  $da/dN$ :

$$\frac{da}{dN} = \frac{1}{4} \sqrt{\frac{A}{f}} \frac{df}{dN}. \quad (6.39)$$

Aus den Gln. (6.38) und (6.39) resultiert dann die Evolutionsgleichung für den Rissdichteparameter  $f$ :

$$\frac{df}{dN} = 4C (\Delta K_I)^\eta \sqrt{\frac{f}{A}}. \quad (6.40)$$

Anwendung des Separationsansatzes auf Gl. (6.38) und Berücksichtigung von Gl. (6.35) führt zu:

$$\begin{aligned} \int_0^{N_P} dN &= \int_{\hat{a}_{N-1}}^{\hat{a}_N} \frac{da}{C (\Delta \hat{K}_I)^\eta} \\ &= \int_{\hat{a}_{N-1}}^{\hat{a}_N} \frac{da}{C (\Delta \hat{\sigma}_I \sqrt{\pi a})^\eta}. \end{aligned} \quad (6.41)$$

Bei der Integration von Gl. (6.41) wird angenommen, dass die ermittelte Amplitude der Hauptspannung  $\Delta\sigma_I$  eines numerischen Zyklus  $N$  konstant für zugehörigen physikalischen Zyklen  $N_P$  ist. Somit folgt für die physikalische Lastspielzahl  $N_P$  eines numerischen Zyklus  $N$ :

$$\begin{aligned} N_P &= \frac{1}{C (\Delta \hat{\sigma}_I \pi)^\eta} \int_{\hat{a}_{N-1}}^{\hat{a}_N} a^{-\frac{\eta}{2}} da \\ &= \frac{2}{C (2-\eta) (\Delta \hat{\sigma}_I \pi)^\eta} \left( (\hat{a}_{N-1} (1+\gamma))^{\frac{2-\eta}{2}} - (\hat{a}_{N-1})^{\frac{2-\eta}{2}} \right). \end{aligned} \quad (6.42)$$

Im sechsten Schritt werden die Rissfortschritte  $\Delta a_N^{(m)}$  der verbleibenden  $M-1$  lokalen materiellen Punkte bestimmt, falls  $\Delta K_I^{(m)} > K_{I,th}$  erfüllt ist. Diese folgen aus Gl. (6.38), wobei zur vereinfachten Integration von einer konstanten Risslänge ausgegangen wird [91]. Mit Gl. (6.35) gilt für  $\Delta a_N^{(m)}$  somit:

$$\Delta a_N^{(m)} = C \left( \Delta_I^{(m)} \sqrt{\pi a_{N-1}^{(m)}} \right)^\eta N_P. \quad (6.43)$$

Aus Gl. (6.43) wird ersichtlich, dass der Rissfortschritt eine Funktion der lokalen Belastung  $\Delta\sigma_I^{(m)}$ , der aktuellen Risslänge  $a_{N-1}^{(m)}$  sowie der mit Gl. (6.42) berechneten physikalischen Lastspielzahl  $N_P$  ist. Nachdem die Rissfortschritte der lokalen materiellen Punkte nach Gl. (6.43) berechnet wurden, werden daraufhin die effektiven Materialeigenschaften gemäß Abschnitt 6.1 ermittelt. Im Anschluss daran wird der nächste numerische Zyklus simuliert. Die Lebensdauer ergibt sich somit aus einer

Akkumulation der physikalischen Lastspielzahlen (6.42):

$$N_P^{\text{tot}} = \sum_{N=1}^{N^{\text{tot}}} \frac{2}{C(2-\eta)(\Delta\hat{\sigma}_I\pi)^\eta} \left( (\hat{a}_{N-1}(1+\gamma))^{\frac{2-\eta}{2}} - (\hat{a}_{N-1})^{\frac{2-\eta}{2}} \right). \quad (6.44)$$

Hinsichtlich des Versagens eines RVE mit  $M$  lokalen materiellen Punkten wird das „weakest link“ Prinzip umgesetzt [91] d. h. es ist jener lokale materielle Punkt relevant, der zu Beginn der Simulation die maximale Beanspruchung erfahren hat. Infolge des Rissfortschrittes  $\Delta a_N^{(m)}$  haben die verbleibenden  $M-1$  materiellen Punkte durch die Änderung der effektiven Materialeigenschaften einen Einfluss auf die Lebensdauer und die in Verbindung mit den konstitutiven Gleichungen entstehenden Eigenspannungen.



# 7 Ergebnisse

In diesem Kapitel werden zu den in den Kapiteln 5 und 6 vorgestellten Modellen numerische Ergebnisse gezeigt und diskutiert. Die Abschnitte 7.1 und 7.2 befassen sich mit dem nichtlinearen Materialverhalten von Ferroelektrika und Ferromagnetika. Der Abschnitt 7.3 behandelt Untersuchungen zu multiferroischen Kompositen. Hierbei steht die Vorhersage magnetoelektrischer Kopplungseigenschaften im Vordergrund. In den Abschnitten 7.4 und 7.5 werden Ergebnisse zur Berechnung effektiver Materialeigenschaften sowie zur Lebensdauervorhersage ferroelektrischer Materialien mit tetragonalen Elementarzellen unter elektromechanischer Beanspruchung vorgestellt.

## 7.1 Nichtlineares Materialverhalten von Ferroelektrika

Zur Simulation des nichtlinearen Materialverhaltens von Ferroelektrika wurde überwiegend Bariumtitanat verwendet. Den Ergebnissen zu Ferroelektrika mit rhomboederischer Elementarzelle liegt Bleizirkonattitanat zugrunde. Die verwendeten Materialdaten sind dem Anhang B zu entnehmen. Hierbei ist jedoch zu beachten, dass die verwendeten Materialdaten denen eines Polykristalls PZT an der MPG entsprechen. Somit liegen hier nicht die Materialeigenschaften einer rein rhomboederischen Phase vor. Die Ergebnisse sind daher als qualitativ anzusehen. Bei Materialien mit rhomboederischer Elementarzelle soll es zunächst darum gehen, ob diese, trotz der komplexen Umklappvarianten, nach der in Kapitel 4 dargestellten ebenen Beschreibungsweise modelliert werden können. Bei BT wird für die Koerzitivfeldstärke  $E_c = 2 \cdot 10^5$  V/m und für die spontane Polarisation  $P^0 = 0,26$  C/m<sup>2</sup> angenommen [33, 90, 91]. Entsprechend wird bei PZT von einer Koerzitivfeldstärke von  $E_c = 2,2 \cdot 10^6$  V/m und einer spontanen Polarisation von  $P^0 = 0,33$  C/m<sup>2</sup> ausgegangen [59, 68].

Abb. 7.1(a) zeigt eine elektromechanische Belastung, wie sie in diesem Abschnitt zur Berechnung von Hysteresen verwendet wird. Hierbei bezeichnet  $N$  die Lastschritte,  $|E_2^{\max}|$  die maximale elektrische Feldstärke und  $\hat{\sigma}_{22}$  die äußere mechanische Last, welche während eines zyklischen elektrischen Feldes konstant gehalten wird. Bei der Simulation von Hysteresen werden nachfolgende Randbedingungen berücksichtigt: in Abb. 7.1(b) werden die äußere mechanische Last  $\sigma_{ij}^{\text{ext}} = (0, \sigma_{22}^{\text{ext}}, 0)^T$  und die äußere elektrische Feldstärke  $E_i^{\text{ext}} = (0, E_2^{\text{ext}})^T$  vorgegeben. Bei der zweiten Randbedingung, s. Abb. 7.1(c), werden als externe Größen die Verschiebung  $u_i^{\text{ext}} = (0, u_2^{\text{ext}})^T$  sowie die elektrische Feldstärke  $E_i^{\text{ext}} = (0, E_2^{\text{ext}})^T$  aufgeprägt. Die in Abb. 7.1(c) dargestellte Randbedingung wird ausschließlich für numerische Simulationen bei Einkristallen verwendet.

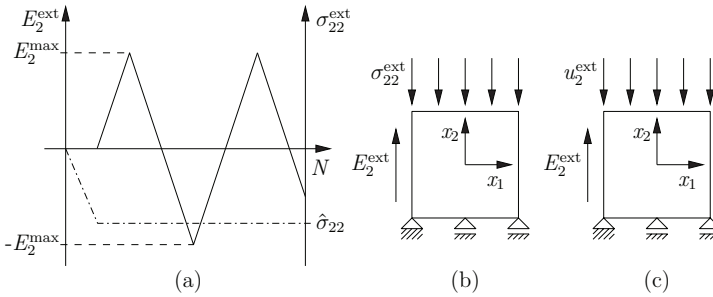


Abb. 7.1 Darstellung der elektromechanischen Beanspruchung und der Randbedingungen für die numerischen Berechnungen

### 7.1.1 Polydomäniger Einkristall mit tetragonalen Elementarzellen

In diesem Abschnitt wird das nichtlineare Materialverhalten ferroelektrischer Einkristalle, d. h.  $M = 1$ , mit tetragonalen Elementarzellen untersucht. Die hier dargestellten Größen Verzerrung, dielektrische Verschiebung und Spannung folgen aus den Gln. (5.42) und (5.43).

In Abb. 7.2 sind die numerischen Ergebnisse für die Randbedingung nach Abb. 7.1(b) dargestellt. Hier wird ein aus mechanischer Sicht spannungsfreier Rand, d. h.  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$ , angenommen. Für das elektrische Feld wurde eine zyklische Last, s. Abb. 7.1(a), mit  $|E_2^{\text{max}}| = 5 E_c$  festgelegt. Die Orientierung des Einkristalls ge-

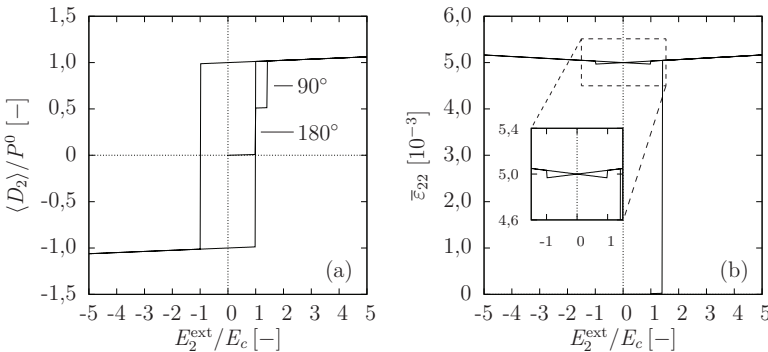
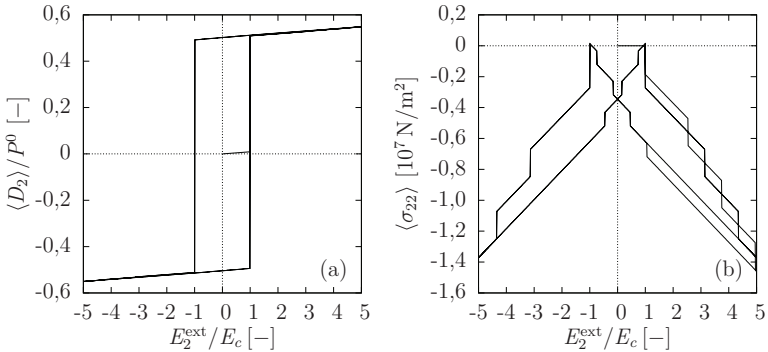


Abb. 7.2 Normierte dielektrische Verschiebung  $\langle D_2 \rangle / P^0$  und Verzerrung  $\bar{\epsilon}_{22}$  aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke  $E_2^{\text{ext}} / E_c$  für die Randbedingung gemäß Abb. 7.1(b) für  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$

genüber dem globalen Koordinatensystem, s. Abb. 5.2, ist  $\alpha = 0^\circ$ . Ferner wird von einem zunächst nichtpolarisierten Einkristall, d. h.  $\nu^{(n)} = \nu^0 = 0,25$ , ausgegangen. Abb. 7.2(a) zeigt die normierte dielektrische Verschiebung  $\langle D_2 \rangle / P^0$  aufgetragen

über der normierten elektrischen Feldstärke  $E_2^{\text{ext}}/E_c$ . Aus Abb. 7.2(a) wird ersichtlich, dass  $180^\circ$  - Umklappprozesse bei  $E_2^{\text{ext}} = \pm E_c$  und  $90^\circ$  - Umklappprozesse bei  $E_2^{\text{ext}} = \sqrt{2}E_c$  auftreten. Diese Beobachtungen stimmen mit dem Umklappkriterium (5.4), unter Berücksichtigung der Gln. (4.34) und (5.5), überein. Für höhere elektrische Feldstärken ist ein lineares Verhalten zu beobachten. In Abb. 7.2(b) ist die Verzerrung  $\bar{\varepsilon}_{22}$  über der normierten elektrischen Feldstärke  $E_2^{\text{ext}}/E_c$  aufgetragen. Da bei Ferroelektrika mit tetragonalen Elementarzellen ausschließlich  $90^\circ$ -Umklappprozesse einen Beitrag zur inelastischen Dehnung liefern, sind hier nur bei  $E_2^{\text{ext}} = \sqrt{2}E_c$  inelastische Prozesse zu beobachten. Im weiteren Verlauf wird das Verhalten durch lineare Beiträge dominiert. Die für Ferroelektrika signifikante Schmetterlingshysterese entsteht hier aufgrund der Umorientierung der Polarisation bei  $E_2^{\text{ext}} = \pm E_c$  und der damit verbundenen Umkehrung des piezoelektrischen Effektes.



**Abb. 7.3** Normierte dielektrische Verschiebung  $\langle D_2 \rangle / P^0$  und Spannung  $\langle \sigma_{22} \rangle$  aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke  $E_2^{\text{ext}}/E_c$  für die Randbedingung gemäß Abb. 7.1(c) und  $u_2^{\text{ext}} = 0$

Abb. 7.3 zeigt die numerischen Ergebnisse für die Randbedingung gemäß Abb. 7.1(c). Hier wurde für die Verschiebung  $u_2^{\text{ext}} = 0$  gewählt. Somit ist die makroskopische Verzerrung  $\bar{\varepsilon}_{kl}$  des materiellen Punktes Null und die Eigenspannung folgt aus Gl. (5.43):

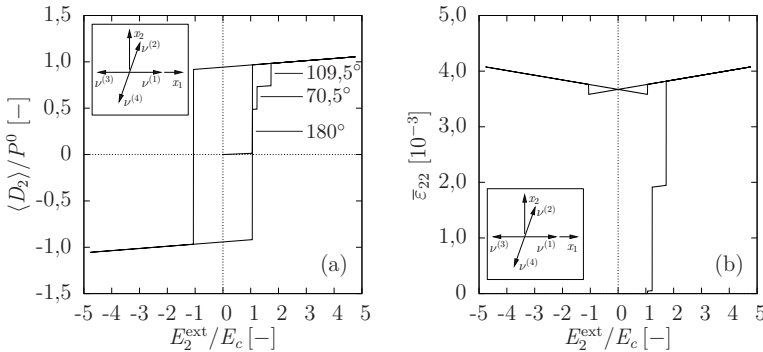
$$\langle \sigma_{ij} \rangle = -\langle C_{ijkl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \rangle - \langle e_{ij} \rangle E_l^{\text{ext}}. \quad (7.1)$$

In Abb. 7.3(a) ist die normierte dielektrische Verschiebung  $\langle D_2 \rangle / P^0$  über der normierten elektrischen Feldstärke  $E_2^{\text{ext}}/E_c$  aufgetragen. Im Vergleich mit Abb. 7.2(a) zeigt sich, dass infolge der Verschiebungsrandbedingung die auftretenden Spannungen im Umklappkriterium (5.4) dazu führen, dass kaum  $90^\circ$  - Umklappprozesse ermöglicht werden. Dies führt nach der Entlastung zu einer deutlich geringeren remanenten Polarisation. Aufgrund des geringen Beitrags zur dielektrischen Verschiebung sind die  $90^\circ$  - Umklappprozesse in Abb. 7.2(a) kaum sichtbar. Deutlicher zu erkennen sind diese in Abb. 7.3(b). Hier ist die induzierte Spannung  $\langle \sigma_{22} \rangle$  aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke  $E_2^{\text{ext}}/E_c$ . Die Sprünge in den

Spannungen bei  $E_2^{\text{ext}} = \pm E_c$  sind auf die  $180^\circ$  - Umklappprozesse und die damit einhergehende Umkehrung der piezoelektrischen Eigenschaften zurückzuführen. Die übrigen Unstetigkeiten in Abb. 7.3(b) werden durch  $90^\circ$  - Umklappprozesse verursacht. Ein weiterer wesentlicher Unterschied zu den in Abb. 7.2 dargestellten Ergebnissen ist, dass infolge der auftretenden Eigenspannung  $90^\circ$  - Prozesse nicht einmalig auftreten, sondern die elektrische Last erhöht werden muss, damit weitere Volumenanteile der Domänen umklappen.

### 7.1.2 Polydomäniger Einkristall mit rhomboedrischen Elementarzellen

Hier wird lediglich die in Abb. 7.1(b) dargestellte Randbedingung mit  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$  berücksichtigt.



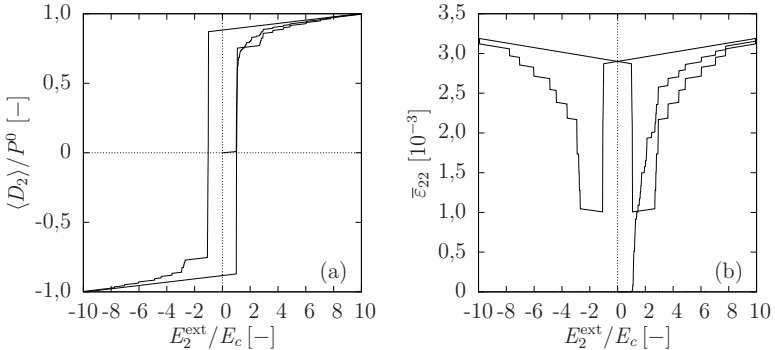
**Abb. 7.4** Normierte dielektrische Verschiebung  $\langle D_2 \rangle / P^0$  und Verzerrung  $\bar{\epsilon}_{22}$  aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke  $E_2^{\text{ext}} / E_c$  eines Einkristalls mit rhomboedrischen Elementarzellen für die Randbedingung  $\sigma_{22}^{\text{ext}}$  gemäß Abb. 7.1(b)

Für die zyklische elektrische Last wird eine Amplitude von  $E_2^{\text{max}} = 5 E_c$  angenommen und die Orientierung des materiellen Punktes gegenüber dem globalen Koordinatensystem ist  $\alpha = 0^\circ$ . Die in Abb. 7.4 dargestellten Ergebnisse, wo normierte dielektrische Verschiebung und Verzerrung über der normierten elektrischen Feldstärke aufgetragen sind, entsprechen qualitativ denen aus Abb. 7.2. Der wesentliche Unterschied ist im Polarisationsprozess zu finden. In Abb. 7.4(a) sind drei verschiedene Umklappprozesse zu beobachten:  $\beta = 70,5^\circ$ ,  $\beta = 109,5^\circ$  und  $\beta = 180^\circ$ . Bei  $E_2 \approx 1,061 E_c$  erfolgt der  $180^\circ$  - Umklappprozess der Domäne 4. Dieser Prozess geht ausschließlich mit einer Änderung der spontanen Polarisation einher. Der Umklappprozess der Domäne 1 um  $\beta = 70,5^\circ$  wird bei  $E_2 \approx 1,223 E_c$  beobachtet. Eine weitere Erhöhung des elektrischen Feldes führt dazu, dass bei  $E_2 \approx 1,6332 E_c$  die Domäne 3 um  $\beta = -109,5^\circ$  umklappt. Die zuletzt genannten Umklappprozesse der Domänen 1 und 3 haben, neben ihrem Beitrag zur spontanen Polarisation, auch einen Beitrag zur inelastischen Dehnung, s. Abb. 7.4(b).

### 7.1.3 Polykristall mit tetragonalen Elementarzellen

Für alle Berechnungen in diesem Abschnitt wurden die Stoffwerte von Bariumtitanat zugrunde gelegt.

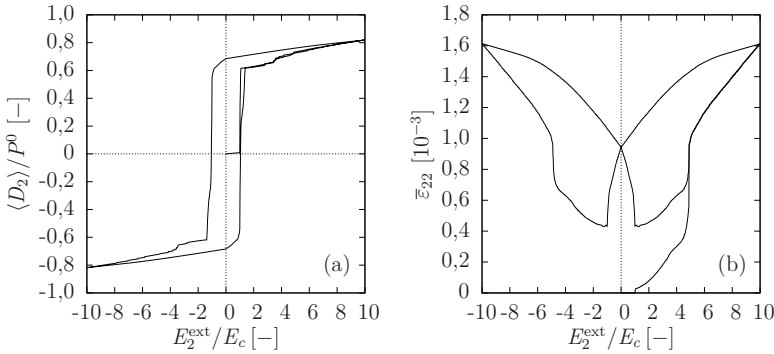
Bei der numerischen Berechnung von Polykristallen ist zunächst zu klären, wie viele lokale materielle Punkte bzw. Körnern  $M$  notwendig sind, damit das Materialverhalten unabhängig von  $M$  ist. Hierzu wurden in [90] Untersuchungen angestellt. Basierend auf diesen Erkenntnissen wird bei der Simulation eines Polykristalls, wenn nicht anders angemerkt,  $M = 30$  gewählt. Die Orientierungen  $\alpha_i$  der einzelnen Körner sind zufällig.



**Abb. 7.5** Normierte dielektrische Verschiebung (a) und Verzerrung (b) aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke für einen Polykristall ohne Korninteraktion. Randbedingung gemäß Abb. 7.1(b) mit  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$

Abb. 7.5 zeigt die numerischen Ergebnisse für einen Polykristall, zunächst ohne Korninteraktion. Für die Berechnung wurde die Randbedingung gemäß Abb. 7.1(b) mit  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$  gewählt. Die hier dargestellten Ergebnisse für dielektrische Verschiebung und Verzerrung werden als einfache Mittelwerte, Gl. (5.20) folgend, berechnet. Ein Vergleich der Abbn. 7.2 und 7.5, in denen von gleichen Randbedingungen ausgegangen wurde, zeigt, dass die Umklappprozesse in den Körnern des Polykristalls aufgrund der zufälligen Orientierungen bei unterschiedlichen elektrischen Feldstärken stattfinden, was sich in den Sprüngen in der dielektrischen Verschiebung und Verzerrung in Abb. 7.5 äußert. Daher ähnelt die Schmetterlingshysteresis in Abb. 7.5(b) eher der einer klassischen nach Abb. 2.8(b). Das hier beobachtete Verhalten ist bei einem Polykristall ohne Korninteraktion nachvollziehbar und stimmt qualitativ mit numerischen Untersuchungen in [86] überein. Aufgrund der in Abb. 7.5 gezeigten Ergebnisse wird deutlich, dass die Berücksichtigung der Korninteraktion zur Darstellung physikalisch realistischer Ergebnisse zwingend erforderlich ist. Ein Berechnungsergebnis, welches die Interaktion lokaler materieller Punkte berücksichtigt, ist in Abb. 7.6 dargestellt. Wie auch in Abb. 7.5 sind hier normierte dielektrische Verschiebung und Verzerrung über der normierten elektrischen Feldstärke aufgetragen. Jedoch wurden diese nun gemäß der Gln. (5.43) und (5.42) berechnet. Ein Vergleich der Abbn. 7.5 und 7.6 macht den Einfluss





**Abb. 7.6** Normierte dielektrische Verschiebung (a) und Verzerrung (b) aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke für einen Polykristall mit Korninteraktion. Randbedingung gemäß Abb. 7.1(b) mit  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$

der Korninteraktion auf die Hysteresekurven deutlich. In Abb. 7.6 sind die glatten Hysteresen eine Folge der auftretenden Eigenspannungen infolge der  $90^\circ$ -Umklappprozesse was im Gegensatz zu den Ergebnissen in Abb. 7.2 bzw. 7.5 zu einem sukzessiven Umklappen der Domänen im Sinne einer kontinuierlichen Domänenwandverschiebung führt.

Die Ergebnisse in Abb. 7.6 stellen das Verhalten ferroelektrischer Materialien qualitativ dar [22, 64, 73]. In [43] wurde insbesondere BT experimentell untersucht. Vergleiche mit den Ergebnissen dieser Arbeit zeigen, dass die remanenten Größen  $P^r$  und  $\varepsilon^r$  zu groß sind. Für eine bessere Übereinstimmung mit Experimenten werden Parameter  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  eingeführt. Aus physikalischer Sicht beschreibt  $\lambda_1$  bei einem ebenen Problem das Verhältnis der effektiven Fläche der Domänenwandverschiebung zur Gesamtfläche der am Umklappprozess beteiligten Domänen. Hiermit wird dem Umstand Rechnung getragen, dass eine Domäne infolge von Umklappprozessen nicht vollständig in eine andere Domäne übergehen kann. Dies wird aber durch das Umklappkriterium (5.4) bzw. das Evolutionsgesetz (5.13) nicht berücksichtigt. Hier ist das vollständige Verschwinden einer Spezies prinzipiell möglich. Mit dem Parameter  $\lambda_2$  wird die Kompensation der Polarisation, welche infolge von Umklappprozessen entsteht, durch freie Ladungen berücksichtigt.<sup>27</sup> Dementsprechend werden die irreversible Dehnung  $d\varepsilon_{kl}^{\text{irr}}$  und Polarisation  $dP_i^{\text{irr}}$ , s. Gl. (5.2), modifiziert:

$$d\varepsilon_{kl}^{\text{irr}} = \lambda_1 \sum_{n=1}^4 \varepsilon_{kl}^{\text{sp}(n)} d\nu^{(n)}, \quad dP_i^{\text{irr}} = \lambda_2 \sum_{n=1}^4 \Delta P_i^{\text{sp}(n)} d\nu^{(n)}. \quad (7.2)$$

Unter Verwendung von Gl. (7.2) gilt für die makroskopischen konstitutiven Gleichungen

<sup>27</sup>Weitere Informationen zu den Parametern  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  sind in [90] zu finden.

chungen (5.40) und (5.42):

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \langle C_{ijkl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} - \langle e_{lij} \rangle \bar{E}_l - \lambda_1 \langle C_{ijkl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \rangle, \quad (7.3)$$

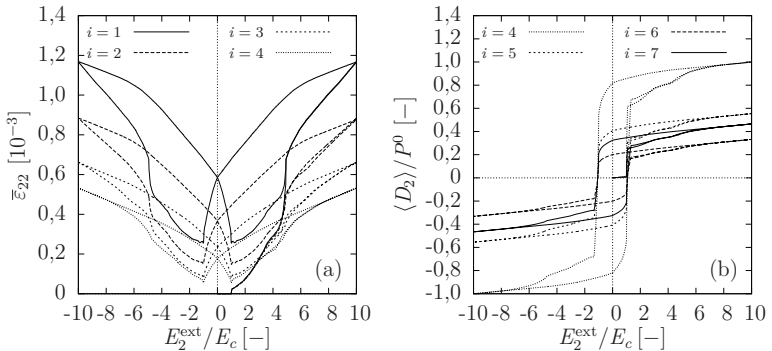
$$\langle D_i \rangle = \langle e_{ikl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} + \langle \kappa_{il} \rangle \bar{E}_l - \lambda_1 \langle e_{ikl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \rangle + \lambda_2 \langle D_i^{\text{irr}} \rangle. \quad (7.4)$$

Für die in den Gln. (7.2) bis (7.4) eingeführten  $\lambda_1$ ,  $\lambda_2$  wird nachfolgend eine Parameterstudie, s. Tab. 7.1 und Abb. 7.7, durchgeführt. In Tab. 7.1 sind für die nume-

**Tab. 7.1** Parameterkonfigurationen für  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  (VOIGT - Approximation)

$i$	1	2	3	4	5	6	7
$\lambda_1$	0,5	0,25	0,125	0,08	0,08	0,08	0,08
$\lambda_2$	1,0	1,0	1,0	1,0	0,5	0,25	0,4

rischen Simulationen  $i$  die Parameterkonfigurationen für  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  aufgeführt. Als Maß für mit Experimenten vergleichbare Ergebnisse wurden die remanenten Größen  $\varepsilon^r$  und  $P^r$  herangezogen. Aus [43] geht für die remanente Dehnung  $\varepsilon^r \approx 0,2 \cdot 10^{-3}$  hervor. Ein Referenzwert für die remanente Polarisation ist  $P^r \approx 0,08 \text{ C/m}^2$  [33, 103]. Aus Abb. 7.7 wird ersichtlich, dass hinsichtlich der in der Literatur zu findenden Werte die Parameterkonfiguration  $\lambda_1 = 0,08$  und  $\lambda_2 = 0,4$  ( $i = 7$  in Tab. 7.1) zur besten Übereinstimmung führt. Aus Gl. (7.3) geht hervor, dass bei Annahme

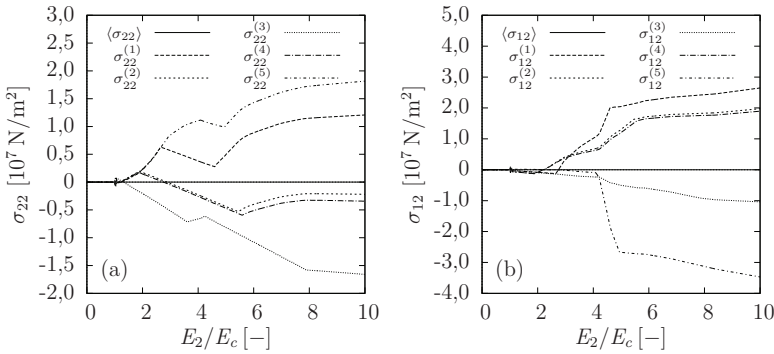


**Abb. 7.7** Einfluss der Parameter  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  auf die Hysteresen unter Berücksichtigung einer generalisierten VOIGT - Approximation

einer generalisierten VOIGT - Approximation die makroskopische Verzerrung nicht durch  $\lambda_2$  beeinflusst wird. Somit führt die in Abb. 7.7(b) dargestellte Parameterkonfiguration  $i = 7$  auf dieselbe Schmetterlingshysterese wie die Parameterkonfiguration  $i = 4$ , s. Abb. 7.7(a). Bei weiteren numerischen Simulationen wird daher für  $\lambda_1 = 0,08$  und  $\lambda_2 = 0,4$  angenommen. Ergebnisse dieser Parameterwahl stimmen auch mit anderen numerischen Untersuchungen in der Literatur überein [33, 99].

Abb. 7.8 zeigt die Ergebnisse für die Eigenspannungen  $\sigma_{22}^{(m)}$  und  $\sigma_{12}^{(m)}$  sowie deren Mittelwerte  $\langle \sigma_{22} \rangle$  und  $\langle \sigma_{12} \rangle$  während des Polarisationsprozesses. Aus Gründen der

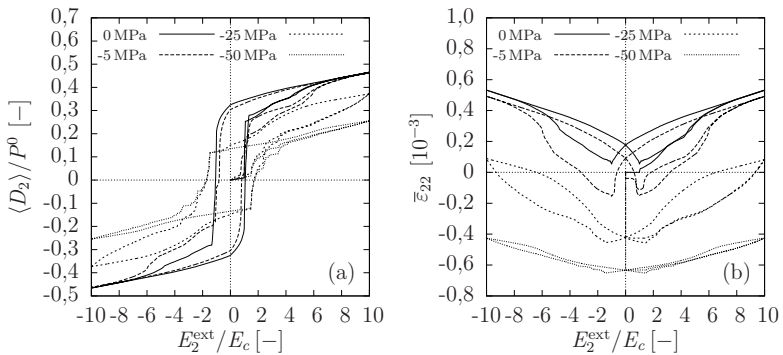
Übersichtlichkeit wurden nur die Eigenspannungen der ersten fünf lokalen materiellen Punkte dargestellt. Hinsichtlich der mechanischen Randbedingung, gemäß Abb. 7.1(b), wurde für  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$  gewählt. Ausgehend von einem ungepolten Material verschwinden die Eigenspannungen im RVE für elektrische Feldstärken unterhalb der Koerzitivfeldstärke. Für elektrische Feldstärken  $E_2^{\text{ext}} > E_c$  wird aus



**Abb. 7.8** Eigenspannungen  $\sigma_{22}^{(m)}$  und  $\sigma_{12}^{(m)}$  sowie deren Mittelwerte  $\langle \sigma_{22} \rangle$  und  $\langle \sigma_{12} \rangle$  aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke

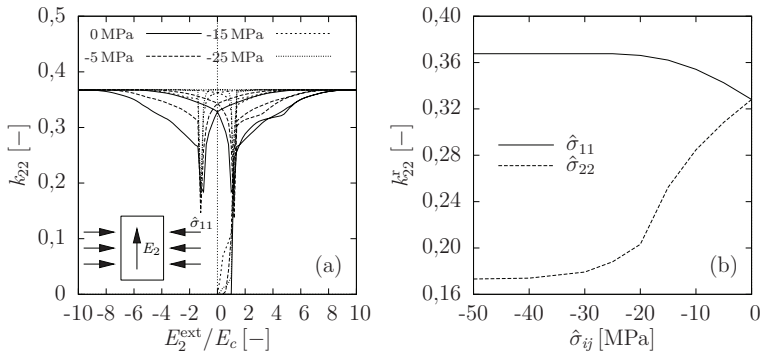
Abb. 7.8 deutlich, dass einige lokale materielle Punkte Zug-, andere wiederum Druckspannungen aufzeigen. Auf der anderen Seite verschwinden die Mittelwerte der Eigenspannungen für alle elektrischen Felder  $E_2^{\text{ext}}$ , was mit der Randbedingung  $\sigma_{ij}^{\text{ext}} = \langle \sigma_{ij} \rangle = 0$  im Einklang steht und statisches Gleichgewicht gewährleistet. Die Eigenspannungen  $\sigma_{11}^{(m)}$  und deren Mittelwert  $\langle \sigma_{11} \rangle$  werden hier nicht dargestellt, letzterer erfüllt jedoch auch die statische Gleichgewichtsbedingung. Im Hinblick auf die Extremwerte ist festzustellen, dass bei  $E_2^{\text{ext}} = 10 E_c$  Zugspannungen von bis zu 18 MPa, s. Abb. 7.8(a), und Schubspannungen von bis zu 27 MPa, s. Abb. 7.8(b), auftreten. Auch wenn hier lediglich fünf der 30 lokalen materiellen Punkte dargestellt sind, so wird deutlich, dass die auftretenden Spannungen in einem angemessenen Bereich sind und bei realen Materialien zum Rissfortschritt innerhalb eines Lastzyklus führen können, ohne dieses vollständig zu zerstören. Untersuchungen zu diesem Themengebiet werden in Abschnitt 7.5 vorgestellt und diskutiert.

In Abb. 7.9 wird der Einfluss einer mechanischen Druckvorspannung auf die Hysteresekurven untersucht. Dazu wird die Randbedingung gemäß Abb. 7.1(b) vorausgesetzt. Die Druckvorspannung wird in Form einer bilinearen Funktion aufgebracht, s. Abb.7.1(a). Während die elektrische Last zyklert, wird die mechanische Last konstant gehalten. In Abb. 7.9 sind die Ergebnisse der Druckvorspannungen  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = \hat{\sigma}_{22} = 0 \text{ MPa}$ ,  $-5 \text{ MPa}$ ,  $-25 \text{ MPa}$  und  $-50 \text{ MPa}$  dargestellt. Aus den Abbn. 7.9(a) und 7.9(b) geht hervor, dass eine zunehmende Druckvorspannung zu einer Verringerung der dielektrischen Verschiebung und der Verzerrung führt. Dieses Verhalten wurde auch in experimentellen Untersuchungen beobachtet [103, 164–166]. Ein weiterer Effekt, der ebenfalls in Experimenten beobachtet wurde, betrifft den Einfluss der Druckvorspannung auf die Schmetterlingshysteresese. Die Fläche



**Abb. 7.9** Normierte dielektrische Verschiebung (a) und Verzerrung (b) aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke für unterschiedliche Druckvorspannungen

der Hysteresekurve nimmt mit zunehmender Druckvorspannung zunächst zu, dann jedoch wieder ab. Aus physikalischer Sicht kann dieses Verhalten damit erklärt werden, dass eine moderate Druckvorspannung  $\hat{\sigma}_{22}$   $90^\circ$  - Umklappprozesse fördert und somit zu einer Zunahme der inelastischen Prozesse führt, während hinreichend große Druckspannungen die Domäne klemmen und somit deren  $90^\circ$  - Mobilität unterbinden. Dies gilt nicht für  $180^\circ$  - Prozesse, was Abb. 7.9(a) verdeutlicht, wo selbst bei -50 MPa eine ausgedehnte Hysterese vorliegt.



**Abb. 7.10** Elektromechanischer Kopplungskoeffizient  $k_{22}$  aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke (a) und remanente Werte für unterschiedliche Druckvorspannungen parallel und senkrecht zur elektrischen Last (b)

In Abb. 7.10 wird der Einfluss einer mechanischen Druckvorspannung parallel oder senkrecht zur äußeren elektrischen Last auf die elektromechanische Kopp-

lung  $k_{22}$  untersucht. Der elektromechanische Kopplungskoeffizient  $k_{22}$  beschreibt die Umwandlungseffizienz zwischen elektrischer und mechanischer Energie [99].  $k_{22}$  ist somit definiert durch [99]:

$$k_{22} = \sqrt{\frac{\langle e_{22} \rangle^2}{\langle \kappa_{22} \rangle \langle C_{22} \rangle}}. \quad (7.5)$$

Abb. 7.10(a) zeigt die numerischen Ergebnisse für  $k_{22}$ . Im Gegensatz zu der in Abb. 7.1(b) dargestellten Randbedingung wirkt die mechanische Last  $\sigma_{ij}^{\text{ext}}$  senkrecht zur elektrischen Feldstärke  $E_2^{\text{ext}}$ , d. h.  $\sigma_{ij}^{\text{ext}} = (\sigma_{11}^{\text{ext}}, 0, 0)^T$ . Zunächst fällt auf, dass  $k_{22}$  aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke ebenfalls ein Hystereseverhalten, ähnlich dem einer Schmetterlingshysterese, aufzeigt. Diese Beobachtung stimmt mit der in [99] überein, wo Berechnungen mit der FEM durchgeführt wurden. Im nicht polarisierten Zustand verschwindet  $k_{22}$ . Elektrische Feldstärken oberhalb von  $E_c$  führen, infolge der Domänenwandverschiebungen, zu einer deutlichen Verbesserung der elektromechanischen Kopplung. Unabhängig von der mechanischen Druckvorspannung erfolgt für  $k_{22}$  eine Sättigung für große Feldstärken, die bei den hier durchgeführten Simulationen bei  $k_{22} \approx 0,3676$  liegt. Simulationen haben gezeigt, dass eine weitere Erhöhung der mechanischen Last keinen Einfluss mehr auf  $k_{22}$  hat, s. auch die durchgezogene Linie in Abb. 7.10(b). In Abb. 7.10(b) sind die remanenten Werte für  $k_{22}^r$  über der Druckvorspannung  $\hat{\sigma}_{ij}$  aufgetragen. Der Wert  $k_{22}^r$  stimmt sehr gut mit denen der FEM in [99] überein, wo Werte von 0,33545, 0,3624 und 0,3727 für Druckvorspannungen von 0, -100 und -200 MPa berechnet wurden. Dass, im Gegensatz zu [99], der Sättigungswert hier nicht von der mechanischen Last abhängt, kann dadurch begründet werden, dass bei der kondensierten Methode, bei hinreichender elektromechanischer Last, der Volumenanteil der Domäne, welche energetisch günstig zur äußeren elektrischen Last orientiert ist, auch bei moderater Druckvorspannung eins werden kann. Da nach Gl. (7.5)  $k_{22}$  eine Funktion der piezoelektrischen, dielektrischen und elastischen Materialeigenschaften ist, welche wiederum Funktionen der inneren Variablen  $\nu^{(n)}$  sind und der zuvor beschriebene Fall eintritt, wird in Abb. 7.10(a) der Sättigungswert nicht durch die mechanische Last beeinflusst.

In Abb. 7.10(b) wurde auch der Einfluss einer mechanischen Last parallel zu  $E_2^{\text{ext}}$  auf  $k_{22}$  in Gestalt der remanenten elektromechanischen Kopplung als Funktion der mechanischen Last untersucht. Hier ist zu beobachten, dass durch eine Druckvorspannung von -30 MPa die elektromechanische Kopplung, gegenüber einem mechanisch spannungsfreien Problem, um ca. 45 % reduziert wird. Eine weitere Zunahme der Druckvorspannung führt noch zu einer geringfügigen Verringerung von  $k_{22}$ , s. Abb. 7.10(b), geht dann aber in ein konstantes Minimum von ca. 0,17 über. In [50] wurde der Einfluss einer mechanischen Last parallel zum elektrischen Feld an einem Mehrschichtaktor mit Hilfe der FEM untersucht. Da Abb. 7.10 nicht auf dem Modell eines Mehrschichtaktors basiert, können die Ergebnisse nur qualitativ verglichen werden. In [50] wird bereits bei einer Druckvorspannung von -10 MPa eine wesentliche Abnahme der elektromechanischen Kopplung beobachtet. Für eine weiter zunehmende Druckvorspannung erfolgt keine signifikante Veränderung von  $k_{22}$ . Bei -30 MPa hat sich  $k_{22}$  gegenüber dem mechanisch spannungsfreien Zustand

um ca. 35 % reduziert. Demzufolge liefern auch hier die kondensierte Methode und die FEM vergleichbare Ergebnisse.

Nachfolgend wird auf die Ergebnisse der in Abschnitt 5.1.4.2 eingeführten generalisierten REUSS/VOIGT - Approximation eingegangen. Wie bei der VOIGT - Approximation muss auch hier zunächst eine Studie für die Parameter  $\lambda_1, \lambda_2$  durchgeführt werden. Mit Gl. (7.2) gilt für die makroskopischen konstitutiven Gleichungen (5.53) und (5.55):

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \langle \chi_{ijkl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} - \langle \alpha_{tij} \rangle \bar{D}_l - \lambda_1 \langle \chi_{ijkl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \rangle + \lambda_2 \langle \alpha_{tij} P_l^{\text{irr}} \rangle \quad (7.6)$$

und

$$\langle E_i \rangle = -\langle \alpha_{ikl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} + \langle \gamma_{il} \rangle \bar{D}_l + \lambda_1 \langle \alpha_{ikl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \rangle - \lambda_2 \langle \gamma_{il} P_l^{\text{irr}} \rangle. \quad (7.7)$$

Wird nun von  $\langle \sigma_{ij} \rangle = \sigma_{ij}^{\text{ext}}$  und  $\langle E_i \rangle = E_i^{\text{ext}}$  als äußere Lasten ausgegangen, so wird aus den Gln. (7.6) und (7.7) ersichtlich, dass im Gegensatz zur generalisierten VOIGT - Approximation beide Parameter  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$ , s. Gln. (7.3) und (7.4), sowohl Einfluss auf die makroskopische Verzerrung  $\bar{\varepsilon}_{kl}$  als auch auf die makroskopische dielektrische Verschiebung  $\bar{D}_i$  haben.

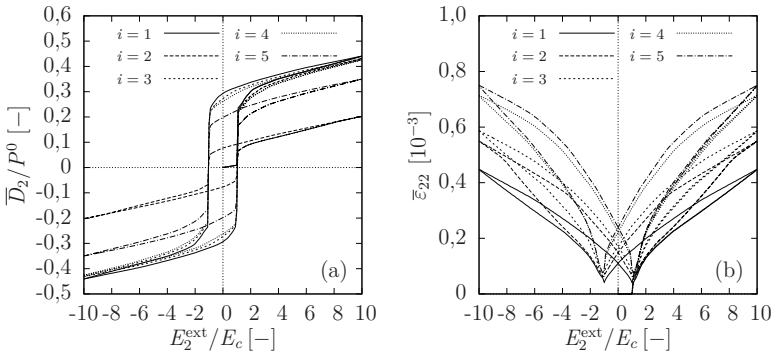
In Tab. 7.2 sind verwendete Parametervarianten dargestellt. Abb. 7.11 zeigt die

**Tab. 7.2** Untersuchte Parameterkombinationen  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  (REUSS/VOIGT - Approximation)

$i$	1	2	3	4	5
$\lambda_1$	0,08	0,08	0,16	0,24	0,24
$\lambda_2$	0,4	0,1	0,4	0,4	0,3

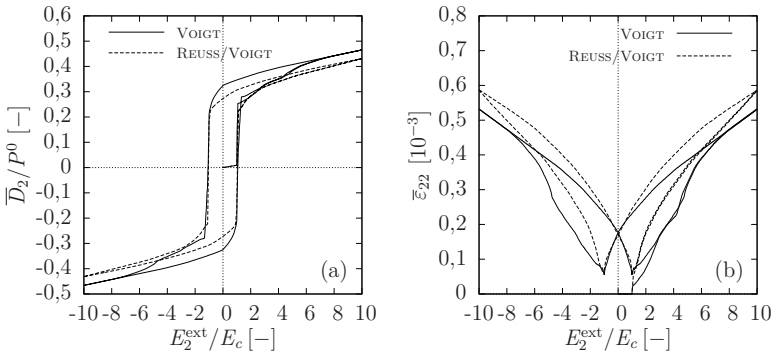
zugehörigen numerischen Ergebnisse. Wie auch bei der generalisierten VOIGT - Approximation werden die remanenten Größen  $P^r$  und  $\varepsilon^r$  als Referenzwerte für geeignete Parameter verwendet. Die Kombination  $i = 1$  entspricht den Parametern der generalisierten VOIGT - Approximation. Hinsichtlich der remanenten Polarisation  $P^r$ , s. Abb. 7.11(a), wird für diese Parameterwahl eine gute Übereinstimmung mit der Literatur erreicht [33]. Die remanente Verzerrung  $\varepsilon^r$ , s. Abb. 7.11(b), liegt jedoch deutlich unter dem in der Literatur zu findenden Wert  $\varepsilon^r \approx 0,2 \cdot 10^{-3}$ . Aus den Hysteresen für  $i = 2, \dots, 5$  geht hervor, dass eine Reduktion von  $\lambda_2$  zu einer Verbesserung der remanenten Dehnung führt, dies aber auch in einer deutlichen Verringerung der remanenten Polarisation  $P^r$  mündet, s. Abb. 7.11. Im Gegensatz dazu führt eine Vergrößerung von  $\lambda_1$  zu einer sichtbaren Verbesserung der remanenten Dehnung  $\varepsilon^r$ . Dies führt zwar auch zu einer geringfügigen Verringerung der remanenten Polarisation  $P^r$ , diese ist aber im Vergleich zu einer Verringerung von  $\lambda_2$  vernachlässigbar, s. Abb. 7.11. Für die generalisierte REUSS/VOIGT - Approximation werden daher die Parameter  $\lambda_1 = 0,16$  und  $\lambda_2 = 0,4$  zugrunde gelegt.

In Abb. 7.12 werden die beiden Approximationen gegenübergestellt. Dabei stellen die durchgezogenen Linien die Ergebnisse der generalisierten VOIGT- und die gestrichelten Linien die der generalisierten REUSS/VOIGT - Approximation dar. Ein Vergleich der dielektrischen Hysteresen, s. Abb. 7.12(a), zeigt, dass beide Varianten vergleichbare Verläufe hervorbringen. Die geringere Fläche der gestrichelten



**Abb. 7.11** Einfluss der Parameter  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  auf die Hysteresen unter Berücksichtigung einer generalisierten REUSS/VOIGT - Approximation

Hysteresis lässt darauf schließen, dass im Vergleich zur VOIGT - Approximation weniger Energie durch inelastische Prozesse dissipiert wird. Dieser Eindruck wird

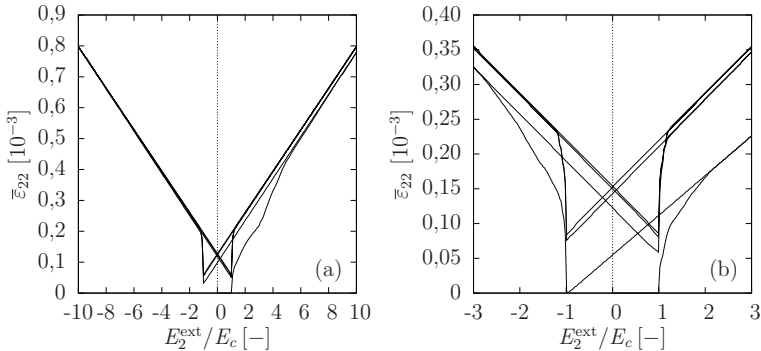


**Abb. 7.12** Vergleich von generalisierter VOIGT- und REUSS/VOIGT - Approximation: normierte dielektrische Verschiebung und Dehnung aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke

bei Betrachtung der Schmetterlingshysteresis 7.12(b) bestätigt. Zwar stimmen die remanenten Dehnungen beider Approximationen sehr gut überein, jedoch ist die Fläche der gestrichelt dargestellten Hysteresis kleiner als die der generalisierten VOIGT - Approximation. Weiterhin ist zu erkennen, dass bei der REUSS/VOIGT - Approximation zu einer größeren Dehnung und zu anderen inelastischen Prozessen im gesamten Lastzyklus auftreten bzw. eine vollständige Polarisation der einzelnen materiellen Punkte im Sinne einer Sättigung nicht erfolgt.

### 7.1.4 Polykristall mit rhomboedrischen Elementarzellen

Abb. 7.13 zeigt numerische Ergebnisse eines Polykristalls mit rhomboedrischen Elementarzellen. Die Berechnungen beschränken sich auf die Schmetterlingshysterese, da an ihr wesentliche Unterschiede zwischen Polykristallen mit tetragonalen und rhomboedrischen Elementarzellen zu erkennen sind. Es werden zwei unterschiedliche Amplituden der elektrischen Feldstärke mit je drei Lastzyklen untersucht, s. Abb. 7.1(a). In Abb. 7.13(a) ist die Schmetterlingshysterese für die Amplitude  $|E_2^{\max}| = 10 E_c$  dargestellt. Ausgehend von einem ungepolten Material ist zunächst die Neukurve zu erkennen, wo infolge der sukzessiven  $70,5^\circ$  und  $109,5^\circ$ -Umklappprozesse inelastische Vorgänge bis ca.  $5 E_c$  zu beobachten sind. Für größere elektrische Feldstärken ist ein lineares Verhalten zu sehen, woraus zu schließen ist, dass hier keine weiteren Umklappprozesse stattfinden. Auch bei Entlastung ist ein lineares Verhalten zu erkennen. Somit sind die in den lokalen materiellen Punkten auftretenden Eigenspannungen zu gering, um Umklappprozesse um  $70,5^\circ$  oder  $109,5^\circ$  zu initiieren. Erst bei Erreichen der negativen Koerzitivfeldstärke erfolgen  $180^\circ$ -Umklappprozesse, die aufgrund des Richtungswechsels der Polarisierung mit einem Vorzeichenwechsel der piezoelektrischen Eigenschaften einhergehen. Für



**Abb. 7.13** Schmetterlingshysteresen eines Polykristalls mit rhomboedrischen Elementarzellen bei  $|E_2^{\max}| = 10 E_c$  (a) und  $|E_2^{\max}| = 3 E_c$  (b)

größere elektrische Feldstärken sind noch vereinzelte inelastische Prozesse zu beobachten, der weitere Verlauf der Verzerrung wird jedoch durch lineares Verhalten dominiert. Der Offset nach Abschluss des ersten Lastzyklus bei  $E_2 = 10 E_c$  ist darauf zurückzuführen, dass nach Abschluss des Polarisationsvorganges die Domänen noch nicht vollständig umgeklappt sind.

Abb. 7.13(b) zeigt die Schmetterlingshysterese für die Amplitude  $|E_2^{\max}| = 3 E_c$ . Wie in Abb. 7.13(a) ist auch hier zunächst die Neukurve infolge des Polarisationsprozesses zu sehen. Auch hier ist die Entlastung rein linear und weitere Umklappprozesse werden erst wieder ab der negativen Koerzitivfeldstärke beobachtet. Im Vergleich zu allen bisher vorgestellten Schmetterlingshysteresen fällt in Abb. 7.13(b) auf, dass die Dehnung bei Erreichen von  $E_2 = -3 E_c$  ca. 1,5 mal so groß ist, wie zuvor bei  $E_2 = 3 E_c$ . Das sich hier abzeichnende nicht symme-



trische Verhalten ist auf die unterschiedlichen inelastischen Dehnungen für  $70,5^\circ$ - und  $109,5^\circ$ - Umklappprozesse zurückzuführen, s. Abschnitt 4.1.2. Die Simulation weiterer Lastzyklen führt dann auf eine symmetrische Darstellung der Schmetterlingshysterese, s. Abb. 7.13(b). Allerdings wird das Verhalten dieser, wie auch in Abb. 7.13(a), durch lineares Verhalten und  $180^\circ$ - Umklappprozesse dominiert.

Für die in Abb. 7.13 dargestellten Berechnungen sind in der Literatur keine Ergebnisse zu finden. Es ist allerdings unwahrscheinlich, dass das dargestellte Verhalten physikalisch ist. Die Umklappkinematiken einer rhomboedrischen Elementarzelle wurden nach Abschnitt 4.1.2 auf eine Betrachtungsebene projiziert. Bei dieser Übertragung kann jedoch nicht gewährleistet werden, dass jeder Domäne jeder Umklappprozess ermöglicht wird.<sup>28</sup> Aufgrund dieses Eingriffs in die bei rhomboedrischen Zellen ausgeprägte räumliche Natur der Umklappkinematik ist eine zweidimensionale Modellierung hier nicht zielführend. Rhomboedrische Ferroelektrika können nur durch eine räumliche Abbildung von Elementarzellen sinnvoll modelliert werden.

## 7.2 Nichtlineares Materialverhalten von Ferromagnetika

Für das hier untersuchte Materialverhalten von Hartmagneten ist in der Literatur lediglich ein experimentelles Ergebnis für die Demagnetisierung zu finden, s. [106]. Ergebnisse, von FE - Berechnungen die ebenfalls auf einem mikromagneto-elektromechanischen Modell basieren, werden in [4] vorgestellt. Basierend auf den Erkenntnissen aus Abschnitt 7.1.3 wurde auch für das ferromagnetische Modell zunächst eine Anpassung von Parametern durchgeführt. Als Referenz dient die in [106] gezeigte Demagnetisierungskurve. Im Gegensatz zu ferroelektrischen Materialien ist bei Ferromagnetika nur ein numerischer Parameter  $\lambda_1$  sinnvoll, der die irreversible Verzerrung abschwächt:

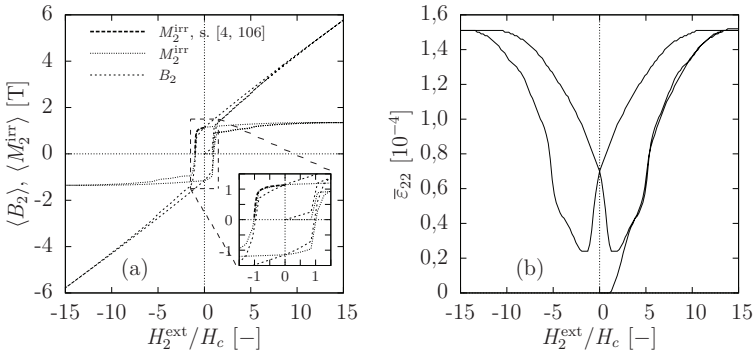
$$d\varepsilon_{kl}^{\text{irr}} = \lambda_1 \sum_{n=1}^4 \varepsilon_{kl}^{\text{sp}(n)} d\nu^{(n)}. \quad (7.8)$$

Der in Gl. (7.2) eingeführte Parameter  $\lambda_2$  berücksichtigt die Kompensation der Polarisation durch freie Ladungen. Freie magnetische Elementarladungen gibt es jedoch nicht, was auch aus Gl. (3.30) folgt. Unter Berücksichtigung von Gl. (7.8) folgt für  $\langle \sigma_{ij} \rangle$ , s. Gl. (5.67):

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = \langle C_{ijkl} \rangle \bar{\varepsilon}_{kl} - \lambda_1 \langle C_{ijkl} \varepsilon_{kl}^{\text{irr}} \rangle. \quad (7.9)$$

Die Gln. (5.68) und (5.69) bleiben von dem in Gl. (7.8) eingeführten Parameter unberührt. Da in der Literatur keine Angaben zur spontanen Magnetisierung  $M_0$  zu finden sind, ist neben  $\lambda_1$  auch  $M_0$  ein freier Parameter. Abb. 7.14 zeigt die Ergebnisse der kondensierten Methode. Bei dieser Berechnung wurde von einer zyklischen magnetischen Last mit  $|H_2^{\text{max}}| = 15 H_c$  und  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$  ausgegangen. Auf

<sup>28</sup>Wird die Domäne  $\nu^{(1)}$  eines lokalen materiellen Punktes betrachtet, so kann diese zwar um  $\beta = 70,5^\circ$  oder  $\beta = -109,5^\circ$  umklappen, nicht aber um  $\beta = 109,5^\circ$  oder  $\beta = -70,5^\circ$ .

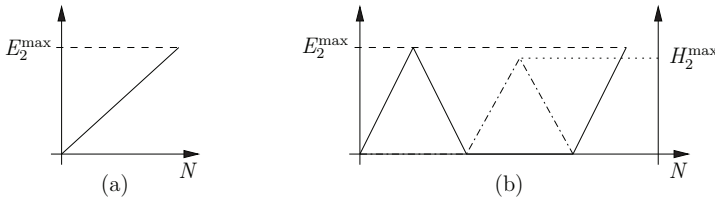


**Abb. 7.14** Magnetische Induktion  $B_2$  und Magnetisierung  $M_2^{\text{irr}}$  (a) und Verzerrung (b) aufgetragen über der normierten magnetischen Feldstärke  $H_2/H_c$

eine Darstellung der einzelnen Ergebnisse der Parameterstudie zu  $\lambda_1$  und  $M_0$  wird an dieser Stelle verzichtet, da der grundsätzliche Einfluss von  $\lambda_1$  auf die Hysteresen bereits in Abschnitt 7.1.3 erörtert wurde. Eine Reduzierung bzw. Anhebung der spontanen Magnetisierung geht einher mit einer Verringerung bzw. Erhöhung der Magnetisierung. Abb. 7.14(a) zeigt die magnetische Induktion  $\langle B_2 \rangle$  sowie die Magnetisierung  $\langle M_2^{\text{irr}} \rangle$  aufgetragen über der normierten magnetischen Feldstärke. Ferner ist im zweiten Quadranten die Demagnetisierung dargestellt [4, 106]. Aus Abb. 7.14(a) geht hervor, dass mit  $\lambda_1 = 0,0125$  und  $M_0 = 1,53$  T die Demagnetisierungskurve sehr gut abgebildet werden kann. Auch entspricht die remanente Magnetisierung  $M^r \approx 1,146$  T den in der Literatur zu findenden Werten, s. [4, 106]. Ein weiterer Effekt, der auch in [4] beobachtet wurde, ist ebenfalls in Abb. 7.14(a) zu sehen: die Koerzitivfeldstärke für  $\langle B_2 \rangle = 0$  ist geringfügig kleiner als die für  $\langle M_2^{\text{irr}} \rangle = 0$ , s. Vergrößerung in Abb. 7.14(a). Dieser Effekt ist auf den linearen Beitrag der magnetischen Permeabilität in  $\langle B_2 \rangle$  zurückzuführen. In Abb. 7.14(b) ist eine für Hartmagneten typische Schmetterlingshysterese mit einer Sättigung ab ca.  $14 H_c$  dargestellt. Die Dehnung  $\varepsilon_s$ , wo die Sättigung erreicht wird, entspricht in etwa der doppelten remanenten Dehnung  $\varepsilon^r$ . Aus den Ergebnissen in Abb. 7.14 geht hervor, dass mit der KM nach Abschnitt 5.3.2 auch nichtlineares ferromagnetisches Materialverhalten abgebildet werden kann.

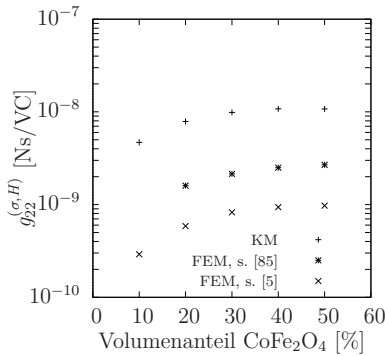
### 7.3 Magnetoelektrische Kopplung bei multiferroischen Kompositen

Betrachtet wird ein Komposit aus Kobaltferrit (CF) und Bariumtitanat (BT), s. auch Abb. 2.12(a). Es wird ein RVE mit 30 lokalen materiellen Punkten berücksichtigt. Alle Ergebnisse sind aus mechanischer Sicht spannungsfrei, d. h.  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$ . Die für die Simulationen verwendeten magnetoelektrischen Belastungen sind Abb. 7.15 zu entnehmen.



**Abb. 7.15** Magnetoeltrische Belastungen zur Vorhersage der magnetoeltrischen Kopplung

In Abb. 7.16 ist die magnetoeltrische Kopplung  $g_{22}^{(\sigma,H)}$  über dem Volumenanteil der CF - Phase aufgetragen. Ferner seien sowohl das Bariumtitanat als auch das Kobaltferrit vollständig in positiver  $x_2$ -Richtung gepolt bzw. magnetisiert. Das



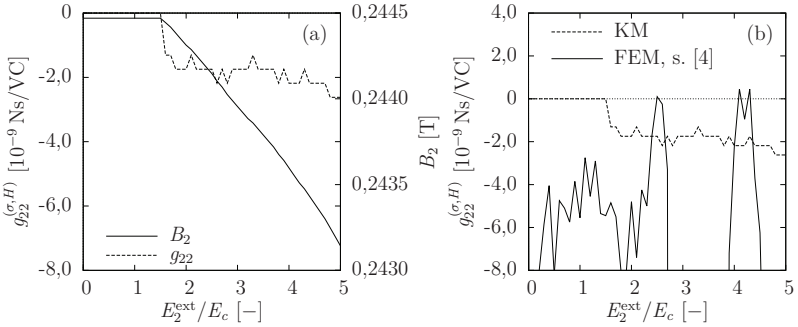
**Abb. 7.16** Magnetoeltrische Kopplung  $g_{22}^{(\sigma,H)}$  aufgetragen über dem Volumenanteil der Partikel. Sowohl Matrix als auch Partikel sind perfekt in die positive  $x_2$ -Richtung gepolt bzw. magnetisiert

hier betrachtete RVE wird durch den in Abb. 7.15(a) dargestellten Lastverlauf rein elektrisch mit  $E_2^{\max} = 10 E_c$  belastet, d. h.  $\sigma_{ij}^{\text{ext}}, H_i^{\text{ext}} = 0$ . In Abb. 7.16 sind Ergebnisse zweier Berechnungsmethoden, der KM und der FEM abgebildet. In beiden Fällen nimmt die magnetoeltrische Kopplung  $g_{22}^{(\sigma,H)}$  mit zunehmendem Volumenanteil von CF zu. Aus qualitativer Sicht liefern sowohl die KM als auch die FEM vergleichbare Ergebnisse. Quantitativ liegt zwischen den Ergebnissen der FEM aus [5] und denen der KM in etwa eine Größenordnung. Dieser Unterschied ist auf zweierlei Ursachen zurückzuführen: Bei der KM liegen alle lokalen materiellen Punkte an einem räumlichen Punkt vor, wohingegen bei der FEM die Partikel in die Matrix eingebettet sind. Ein weiterer Grund liegt in der Beschaffenheit des Randes. In der FEM besteht der Rand des RVE ausschließlich aus der Matrix. Es wird die magnetische Induktion am Rand ausgewertet und auch die geringere magnetische Permeabilität der Matrix berücksichtigt. Da gemäß Abb. 7.15(a) ein elektrisches Feld als äußere Größe vorgegeben wird, folgt die magnetoeltrische

Kopplung  $g_{ij}^{(\sigma,H)}$  aus Gl. (5.82):

$$g_{ij}^{(\sigma,H)} = \langle q_{ikl} \rangle \langle C_{mnl} \rangle^{-1} \langle e_{jmn} \rangle. \quad (7.10)$$

Die magnetischen Permeabilitäten beider Phasen haben offensichtlich keinen Einfluss auf die magnetoelektrische Kopplung. Da sowohl BT als auch CF in  $x_2$ -Richtung gepolt sind und auch die elektrische Last in dieser Richtung wirkt, erfolgen keine irreversiblen Prozesse. Daher sind sowohl die Materialeigenschaften als auch die magnetoelektrische Kopplung unabhängig von der elektrischen Last.



**Abb. 7.17** Magnetoelektrische Kopplung  $g_{22}^{(\sigma,H)}$  und magnetische Induktion  $B_2$  (a) und der Vergleich der FEM und KM anhand von  $g_{22}$  (b) eines 0,2 CF - 0,8 BT - Komposits aufgetragen über der normierten elektrischen Feldstärke

In Abb. 7.17(a) ist das Ergebnis einer Simulation dargestellt, wo sowohl für die ferroelektrische als auch ferromagnetische Phase nichtlineares Materialverhalten zugrunde gelegt wird. Hier sind die magnetoelektrische Kopplung und die magnetische Induktion über der normierten elektrischen Feldstärke aufgetragen. Es wurde ein Komposit mit 80% Bariumtitanat und 20% Kobaltferrit modelliert. Die Parameter  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  der beiden Phasen sind die in den Abschnitten 7.1 und 7.2 erörterten. Das Komposit ist zunächst weder gepolt noch magnetisiert. Zuerst erfolgt durch eine unipolare elektrische Last mit  $E_2^{\text{max}} = 5 E_c$  und anschließender Entladung die Polarisation des ferroelektrischen Materials, s. Abb. 7.15(b). Im Anschluss wird das Kobaltferrit, ebenfalls durch eine unipolare Last mit Entlastung und  $H_2^{\text{max}} = 15 H_c$  magnetisiert, bevor abschließend erneut eine elektrische Last aufgeprägt wird. Lediglich in diesem Lastabschnitt, wo das Komposit bereits polarisiert und magnetisiert ist, erfolgt die Berechnung der magnetoelektrischen Kopplung  $g_{22}^{(\sigma,H)}$ . Aus Abb. 7.17(a) geht hervor, dass die elektrische Last bei kleinen Feldstärken keinen Einfluss auf die magnetische Induktion hat. Daher ist die magnetoelektrische Kopplung hier Null. Ab ungefähr  $1,75 E_c$  wird die magnetische Induktion durch die Domänenwandverschiebungen in der ferroelektrischen Phase beeinflusst. Ursache hierfür sind die zunehmenden Eigenspannungen in der ferroelektrischen Phase, die sich demagnetisierend auf die CF - Phase auswirken. Dies

wird auch aus der Definition des magnetoelektrischen Kopplungskoeffizienten  $g_{ij}^{(\sigma,H)}$  deutlich:

$$g_{ij}^{(\sigma,H)} = \frac{\partial \langle B_i \rangle}{\partial E_j^{\text{ext}}} \Big|_{\sigma,H} \approx \frac{\Delta \langle B_i \rangle}{\Delta E_j^{\text{ext}}} \Big|_{\sigma,H} = \frac{\Delta \langle M_i^{\text{irr}} \rangle}{\Delta E_j^{\text{ext}}} \Big|_{\sigma,H}, \quad (7.11)$$

wobei für  $\langle B_i \rangle$  Gl. (5.90) gilt und nach Abb. 7.15(b) im letzten Lastabschnitt  $\sigma_{ij}^{\text{ext}}, H_i^{\text{ext}} = 0$  ist. Auf Grund der Demagnetisierung der ferromagnetischen Phase nimmt die magnetische Induktion des Komposits ab, was sich in dem negativen Kopplungskoeffizienten in Abb. 7.17(a) widerspiegelt. In Abb. 7.17(b) sind die Ergebnisse der kondensierten Methode und der FEM für die magnetoelektrische Kopplung  $g_{22}^{(\sigma,H)}$  gegenübergestellt. Aus Abb. 7.17(b) geht hervor, dass bei der FEM bereits für moderate elektrische Feldstärken ein von Null verschiedener Kopplungskoeffizient zu beobachten ist. Grund hierfür sind höhere Eigenspannungen in der ferroelektrischen Phase im Rahmen der FEM. Diese resultieren aus Effekten der Diskretisierung eines Partikelkomposits, welche mit der KM nicht abgebildet werden können. Dennoch zeigen beide Methoden die Demagnetisierung der ferromagnetischen Phase, was durch die negative magnetoelektrische Kopplung deutlich wird. Weiterhin geht aus Abb. 7.17(b) hervor, dass die mit der KM berechnete magnetoelektrische Kopplung hinsichtlich der Größenordnung gut mit den Ergebnissen der FEM übereinstimmt.

## 7.4 Effektive Materialeigenschaften

Die Berechnung ferroelektrischer Keramiken mit Rissen basieren auf den Grundlagen aus Abschnitt 6.1. Ausgehend von einer wechselwirkungsfreien Defektverteilung ist es ausreichend, nur einen einzigen Riss in einem unendlichen Gebiet zu modellieren. Dieser repräsentiert dann eine Vielzahl kollinearere Risse, s. Abb. 7.18. Andere Modelle berücksichtigen eine statistische Verteilung der Rissorientierungen, welche zu isotropen Materialeigenschaften führt. Aufgrund der Annahme aus Kapitel 6, wonach beim Rissfortschritt nur Risse senkrecht zur Hauptnormalspannung  $\sigma_I$  berücksichtigt werden, liegt Isotropie nur anfangs vor und ist Bestandteil der Materialkonstanten piezoelektrischer Keramiken.

In den nachfolgenden Ergebnissen wird der Einfluss eines Risses der Länge  $2a$  auf die effektiven Materialeigenschaften untersucht. Hierzu wird ein senkrecht zu den Rissufern polarisiertes piezoelektrisches Material angenommen, s. Abb. 7.18. In diesem Beispiel stimmen das globale und das in Abb. 6.3 eingeführte Risskoordinatensystem überein. Abb. 7.19 zeigt die vier unabhängigen elastischen Konstanten eines ebenen transversal isotropen Körpers in Abhängigkeit von der in Gl. (6.27) eingeführten Rissdichte  $f$ .<sup>29</sup> Dabei sind in Abb. 7.19(a) sowie Abb. 7.19(b) die Ergebnisse für die generalisierte REUSS- bzw. VOIGT - Approximation dargestellt, s. Gln. (6.26) bzw. (6.25). Aufgrund der wechselwirkungsfreien Defektverteilung, werden hier nur Rissdichten bis  $f = 0,2$  untersucht. Größere Rissdichten sind bei

<sup>29</sup>Zur Vermeidung von Missverständnissen sei darauf hingewiesen, dass es bei räumlich transversal isotropen Körpern fünf unabhängige elastische Konstanten gibt. Bei Reduktion auf eine ebene Betrachtung verringert sich die Anzahl unabhängiger Konstanten auf vier.

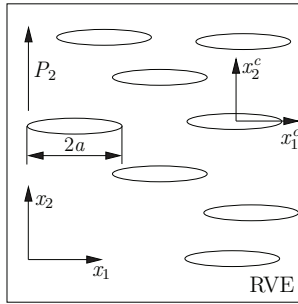


Abb. 7.18 Riss - RVE mit in  $x_2$  - Richtung gepolter Matrix zur Berechnung effektiver Materialeigenschaften basierend auf kollinearen Rissen der Länge  $2a$

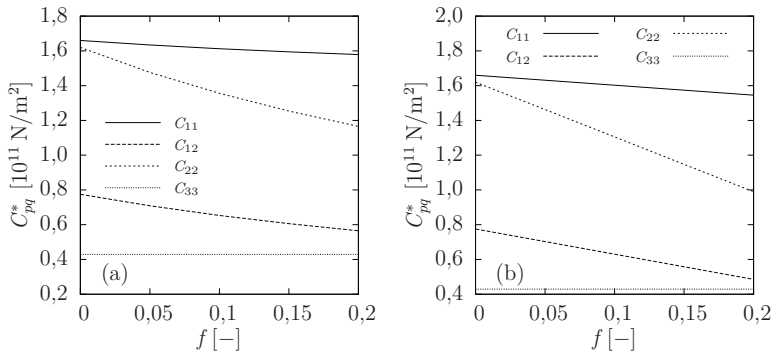
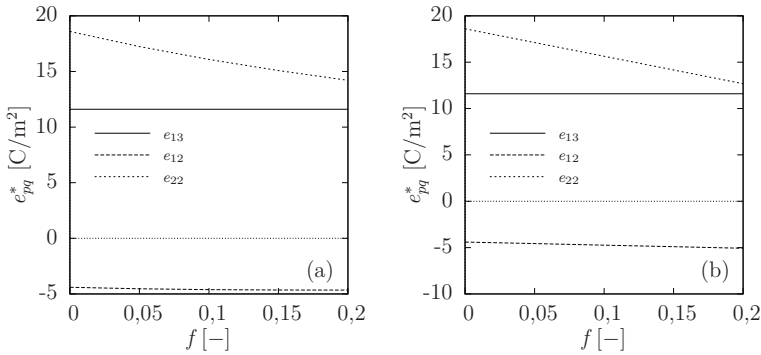


Abb. 7.19 Effektive elastische Eigenschaften für eine REUSS (a) oder VOIGT - Approximation (b)

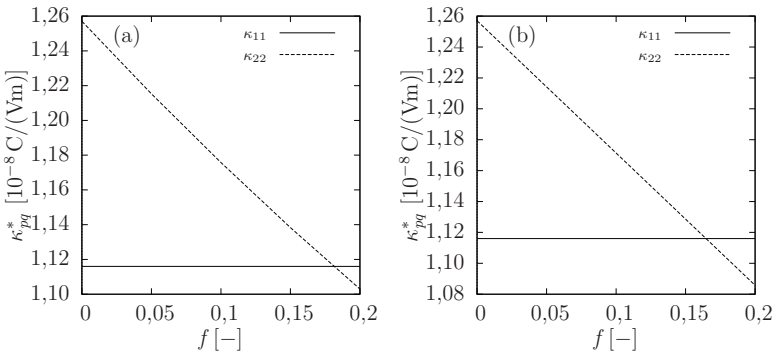
dieser Annahme irrelevant, s. hierzu auch [53]. Die deutliche Abnahme der Steifigkeit  $C_{22}$  senkrecht zum Riss mit zunehmender Rissdichte war zu erwarten. Die leichte Abnahme von  $C_{11}$  ist zunächst unerwartet, da  $C_{11}$  nicht unmittelbar durch Risse beeinflusst wird. Hier spielt vielmehr die piezoelektrische Kopplung die entscheidende Rolle.

In Abb. 7.20 ist der Einfluss der Rissdichte auf die piezoelektrischen Eigenschaften für die REUSS- und VOIGT - Approximationen dargestellt. Wie auch bei  $C_{22}$  nimmt  $e_{22}$  mit zunehmender Rissdichte ab, wohingegen  $e_{13}$  unabhängig von der Risslänge ist. Der durch  $e_{12}$  beschriebene transversale Effekt wird kaum von der Rissdichte beeinflusst.

Die effektiven dielektrischen Eigenschaften sind in Abb. 7.21 dargestellt. Wie zu erwarten wird die dielektrische Konstante parallel zum Riss nicht durch die Risslänge beeinflusst, wohingegen jene senkrecht zum Riss mit zunehmender Risslänge deutlich abnimmt. Hinsichtlich der Unterschiede zwischen REUSS- und VOIGT-



**Abb. 7.20** Effektive piezoelektrische Eigenschaften für eine REUSS (a) oder VOIGT - Approximation (b)

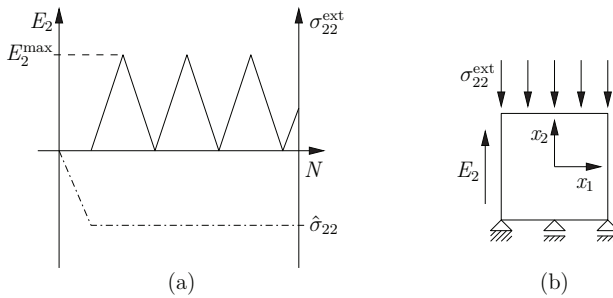


**Abb. 7.21** Effektive dielektrische Eigenschaften für eine REUSS (a) oder VOIGT-Approximation (b)

Approximation geht aus den Abbn. 7.19, 7.20 und 7.21 hervor, dass diese quantitativ sind und die effektiven Eigenschaften von der Art der Approximation nicht grundlegend beeinflusst werden.

## 7.5 Simulationen zur Lebensdauervorhersage

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse des in Abschnitt 6.2 präsentierten Modells zur Lebensdauervorhersage vorgestellt. Für sämtliche Untersuchungen wurde Bariumtitanat verwendet. Wenn nicht anders angemerkt, liegt den Simulationen die in Abb. 7.22(a) dargestellte elektromechanische Belastung zugrunde. Abb. 7.22(b) zeigt die mechanischen Randbedingungen, wobei als äußere Größen die Spannung  $\sigma_{ij}^{\text{ext}} = (0, \sigma_{22}^{\text{ext}}, 0)^T$  und elektrische Feldstärke  $E_i^{\text{ext}} = (0, E_2^{\text{ext}})^T$  vorgegeben werden.



**Abb. 7.22** Elektromechanische Beanspruchung (a) und Randbedingungen (b) für Simulationen zur Lebensdauervorhersage

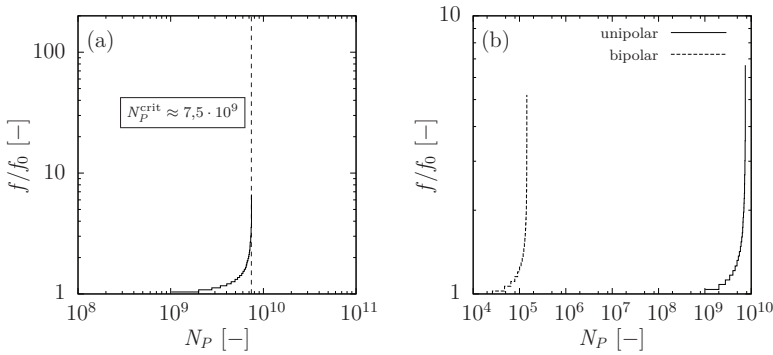
Für die elektrische Amplitude gilt, wenn nicht anders angegeben,  $E_2^{\max} = 10 E_c$ . Zur Bestimmung der Rissdichte nach Gl. (6.27) wird für die Kantenlänge des Riss-RVE  $\sqrt{A} = 10^{-3}$  m angenommen. Des Weiteren wird von einem RVE mit 30 zufällig orientierten materiellen Punkten ausgegangen. Die Konstanten  $C$  und  $\eta$  des PARIS-Gesetzes (6.38) wurden auf Grundlage experimenteller Untersuchungen von SALZ et al. [137] ermittelt. Dort wird das Ermüdungsrisswachstum sowohl von gepolten als auch von ungepolten PZT Keramiken untersucht und daher sind die PARIS-Konstanten als gemittelte Werte angegeben. Da in dieser Arbeit die Lebensdauer gepolter Keramiken untersucht wird, werden die Konstanten auf Basis der experimentellen Ergebnisse für gepolte Proben berechnet, d. h.  $C = 4,669 \cdot 10^{-4}$  und  $\eta = 17,794$ .<sup>30</sup>

Abb. 7.23(a) zeigt ein typisches Ergebnis einer Lebensdauersimulation. Hier ist die auf die Anfangsrissdichte  $f_0 = 0,005$  normierte Rissdichte  $f$  über der akkumulierten Lastspielzahl  $N_P$  aufgetragen. Es wird hier von einer rein elektrischen Last ausgegangen, d. h.  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$ . Aus Abb. 7.23(a) wird durch die vertikale Tangente deutlich, dass die Schädigungsentwicklung ein asymptotisches Verhalten aufweist, das auf die Lebensdauer  $N_P^{\text{crit}}$  führt. Bei der gewählten Anfangsrissdichte entspricht das 200-fache genau  $f = 1$ . Das Konvergenzkriterium und die Berechnung von  $N_P^{\text{crit}}$  sind im Anhang A.4 dargestellt. Aufgrund der asymptotischen Charakteristik kann die Berechnung bereits bei Werten von  $f$  beendet werden, die deutlich kleiner als eins sind. Dieser Sachverhalt begünstigt auch die Annahme einer wechselwirkungsfreien Defektphase. Bei dem Beispiel nach Abb. 7.23(a) beträgt die Lebensdauer  $N_P^{\text{crit}} \approx 7,5 \cdot 10^9$  Lastzyklen, wobei die relative Schädigung am Ende der Simulation weniger als 10% beträgt. Auch bei Strukturkeramiken ist bekannt s. z. B. [27], dass das Material den Großteil seiner Lebensdauer bei geringer Schädigung erfährt, da längere Risse oft bereits innerhalb weniger tausend Zyklen zum Versagen der Struktur durch Sprödbbruch führen. Das in Abb. 7.23(a) dargestellte Ergebnis dient nachfolgend als Referenzlösung für einige Berechnungen.

In Abb. 7.23(b) wird der Einfluss von unipolarer Abb. 7.22(a) und bipolarer

<sup>30</sup>Der Exponent  $\eta$  ist dimensionslos. Auf die Angabe der Einheit von  $C$  wird verzichtet, da die Dimension u. a. auch von  $\eta$  abhängt [28, 52].

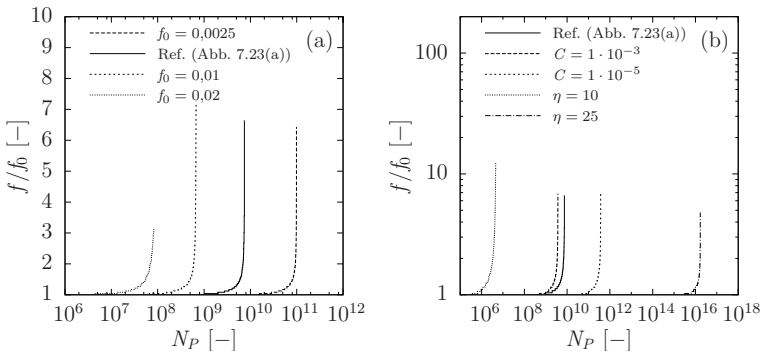




**Abb. 7.23** Normierte Rissdichte  $f/f_0$  aufgetragen über der Lastspielzahl  $N_P$ : Referenzlösung mit Bestimmung der kritischen Lastspielzahl  $N_P^{\text{crit}}$  (a) und Einfluss von bipolarer bzw. unipolarer Belastung auf die Lebensdauer (b)

Abb. 7.1(a) elektrischer Last auf die Lebensdauer untersucht. Erneut ist hier die normierte Rissdichte über der akkumulierten Lastspielzahl aufgetragen. Die Simulationen zeigen, dass eine bipolare elektrische Last im Vergleich zur unipolaren zu einer deutlichen Reduktion der Lebensdauer führt. Das Beispiel weist einen Unterschied von über vier Größenordnungen auf, was auf die höheren Eigenspannungen in Folge gesteigerter Domänenwandaktivität bei wiederholter Umpolung zurückzuführen ist.

Der Einfluss der Anfangsrissdichten  $f_0 = 0,0025, 0,005, 0,01$  und  $0,02$  auf die Lebensdauer ist in Abb. 7.24(a) dargestellt. Den Simulationen liegen rein elektrische Belastungen zugrunde. Abb. 7.24(a) zeigt, dass eine Erhöhung der Anfangs-



**Abb. 7.24** Einfluss der Anfangsrissdichte (a) und der PARIS - Konstanten (b) auf die Lebensdauer

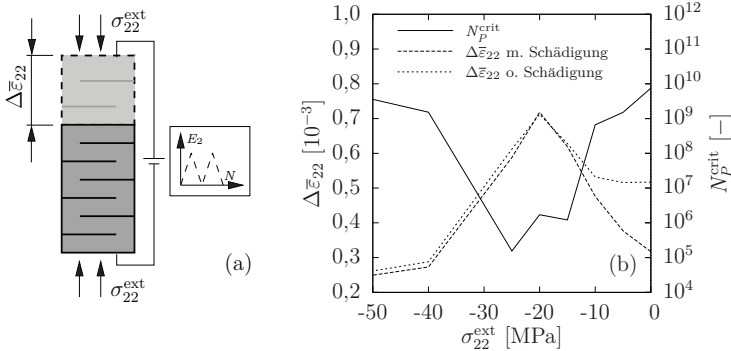
rissdichte zu einer wesentlichen Reduktion der Lebensdauer führt. Zwischen den Lebensdauern, die aus der geringsten und der größten Anfangsrissdichte resultieren, liegen ungefähr vier Größenordnungen. Dieser Einfluss folgt unmittelbar aus dem integrierten PARIS - Gesetz Gl. (6.42), da bei der Berechnung der physikalischen Lastspiele je numerischem Zyklus eine größere (Anfangs-)risslänge zu einer geringeren Lastspielzahl  $N_P$  führt.

In Abb. 7.24(b) wird der Einfluss der PARIS - Konstanten auf die Lebensdauer untersucht. Die wesentliche Erkenntnis ist hier, dass diese, insbesondere der Exponent  $\eta$ , einen wesentlichen Einfluss auf die Lebensdauer haben. Aufgrund dieser starken Abhängigkeit und dem Umstand, dass die Parameter für Mikrorisse in Bariumtitanat nicht hinreichend genau bekannt sind, müssen die Ergebnisse als qualitativ angesehen werden.

In Abb. 7.25(b) werden Lebensdauer und Aktorhub  $\Delta\bar{\varepsilon}_{22}$  bei zyklischem elektrischem Feld in Verbindung mit einer konstanten Druckvorspannung, s. Abb. 7.22(a), untersucht. Sowohl die Anfangsrissdichte als auch die PARIS - Konstanten entsprechen denen der Referenzlösung nach Abb. 7.23(a). Dabei ist der Aktorhub, s. Abb. 7.25(a), definiert durch:

$$\Delta\bar{\varepsilon}_{22} = \bar{\varepsilon}_{22}(E_2^{\max}) - \bar{\varepsilon}_{22}(E_2 = 0). \quad (7.12)$$

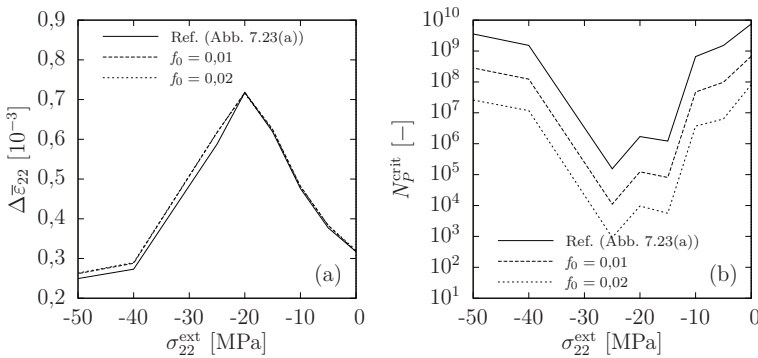
Man würde vielleicht intuitiv vermuten, dass eine Druckvorspannung den Aktorhub reduziert und die Lebensdauer nur unwesentlich beeinflusst. Experimentelle Untersuchungen [29, 30, 103, 165] haben jedoch gezeigt, dass eine moderate Druckvorspannung in Richtung des elektrischen Feldes die Effizienz eines Aktors verbessert. Hinsichtlich der Lebensdauer haben Experimente von Li [95] gezeigt, dass diese, abhängig von der Intensität der Druckvorspannung, entscheidend reduziert werden kann. Die beobachteten Effekte sind auch in Abb. 7.25(b) zu sehen. Hierbei re-



**Abb. 7.25** Skizze eines Stapelaktors mit Aktorhub  $\Delta\bar{\varepsilon}_{22}$  (a) und Aktorhub sowie Lebensdauer  $N_P^{\text{crit}}$  aufgetragen über der Druckvorspannung  $\sigma_{22}^{\text{ext}}$  (b)

präsentiert die volle Linie die Lebensdauer  $N_P^{\text{crit}}$  über der konstanten Druckvorspannung  $\sigma_{22}^{\text{ext}}$ . Für den Aktorhub  $\Delta\bar{\varepsilon}_{22}$  sind zwei unterschiedliche Ergebnisse dargestellt: die gestrichelte Linie zeigt den Zeitpunkt, wo ca. 20% der Lebensdauer erreicht ist.

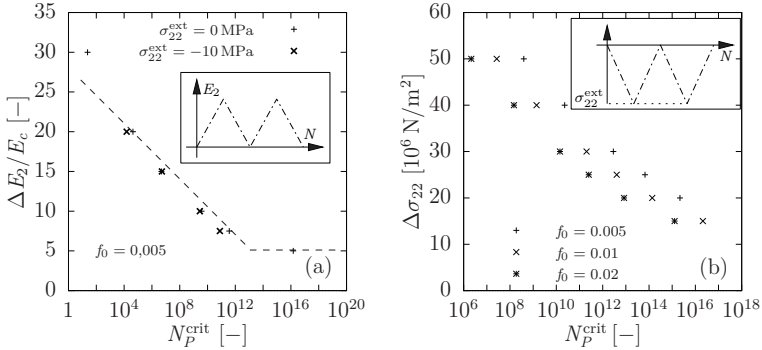
Bei der gepunkteten Linie wird der Einfluss der Schädigung nicht berücksichtigt. Hinsichtlich des Aktorhubes können die Ergebnisse von Abb. 7.25(b) wie folgt zusammengefasst werden: für geringe Druckvorspannungen hat die Schädigung einen erheblichen Einfluss, wobei der Unterschied zu einer schädigungsfreien Berechnung ohne Druckvorspannung am größten ist. Ab einer Druckvorspannung von ungefähr -15 MPa ist der Einfluss der Schädigung auf den Aktorhub vernachlässigbar. Der maximale Aktorhub wird bei einer Druckvorspannung von -20 MPa erreicht. Für weiter zunehmende mechanische Drucklasten nimmt der Aktorhub wieder ab und ist bei -50 MPa sogar geringer als bei 0 MPa. Eine Optimierung von  $\Delta\bar{\varepsilon}_{22}$  durch mechanische Vorspannung erfolgt jedoch zu Lasten der Lebensdauer  $N_P^{\text{crit}}$ , s. Abb. 7.25(b). Der größten Lebensdauer  $N_P^{\text{crit}} \approx 7,5 \cdot 10^9$  bei  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$  MPa steht ein Minimum von  $N_P^{\text{crit}} \approx 10^5$  bei  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = -25$  MPa gegenüber. Physikalisch können die in Abb. 7.25(b) beobachteten Effekte durch die inelastischen Prozesse infolge der Domänenwandverschiebungen erklärt werden. Wie bereits in der Diskussion zu Abb. 7.9 erläutert, führt eine Druckvorspannung  $\sigma_{22}^{\text{ext}}$  zu einer Zunahme der Volumenanteile von Domänen senkrecht zum elektrischen Feld  $E_2^{\text{ext}}$ . Ein zyklisches elektrisches Feld führt dann zu größeren inelastischen Dehnungen. Diese wirken sich unmittelbar auf die Eigenspannungen und somit auf die Lebensdauer aus. In diesem Fall reicht die durch das elektrische Feld verrichtete Arbeit nicht aus, um  $90^\circ$ -Umlappprozesse zu initiieren. Der Aktorhub wird dann durch  $180^\circ$ -Prozesse dominiert, die keinen Beitrag zur inelastischen Dehnung leisten und daher geringere Eigenspannungen zur Folge haben, was letztlich zur Zunahme der Lebensdauer führt. Aus Abb. 7.25(b) kann abgeleitet werden, bei welcher Druckvorspannung Aktorhub und Lebensdauer in einem geeigneten Verhältnis zueinander stehen. Im dargestellten Beispiel führt eine Druckvorspannung von -10 MPa zu einem guten Kompromiss.



**Abb. 7.26** Einfluss der Druckvorspannung  $\sigma_{22}^{\text{ext}}$  und der Anfangsrissdichte  $f_0$  auf Aktorhub (a) und Lebensdauer (b)

In Abb. 7.26 werden Einflüsse der Anfangsrissdichte  $f_0$  und der Druckvorspannung  $\sigma_{22}^{\text{ext}}$  auf den Aktorhub und die Lebensdauer untersucht. Hierbei stellt die volle Linie das Referenzergebnis nach Abb. 7.23(a) dar. Aus Abb. 7.26(a) geht hervor,

dass der Faktorhub kaum von der untersuchten Anfangsrisssdichte beeinflusst wird. Die Qualität des Materials, hier repräsentiert durch die Anfangsrisssdichte  $f_0$ , hat auf der anderen Seite sehr wohl einen Einfluss auf die Lebensdauer. Abb. 7.26(b) zeigt, dass bei  $f_0 = 0,02$  und einer Druckvorspannung von  $-25$  MPa die Lebensdauer auf ca. 1000 Zyklen reduziert wird.



**Abb. 7.27** Numerische WÖHLER - Linien: Variation der elektrischen Amplitude bei konstanter Druckvorspannung (a) und Einfluss der Anfangsrisssdichte bei zyklischer Druckspannung ohne elektrische Last auf die Lebensdauer (b)

In Abb. 7.27 sind numerische Berechnungen von WÖHLER - Linien dargestellt. Die Variation der elektrischen Amplitude bei konstanter Druckvorspannung ist Gegenstand von Abb. 7.27(a). Hier ist zu erkennen, dass eine zunehmende elektrische Amplitude einen signifikanten Einfluss auf die Lebensdauer hat. Bei  $\sigma_{22}^{\text{ext}} = 0$  MPa stehen 100 Lastzyklen bei einer Amplitude von  $30 E_c$  mehr als  $10^{16}$  Zyklen bei einer Amplitude von  $5 E_c$  gegenüber. Diese beiden Beispiele repräsentieren auch zwei wesentliche Bereiche eines WÖHLER - Diagramms. So sind Ergebnisse mit wenigen Lastzyklen dem Kurzzeitfestigkeitsbereich zuzuordnen, wohingegen Lebensdauern von  $10^{16}$  Zyklen dem Dauerfestigkeitsbereich zugehörig sind. Der dritte Bereich, die Zeitfestigkeit, wird in der einfach logarithmischen Darstellung durch eine Gerade repräsentiert. In Abb.7.27(a) sind Zeit- und Dauerfestigkeit durch die gestrichelte Linie angedeutet.

Abb. 7.27(b) zeigt Ergebnisse für eine zyklische Druckspannung bei  $E_2^{\text{ext}} = 0$ . Ferner wurde für diesen Belastungsfall auch der Einfluss der Anfangsrisssdichte  $f_0$  untersucht. Wie auch in Abb. 7.27(a) wird der Bereich der Zeitfestigkeit in der einfach logarithmischen Darstellung durch eine Gerade repräsentiert. Bei ca.  $10^{13}$  Lastzyklen erfolgt für die Anfangsrisssdichten  $f_0 = 0,01$  und  $0,02$  der Übergang in den Bereich der Dauerfestigkeit. Für eine elektromechanische Belastung nach Abb. 7.22(a) konnte bereits festgestellt werden, dass sich die Lebensdauer mit zunehmender Anfangsrisssdichte verringert, s. Abbn. 7.24(a) und 7.26(b). Dieser Effekt wird auch bei der in Abb. 7.27(b) dargestellten Belastungsart beobachtet.



# 8 Zusammenfassung

## 8.1 Zusammenfassung

Ziel der vorliegenden Arbeit war es, ein Verfahren zu entwickeln, mit dem das nichtlineare Verhalten polykristalliner ferroelektrischer, -magnetischer und multiferroischer Materialien, ohne die Verwendung eines Diskretisierungsverfahrens, untersucht werden kann. Ausgehend von dem von HWANG et al. [65] vorgeschlagenen mikromechanischen Modell in Verbindung mit den von HUBER et al. [62] eingeführten skalaren Gewichten einzelner Polarisationsvarianten in einem Korn wurde die kondensierte Methode (KM) für Polykristalle entwickelt und vorgestellt. Zur Berechnung makroskopischer Größen wird hier zum einen von diskreten Phasen und homogenen Feldern innerhalb eines Korns ausgegangen, zum anderen wird angenommen, dass alle Körner die selbe Größe haben. Da die KM das RVE auf einen globalen materiellen Punkt kondensiert, war zunächst zu klären, wie bei diesem Problem eine Korninteraktion umgesetzt werden kann. Zur Lösung dieser Fragestellung wurden drei verschiedene Approximationen diskutiert: die generalisierte VOIGT - Approximation geht von konstanter Verzerrung, elektrischer und magnetischer Feldstärke im gesamten RVE aus. Eine gemischte REUSS/VOIGT - Approximation setzt konstante Verzerrung, dielektrische Verschiebung und magnetische Induktion im RVE voraus, wohingegen bei der generalisierten REUSS - Approximation Spannung, dielektrische Verschiebung und magnetische Induktion konstant sind. Da die Interaktionen der einzelnen Körner auf die Eigenspannungen infolge der Domänenwandverschiebung zurückzuführen sind, ist die REUSS - Approximation nicht weiter verfolgt worden. Die gemischte REUSS/VOIGT - Approximation wurde lediglich auf ferroelektrisches Materialverhalten angewandt und mit einer reinen VOIGT - Approximation verglichen. Bei Erweiterungen der KM auf ferromagnetisches oder multiferroisches Materialverhalten wurde ausschließlich die generalisierte VOIGT - Approximation zugrunde gelegt. Die Interaktion zwischen den einzelnen Körnern erfolgt somit über die makroskopische Verzerrung. Eine anschließende Validierung der KM mit experimentellen Untersuchungen, u. a. mit [29, 30, 43, 165], sowie Vergleiche mit anderen numerischen Werkzeugen auf Basis der FEM haben gezeigt, dass die KM ein leistungsfähiges Werkzeug ist, wenn es darum geht, ein komplexes Materialverhalten ohne die Verwendung eines Diskretisierungsverfahrens abzubilden. Die KM erreicht dann ihre Grenze, wenn es um die Lösung komplexer Randwertprobleme geht. Hierzu ist ein Diskretisierungsverfahren, wie z. B. die FEM, erforderlich.

Mit dem Modell zur Lebensdauervorhersage wurde ein Ansatz verfolgt, mit wenigen numerischen Zyklen die Lebensdauer, z. B. eines Aktors bei kombinierter elektromechanischer Belastung, abzuschätzen. Das Modell nutzt unter anderem das klassische PARIS - Gesetz [126] und akkumuliert die in einem numerischen Zyklus

berechneten physikalischen Zyklen, die nötig sind, um einen definierten Rissfortschritt  $\Delta a$  zu erzielen. Hinsichtlich der Berechnung effektiver Materialeigenschaften wird von einer wechselwirkungsfreien Defektverteilung und einer aus elektrischer Sicht impermeablen Randbedingung auf den Rissufern ausgegangen. Numerische Simulationen haben gezeigt, dass das Material einen Großteil seiner Lebensdauer bei geringer Schädigung erfährt. Dies konnte auch bei Strukturkeramiken beobachtet werden [27] und ist darauf zurückzuführen, dass längere Risse bereits in deutlich weniger Zyklen zum Versagen führen als kurze Risse. Auch die numerischen Untersuchungen zur Lebensdauervorhersage unter kombinierter elektromechanischer Beanspruchung bilden die in Experimenten beobachteten Effekte gut ab [29, 30, 95, 103, 165]. So führt eine moderate Druckspannung parallel zur elektrischen Last einerseits zu einer Vergrößerung des Aktorhubs, andererseits aber zu einer signifikanten Reduktion der Lebensdauer.

## 8.2 Ausblick

Erste Untersuchungen eines Polykristalls mit rhomboedrischen Elementarzellen haben gezeigt, dass die Reduktion auf ein ebenes Problem aufgrund der vielfältigen Umklappvarianten die physikalische Realität nicht ausreichend abbildet. Um auch bei derartigen Elementarzellen sämtliche Umklappprozesse abbilden zu können, ist eine Erweiterung auf räumliche Probleme unumgänglich. Darauf aufbauend kann die KM auch dahingehend erweitert werden, dass in einem lokalen materiellen Punkt mehrere Phasen vorliegen, wie es bei Kompositionen an der morphotropen Phasengrenze (MPG) der Fall ist. Zwei Ansätze zur diesbezüglichen Modellierung wurden in Kapitel 5.4 vorgestellt, allerdings liegt noch keine Evolutionsgleichung für den Phasenübergang vor.

Unabhängig davon, ob zwei- oder dreidimensionale Probleme betrachtet werden, sollten einige grundlegende Annahmen der KM überdacht und gegebenenfalls überarbeitet werden. Bei der Berechnung makroskopischer Größen wurde u. a. davon ausgegangen, dass jedes Korn die selbe Größe hat, was auf ein reales Korngefüge nicht zutrifft. Ferner wird auf der Ebene eines Einkristalls bisher davon ausgegangen, dass die Domänen innerhalb dieses nicht miteinander interagieren. Demzufolge können einzelne Domänen den gesamten Volumenanteil eines Kornes einnehmen. Ferner liegen keine Eigenspannungen im Korn vor und die Hysteresen sind unrealistisch multilinear. Untersuchungen in z. B. [31] haben jedoch gezeigt, dass auch bei Einkristallen glatte Hysteresen zu beobachten sind.

Die hier angenommene generalisierte VOIGT - Approximation führt dazu, dass in jedem Korn (in jedem lokalen materiellen Punkt) die gleiche Verzerrung bzw. elektrische Feldstärke vorliegt. Diese Annahme ist sicherlich ein grundlegender Einschnitt in die Physik der hier betrachteten Materialien, da z. B. bei Elektroden spitzen in Aktoren ein stark gradiertes elektrisches Feld vorliegt [50]. Dieser Sachverhalt kann mit der bislang entwickelten KM nicht abgebildet werden. Dies wirft die grundlegende Frage auf, wie gradierte Felder bei einer diskretisierungsfreien Methode ohne jegliche Ortsinformation abgebildet werden können. Denkbar ist hier eine geeignete Abbildung von räumlichen auf materielle Punkte in definierten Kontrollvolumina [155].

Ein sehr vielversprechender Ansatz ist die Verknüpfung der KM mit der FEM. Bei numerischen Berechnungen mit der FEM in z. B. [4, 5, 50] wird von einem Korn je Integrationspunkt ausgegangen. In Verbindung mit der KM wäre es möglich, polykristallines Verhalten mit Korninteraktion an jedem Integrationspunkt abzubilden. Die Kombination beider Methoden wird zu einer deutlichen Reduktion der benötigten Elemente und möglicherweise auch zu einer Reduktion der Rechenzeit führen. Noch wesentlicher ist der Aspekt der Entkopplung von räumlicher Diskretisierung und Kornstruktur. Diese Idee steht in Konkurrenz zur bekannten  $FE^2$ -Methode, indem hier numerische und analytische Methoden kombiniert werden.

Im Hinblick auf das Modell zur Lebensdauervorhersage haben die numerischen Untersuchungen in Kapitel 7.5 gezeigt, dass die PARIS - Konstanten, hier vor allem  $\eta$ , einen deutlichen Einfluss auf die berechnete Lebensdauer haben. Da in dieser Arbeit die Werte von PZT, basierend auf den Untersuchungen von SALZ et al. [137], angenommen wurden, ist eine generelle experimentelle Validierung dieses Modells empfehlenswert.

Schließlich ist es denkbar die KM auf das Materialverhalten von Anti- oder Relaxorferroelektrika anzuwenden.





# A Ergänzungen

## A.1 Verschiebungsfelder für tetragonale und rhomboedrische Elementarzellen

Nachfolgend wird auf die in Kapitel 4 zur Ableitung der Verzerrungstensoren notwendigen Verschiebungsfelder eingegangen. Grundlage bildet der Ansatz für den Verschiebungsvektor  $u_i$ :

$$u_i(X_1, X_2) = \begin{pmatrix} u(X_1, X_2) \\ v(X_1, X_2) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} u_0 + u_1 X_1 + u_2 X_2 + u_{12} X_1 X_2 \\ v_0 + v_1 X_1 + v_2 X_2 + v_{12} X_1 X_2 \end{pmatrix}, \quad (\text{A.1})$$

der auf den Koordinaten der Ausgangskonfiguration  $X_i$  basiert. In Gl. (A.1) beschreibt  $u$  die Verschiebung in  $X_1$ -Richtung und  $v$  die Verschiebung in  $X_2$ -Richtung. Die Konstanten  $u_0, u_1, u_2$  und  $u_{12}$  bzw.  $v_0, v_1, v_2$  und  $v_{12}$  sind abhängig vom betrachteten Problem und werden mit Hilfe der Verschiebungsvektoren  $u_i^{(j)}$  ( $\tilde{X}_1, \tilde{X}_2$ ) der Eckpunkte bestimmt.

Für den in Abb. 4.2 dargestellten Umklappprozess gilt für die Konstanten  $u_0, u_1, u_2, u_{12}$  bzw.  $v_0, v_1, v_2$  und  $v_{12}$  das nachfolgende Gleichungssystem:

$$\begin{pmatrix} 1 & \frac{c}{2} & \frac{a}{2} & \frac{ca}{4} \\ 1 & -\frac{c}{2} & \frac{a}{2} & -\frac{ca}{4} \\ 1 & -\frac{c}{2} & -\frac{a}{2} & \frac{ca}{4} \\ 1 & \frac{c}{2} & -\frac{a}{2} & -\frac{ca}{4} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_0 \\ u_1 \\ u_2 \\ u_{12} \end{pmatrix} = \frac{c-a}{2} \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \\ 1 \\ -1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.2})$$

$$\begin{pmatrix} 1 & \frac{c}{2} & \frac{a}{2} & \frac{ca}{4} \\ 1 & -\frac{c}{2} & \frac{a}{2} & -\frac{ca}{4} \\ 1 & -\frac{c}{2} & -\frac{a}{2} & \frac{ca}{4} \\ 1 & \frac{c}{2} & -\frac{a}{2} & -\frac{ca}{4} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} v_0 \\ v_1 \\ v_2 \\ v_{12} \end{pmatrix} = \frac{c-a}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ -1 \\ -1 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.3})$$

Mit den Gleichungssystemen (A.2) und (A.3) werden die Konstanten des Verschiebungsansatzes (A.1) bestimmt. Für das Verschiebungsfeld gilt:

$$u_i(X_1, X_2) = \frac{c-a}{a} \begin{pmatrix} -\frac{a}{c} X_1 \\ \frac{c}{X_2} \end{pmatrix}. \quad (\text{A.4})$$

Das Vorgehen für die umgekehrte Zustandsänderung erfolgt analog dem oben beschriebenen Verfahren, weswegen hierfür ausschließlich das Verschiebungsfeld angegeben wird:

$$u_i(X_1, X_2) = \frac{c-a}{a} \begin{pmatrix} X_1 \\ -\frac{a}{c} X_2 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.5})$$

Grundlage für die Bestimmung des Verschiebungsfeldes der rhomboedrischen Elementarzelle bildet Abb. 4.4. Das zu einem  $70,5^\circ$  - Umklappprozess, s. Abb. 4.4(a), zugehörige Gleichungssystem zur Bestimmung der Konstanten nach Gl. (A.1) lautet:

$$\begin{pmatrix} 1 & \frac{e}{2} & 0 & 0 \\ 1 & \frac{d}{2} \cos \beta & \frac{d}{2} \sin \beta & \frac{d^2}{4} \cos \beta \sin \beta \\ 1 & -\frac{e}{2} & 0 & 0 \\ 1 & -\frac{d}{2} \cos \beta & -\frac{d}{2} \sin \beta & \frac{d^2}{4} \cos \beta \sin \beta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_0 \\ u_1 \\ u_2 \\ u_{12} \end{pmatrix} = \frac{e-d}{2} \begin{pmatrix} -1 \\ \cos \beta \\ 1 \\ -\cos \beta \end{pmatrix}, \quad (\text{A.6})$$

$$\begin{pmatrix} 1 & \frac{e}{2} & 0 & 0 \\ 1 & \frac{d}{2} \cos \beta & \frac{d}{2} \sin \beta & \frac{d^2}{4} \cos \beta \sin \beta \\ 1 & -\frac{e}{2} & 0 & 0 \\ 1 & -\frac{d}{2} \cos \beta & -\frac{d}{2} \sin \beta & \frac{d^2}{4} \cos \beta \sin \beta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} v_0 \\ v_1 \\ v_2 \\ v_{12} \end{pmatrix} = \frac{e-d}{2} \begin{pmatrix} 0 \\ \sin \beta \\ 0 \\ -\sin \beta \end{pmatrix}. \quad (\text{A.7})$$

Mit den Konstanten der Gleichungssysteme (A.6) und (A.7) folgt für das Verschiebungsfeld gemäß Gl. (A.1):

$$u_i(X_1, X_2) = \begin{pmatrix} \frac{d-e}{e} X_1 + \frac{e^2-d^2}{e} \frac{1}{\tan \beta} X_2 \\ \frac{e-d}{d} X_2 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.8})$$

Bei Umklappprozessen der Domänen zwei und vier um  $-70,5^\circ$  bzw.  $109,5^\circ$  (Abb. 4.4(b)) lauten die zugehörigen Gleichungssysteme zur Bestimmung der Konstanten nach Gl. (A.1):

$$\begin{pmatrix} 1 & \frac{d}{2} & 0 & 0 \\ 1 & \frac{e}{2} \cos \beta & \frac{e}{2} \sin \beta & \frac{e^2}{4} \cos \beta \sin \beta \\ 1 & -\frac{d}{2} & 0 & 0 \\ 1 & -\frac{e}{2} \cos \beta & -\frac{e}{2} \sin \beta & \frac{e^2}{4} \cos \beta \sin \beta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_0 \\ u_1 \\ u_2 \\ u_{12} \end{pmatrix} = \frac{e-d}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ -\cos \beta \\ -1 \\ \cos \beta \end{pmatrix}, \quad (\text{A.9})$$

$$\begin{pmatrix} 1 & \frac{d}{2} & 0 & 0 \\ 1 & \frac{e}{2} \cos \beta & \frac{e}{2} \sin \beta & \frac{e^2}{4} \cos \beta \sin \beta \\ 1 & -\frac{d}{2} & 0 & 0 \\ 1 & -\frac{e}{2} \cos \beta & -\frac{e}{2} \sin \beta & \frac{e^2}{4} \cos \beta \sin \beta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} v_0 \\ v_1 \\ v_2 \\ v_{12} \end{pmatrix} = \frac{e-d}{2} \begin{pmatrix} 0 \\ -\sin \beta \\ 0 \\ \sin \beta \end{pmatrix}. \quad (\text{A.10})$$

Mit den Lösungen aus den Gln. (A.9) und (A.10) folgt das Verschiebungsfeld (A.1) eines Umklappprozesses gemäß Abb. 4.4(b):

$$u_i(X_1, X_2) = \begin{pmatrix} \frac{e-d}{d} X_1 + \frac{d^2-e^2}{d} \frac{1}{\tan \beta} X_2 \\ \frac{d-e}{e} X_2 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.11})$$

## A.2 Spontane Dehnung der rhomboedrischen Elementarzelle

Inhalt dieses Abschnittes ist die Herleitung der LAGRANGE - GREENSchen und EULER - ALMANSISchen Verzerrungstensenoren für die in Abb. 4.4(b) dargestellten Umklappprozesse und der Nachweis, dass für den Sonderfall kleiner Verzerrungen diese Tensenoren in den CAUCHYSchen Verzerrungstensor übergehen. Für die in Abb. 4.4(b) dargestellten Umklappprozesse der Domänen zwei und vier bildet die Vorschrift

$$x_i = \begin{pmatrix} \left(1 + \frac{e-d}{d}\right) X_1 + \frac{d^2 - e^2}{de} \frac{1}{\tan \beta} X_2 \\ \left(1 + \frac{d-e}{e}\right) X_2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.12})$$

die Referenzkonfiguration in die Momentankonfiguration ab. Die Gln. (3.1) und (A.12) führen auf das zugehörige Verschiebungsfeld:

$$u_i = \begin{pmatrix} \frac{e-d}{d} X_1 + \frac{d^2 - e^2}{de} \frac{1}{\tan \beta} X_2 \\ \frac{d-e}{e} X_2 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.13})$$

Der zugehörige Deformationsgradient und dessen Inverse lauten:

$$F_{ij} = \begin{pmatrix} 1 + \frac{e-d}{d} & \frac{d^2 - e^2}{de} \frac{1}{\tan \beta} \\ 0 & 1 + \frac{d-e}{e} \end{pmatrix}, \quad F_{ij}^{-1} = \begin{pmatrix} 1 + \frac{d-e}{e} & \frac{e^2 - d^2}{de} \frac{1}{\tan \beta} \\ 0 & 1 + \frac{e-d}{d} \end{pmatrix}. \quad (\text{A.14})$$

Daraus können mit den Gln. (3.16) und (A.14) der LAGRANGE - GREENSche Verzerrungstensor

$$E_{ij} = \frac{e-d}{d} \begin{pmatrix} 1 & -\frac{1}{2} \frac{d+e}{e} \frac{1}{\tan \beta} \\ -\frac{1}{2} \frac{d+e}{e} \frac{1}{\tan \beta} & -\frac{d}{e} \end{pmatrix} + \frac{1}{2} \left(\frac{e-d}{d}\right)^2 \begin{pmatrix} 1 & -\frac{d+e}{e} \frac{1}{\tan \beta} \\ -\frac{d+e}{e} \frac{1}{\tan \beta} & \left(\frac{d}{e}\right)^2 + \frac{(d^2 - e^2)^2}{(e-d)^2 e^2 \tan^2 \beta} \end{pmatrix}. \quad (\text{A.15})$$

und mit den Gln. (3.18) und (A.14) der EULER - ALMANSISCHE Verzerrungstensor

$$e_{ij} = \frac{e-d}{d} \begin{pmatrix} \frac{d}{e} & -\frac{1}{2} \frac{d+e}{e} \frac{1}{\tan \beta} \\ -\frac{1}{2} \frac{d+e}{e} \frac{1}{\tan \beta} & -1 \end{pmatrix} - \frac{1}{2} \left( \frac{e-d}{d} \right)^2 \begin{pmatrix} 1 & -\frac{d+e}{e^2} \frac{d}{\tan \beta} \\ -\frac{d+e}{e^2} \frac{d}{\tan \beta} & 1 + \frac{(d^2 - e^2)^2}{(e-d)^2 e^2 \tan^2 \beta} \end{pmatrix} \quad (\text{A.16})$$

bestimmt werden. Analog zu Gl. (4.27) gilt für die Gln. (A.15) und (A.16) unter der Annahme kleiner Verzerrungen:

$$\lim_{d/e \rightarrow 1} E_{ij} = \lim_{d/e \rightarrow 1} e_{ij} = \frac{e-d}{d} \begin{pmatrix} 1 & -\frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan \beta} \\ -\frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan \beta} & -1 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.17})$$

Aus Gl. (A.17) geht hervor, dass für kleine Verzerrungen die quadratischen Terme gegenüber den linearen vernachlässigbar sind. Wird darüberhinaus Gl. (A.17) mit dem aus Gl. (A.13) folgenden CAUCHYSCHEN Verzerrungstensor

$$\varepsilon_{ij} = \frac{e-d}{d} \begin{pmatrix} 1 & -\frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan \beta} \\ -\frac{1}{2} \frac{e+d}{e} \frac{1}{\tan \beta} & -1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.18})$$

verglichen, so wird deutlich, dass auch für diese Umklappvarianten der LAGRANGE - GREENSCHE und der EULER - ALMANSISCHE Verzerrungstensor mit dem CAUCHYSCHEN Verzerrungstensor übereinstimmen, insbesondere da die Annahme kleiner Deformationen bei den vorliegenden Gitterkonstanten erfüllt ist.

### A.3 Volumen eines Parallelepipeds

Bei dem in Abb. 4.3 dargestellten Parallelepipid ist eine unmittelbare Berechnung des Volumens  $V$  über das Spatprodukt

$$V = \varepsilon_{ijk} a_j b_k c_i \quad (\text{A.19})$$

nicht möglich, da die Koordinaten des Vektors  $c_i$  nicht bekannt sind. Eine Bestimmung des Volumens ist dennoch mit Hilfe der GRAMSCHE Matrix [16, 41]

$$M_{mn} = \begin{pmatrix} \langle v^{(1)}, v^{(1)} \rangle & \dots & \langle v^{(1)}, v^{(n)} \rangle \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \langle v^{(n)}, v^{(1)} \rangle & \dots & \langle v^{(n)}, v^{(n)} \rangle \end{pmatrix} \quad (\text{A.20})$$

möglich. In Gl. (A.20) beschreiben die Vektoren  $v^{(n)}$  die Basis eines  $n$ -dimensionalen Vektorraumes und  $\langle \cdot, \cdot \rangle$  die Bilinearform. Die Bilinearform ist dann ein Skalarprodukt, wenn die GRAMSche Matrix symmetrisch und positiv definit ist und die Vektoren  $v^{(n)}$  linear unabhängig sind. Nach [16, 41] ist in diesem Fall die Determinante

$$M(v^{(1)}, \dots, v^{(n)}) = \det(M_{mn}) > 0 \quad (\text{A.21})$$

und somit kann das Volumen durch

$$V = \sqrt{M(v^{(1)}, \dots, v^{(n)})} \quad (\text{A.22})$$

bestimmt werden. Da die in Abb. 4.3 eingeführten Vektoren  $a_i$ ,  $b_i$  und  $c_i$  linear unabhängig sind und die zwischen diesen Vektoren eingeschlossenen Winkel

$$\begin{aligned} \alpha &= \angle(a_i, b_i), \\ \beta &= \angle(b_i, c_i), \\ \gamma &= \angle(a_i, c_i) \end{aligned} \quad (\text{A.23})$$

sowie die Beträge der Vektoren  $|a_i| = a$ ,  $|b_i| = b$ ,  $|c_i| = c$  bekannt sind, kann die GRAMSche Matrix bestimmt werden:

$$M_{mn} = \begin{pmatrix} a^2 & ab \cos \alpha & ac \cos \beta \\ ab \cos \alpha & b^2 & bc \cos \gamma \\ ac \cos \beta & bc \cos \gamma & c^2 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.24})$$

Für die Determinante  $M$  folgt

$$M = a^2 b^2 c^2 (1 + 2 \cos \alpha \cos \beta \cos \gamma - \cos^2 \alpha - \cos^2 \beta - \cos^2 \gamma). \quad (\text{A.25})$$

Mit Gl. (A.22) ergibt sich für das Volumen eines Parallelepipeds:

$$V = abc \sqrt{1 + 2 \cos \alpha \cos \beta \cos \gamma - \cos^2 \alpha - \cos^2 \beta - \cos^2 \gamma}. \quad (\text{A.26})$$

Gl. (A.26) geht für den Sonderfall eines Rhomboeders, unter Verwendung der Gln. (4.8) und (4.9), über in

$$V = a_0^3 \sqrt{1 + 2 \cos^3 \alpha^{\text{rh}} - 3 \cos^2 \alpha^{\text{rh}}}. \quad (\text{A.27})$$

## A.4 Konvergenzkriterium und Berechnung der kritischen Lastspielzahl

Das in diesem Abschnitt vorgestellte Konvergenzkriterium und die zugehörige lineare Extrapolation beziehen sich auf das in Abschnitt 6.2 eingeführte Modell zur Lebensdauervorhersage. Aus Gl. (6.44) wird ersichtlich, dass die Reihe ein Konvergenzverhalten aufweist, da die Folge (6.42) für zunehmende Risslängen gegen Null geht, s. auch Abbn. 7.23 und 7.24. Die Idee für ein entsprechendes Konvergenzkri-

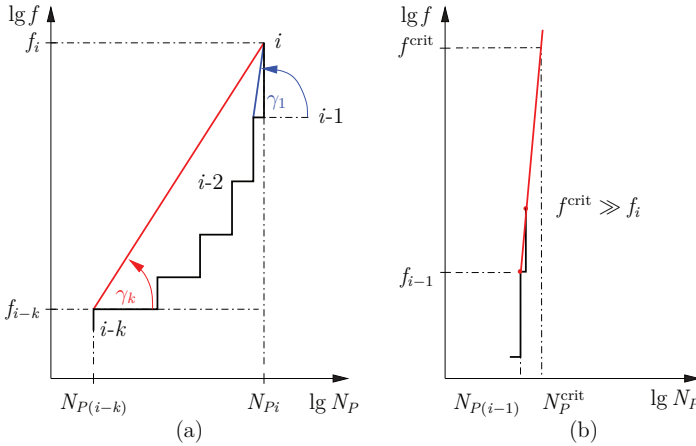
terium ist in Abb. A.1(a) dargestellt. Hier definieren  $\gamma_1$  und  $\gamma_k$  die Winkel zwischen dem  $i$ -ten und  $(i-1)$ -ten numerischen Zyklus bzw. dem  $i$ -ten und  $(i-k)$ -ten numerischen Zyklus. Der Parameter  $k$  gibt an wie viele bereits simulierte numerische Zyklen für das Konvergenzkriterium berücksichtigt werden sollen. Aufgrund der doppellogarithmischen Darstellung in Abb. A.1 gilt für den Winkel  $\gamma_{1/k}$ :

$$\gamma_{k/1} = \arctan \left( \frac{\lg \left( \frac{f_{i-k/1}}{f_i} \right)}{\lg \left( \frac{N_{P(i-k)/1}}{N_{P_i}} \right)} \right). \quad (\text{A.28})$$

Die numerische Simulation ist dann konvergiert, wenn

$$1 - \frac{\gamma_k}{\gamma_1} \leq \xi \quad (\text{A.29})$$

erfüllt ist. Hier ist  $\xi$  die obere Grenze der normierten Differenz zwischen den in



**Abb. A.1** Darstellung zur Erläuterung des Konvergenzkriteriums (a) und lineare Extrapolation zur Bestimmung der kritischen Lebensdauer  $N_P^{\text{crit}}$  (b)

Gl. (A.28) eingeführten Winkeln  $\gamma_1$  und  $\gamma_k$ . Für die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse wurde  $\xi = 0,01$  gewählt. Da die Konvergenz bereits bei sehr geringen Rissdichten erreicht wird, s. Ergebnisse in Abschnitt 7.5, erfolgt zunächst eine lineare Extrapolation, um die kritische Rissdichte  $f^{\text{crit}}$  zu erhalten. Aufbauend darauf kann anschließend die kritische Lastspielzahl  $N_P^{\text{crit}}$  berechnet werden:

$$N_P^{\text{crit}} = 10^{\frac{\lg f^{\text{crit}} - \lg f_{i-1}}{\tan \gamma_1} + \lg N_{P(i-1)}}, \quad (\text{A.30})$$

wobei  $\tan \gamma_1$  mit Gl. (A.28) berechnet wird.

## B Materialdaten

Da in dieser Arbeit tetragonale Elementarzellen sowohl für piezoelektrische als auch ferromagnetische Materialien angenommen werden, liegt für beide Materialtypen eine transversale Isotropie vor, d. h. es liegen fünf unabhängige elastische, drei piezoelektrische, drei magnetostruktive, zwei dielektrische sowie zwei Konstanten der magnetischen Permeabilität vor. Ist das Material in positiver  $x_1$  - Richtung gepolt und somit isotrop in der  $x_2$ - $x_3$  - Ebene, gilt für die Materialtensoren in VOIGTScher Notation:

$$\begin{aligned}
 C_{pq} &= \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{22} & C_{23} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{23} & C_{22} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{C_{22} - C_{23}}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix}, \\
 e_{kq} &= \begin{pmatrix} e_{11} & e_{12} & e_{12} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & e_{26} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & e_{26} & 0 \end{pmatrix}, \\
 q_{kq} &= \begin{pmatrix} q_{11} & q_{12} & q_{12} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & q_{26} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & q_{26} & 0 \end{pmatrix}, \\
 \kappa_{ij} &= \begin{pmatrix} \kappa_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \kappa_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \kappa_{22} \end{pmatrix}, \\
 \mu_{ij} &= \begin{pmatrix} \mu_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \mu_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \mu_{22} \end{pmatrix}.
 \end{aligned} \tag{B.1}$$



Für eine Polung in positiver  $x_2$  - Richtung und isotroper  $x_1$ - $x_3$  - Ebene gilt für die Materialtensoren:

$$\begin{aligned}
 C_{pq} &= \begin{pmatrix} C_{22} & C_{12} & C_{23} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{23} & C_{12} & C_{22} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{C_{22} - C_{23}}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix}, \\
 e_{kq} &= \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & e_{26} \\ e_{12} & e_{11} & e_{12} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & e_{26} & 0 \end{pmatrix}, \\
 q_{kq} &= \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & q_{26} \\ q_{12} & q_{11} & q_{12} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & q_{26} & 0 \end{pmatrix}, \\
 \kappa_{ij} &= \begin{pmatrix} \kappa_{22} & 0 & 0 \\ 0 & \kappa_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \kappa_{22} \end{pmatrix}, \\
 \mu_{ij} &= \begin{pmatrix} \mu_{22} & 0 & 0 \\ 0 & \mu_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \mu_{22} \end{pmatrix}.
 \end{aligned} \tag{B.2}$$

Die in den Gln. (B.1) und (B.2) aufgeführten Konstanten sind Tab. B.1 zu entnehmen [4, 5, 68, 85, 92]. Da in dieser Arbeit PZT ausschließlich für rein ferroelektrische

**Tab. B.1** Materialkonstanten der in dieser Arbeit verwendeten Materialien

	BaTiO <sub>3</sub>	PZT	CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	Einheit
$C_{11}$	16,2	11,7	26,95	$10^{10} \text{ N/m}^2$
$C_{12}$	7,75	8,41	17,0	
$C_{22}$	16,6	12,6	28,6	
$C_{23}$	7,66	8,26	17,3	
$C_{44}$	4,29	2,3	4,53	
$e_{11}$	18,6	23,3	0	
$e_{12}$	-4,4	-6,55	0	
$e_{26}$	11,6	17,0	0	
$q_{11}$	0	-	700	$\text{N/Am}$
$q_{12}$	0	-	580	
$q_{26}$	0	-	550	
$\kappa_{11}$	12,57	17,2	0,093	
$\kappa_{22}$	11,16	15,5	0,08	
$\mu_{11}$	0,1	-	0,0628	$10^{-4} \text{ N/A}^2$
$\mu_{22}$	0,05	-	0,0628	

Simulationen verwendet wird, werden zu den magnetostriktiven Eigenschaften und der magnetischen Permeabilität von PZT keine Angaben gemacht.

In der nTab. B.2 sind weitere relevante Größen ferroelektrischer Materialien aufgeführt [68, 112, 156]. Unter Verwendung der kubischen Gitterkonstante  $a_0$ , s.

**Tab. B.2** Materialabhängige Konstanten von Ferroelektrika

Material	$E_c$ [V/m]	$P^0$ [C/m <sup>2</sup> ]	$c$ [Å]	$a$ [Å]	$a_0$ [Å]
BaTiO <sub>3</sub>	$2 \cdot 10^5$	0,26	4,0346	3,9928	4,0
PZT	$2,2 \cdot 10^6$	0,33	4,146	4,03	4,068

Tab. B.2, folgt für die Berechnung der Raumdiagonalen der Betrachtungsebene eines rhomboedrischen PZTs, s. Abschnitt 4.1.2:  $e \approx 7,0787$  Å und  $d \approx 7,0271$  Å. Entsprechende Werte für CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> sind Tab. B.3 zu entnehmen [4].<sup>31</sup>

**Tab. B.3** Materialabhängige Konstanten von CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

Material	$H_c$ [A/m]	$M^0$ [N/Am]	$\varepsilon_D$ [-]
CoFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	$4,7 \cdot 10^4$	1,53	0,04

<sup>31</sup>Es sei darauf aufmerksam gemacht, dass Gitterkonstanten für Kobaltferrit nicht vorliegen und daher an dieser Stelle die Größe  $\varepsilon_D$  angegeben wird [4]. Diese stellt gemäß Gl. (4.6) ein normiertes Verhältnis der Gitterkonstanten  $c$  und  $a$  dar und ist bei dem hier betrachteten ferromagnetischen Material als phänomenologischer Parameter zu verstehen.



# Literatur

- [1] J. ABOUDI. „Micromechanical analysis of fully coupled electro-magneto-thermo-elastic multiphase composites“. *Smart Materials and Structures* 10 (2001), S. 867 –877.
- [2] H. ALTENBACH. *Kontinuumsmechanik: Einführung in die materialunabhängigen und materialabhängigen Gleichungen*. 2. Aufl. Berlin: Springer-Vieweg-Verlag, 2012.
- [3] G. ARLT. „Review Twinning in ferroelectric and ferroelastic ceramics: stress relief“. *Journal of Material Science* 25 (1990), S. 2655 –2666.
- [4] A. AVAKIAN und A. RICOEUR. „Constitutive modeling of nonlinear reversible and irreversible ferromagnetic behaviors and application to multiferroic composites“. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures* DOI: 10.1177/1045389X16634212 (2016).
- [5] A. AVAKIAN, R. GELLMANN und A. RICOEUR. „Nonlinear modeling and finite element simulation of magnetoelectric coupling and residual stress in multiferroic composites“. *Acta Mechanica* 226 (2015), S. 2789 –2806.
- [6] H. D. BAEHR und S. KABELAC. *Thermodynamik - Grundlagen und technische Anwendungen*. 15. Aufl. Berlin: Springer-Verlag, 2012.
- [7] E. BASSIOUNY und G. A. MAUGIN. „Thermomechanical formulation for coupled electromechanical hysteresis effects - III. Parameter identification“. *International Journal of Engineering Science* 27 (1989), S. 975 –987.
- [8] E. BASSIOUNY und G. A. MAUGIN. „Thermomechanical formulation for coupled electromechanical hysteresis effects - IV. Combined electromechanical loading“. *International Journal of Engineering Science* 27 (1989), S. 989 –1000.
- [9] E. BASSIOUNY, A. F. GHALEB und G. A. MAUGIN. „Thermomechanical formulation for coupled electromechanical hysteresis effects - I. Basic equations“. *International Journal of Engineering Science* 26 (1988), S. 1279 –1295.
- [10] E. BASSIOUNY, A. F. GHALEB und G. A. MAUGIN. „Thermomechanical formulation for coupled electromechanical hysteresis effects - II. Poling of ceramics“. *International Journal of Engineering Science* 26 (1988), S. 1297 –1306.
- [11] K.-J. BATHE. *Finite-Element-Methoden*. Berlin: Springer-Verlag, 2002.
- [12] H. G. BEOM und S. N. ATLURI. „Effect of electric fields on fracture behavior of ferroelectric ceramics“. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 51 (2003), S. 1107 –1125.

- [13] W. BERGMANN. *Werkstofftechnik - Teil 1: Grundlagen*. München: Hanser Verlag, 2008.
- [14] R. BERMEJO, P. SUPANCIC, C. KRAUTGASSER und R. DANZER. „Evaluation of subcritical crack growth in low temperature co-fired ceramics“. In: *Mechanical Properties and Performance of Engineering Ceramics and Composites VIII*. Hrsg. von D. SINGH, J. SALEM, S. KIRIHARA und S. WIDJAJA. New York: Wiley-Verlag, 2013, S. 161 –172.
- [15] J. BETTEN. *Kontinuumsmechanik: Elastisches und inelastisches Verhalten isotroper und anisotroper Stoffe*. 2. Aufl. Berlin: Springer-Verlag, 2001.
- [16] A. BEUTELSPACHER. *Lineare Algebra - Eine Einführung in die Wissenschaft der Vektoren, Abbildungen und Matrizen*. 8. Aufl. Wiesbaden: Springer-Verlag, 2014.
- [17] S. D. BHAME und P. A. JOY. „Effect of sintering conditions and microstructure on the magnetostrictive properties of cobalt ferrite“. *Journal of the American Ceramic Society* 91 (2008), S. 1976 –1980.
- [18] M. BIBES und A. BARTHÉLÉMY. „Towards a magnetoelectric memory“. *Nature Materials* 7 (2008), S. 425 –426.
- [19] A. BÖGE. *Formeln und Tabellen zur Technischen Mechanik*. Wiesbaden: Springer-Vieweg-Verlag, 2013.
- [20] K. BURG, H. HAF, F. WILLE und A. MEISTER. *Höhere Mathematik für Ingenieure - Band I: Analysis*. Wiesbaden: Vieweg + Teubener Verlag, 2008.
- [21] K. BURG, H. HAF, F. WILLE und A. MEISTER. *Höhere Mathematik für Ingenieure - Band II: Lineare Algebra*. Wiesbaden: Vieweg + Teubener Verlag, 2008.
- [22] W. CHEN und C. S. LYNCH. „A micro-electro-mechanical model for polarization switching of ferroelectric materials“. *Acta Metallurgica* 46 (1999), S. 5303 –5311.
- [23] X. CHEN, D. N. FANG und K. C. HWANG. „Micromechanics simulation of ferroelectric polarization switching“. *Acta Materialia* 45 (1997), S. 3181 –3189.
- [24] D. DAMJANOVIC. „Contributions to the piezoelectric effect in ferroelectric single crystals and ceramics“. *Journal of the American Ceramic Society* 88 (2005), S. 2663 –2676.
- [25] D. DAMJANOVIC. „Piezoelectricity“. In: *Encyclopedia of Condensed Matter Physics*. Hrsg. von F. BASSANI, G. L. LIEDL und P. WYDER. Bd. 4. Oxford: Elsevier Ltd., 2005, S. 300 –309.
- [26] D. DAMJANOVIC und M. DEMARTIN. „Contribution of the irreversible displacement of domain walls to the piezoelectric effect in barium titanate and lead zirconate titanate ceramics“. *Journal of Physics: Condensed Matters* 9 (1997), S. 4943 –4953.
- [27] R. DANZER, T. LUBE, P. SUPANCIC und R. DAMANI. „Fracture of Ceramics“. *Advanced Engineering Materials* 10 (2008), S. 275 –298.

- [28] R. H. DAUSKARDT, D. B. MARSHALL und R. O. RITCHIE. „Cyclic fatigue - crack propagation in magnesia - partially - stabilized zirconia ceramics“. *Journal of the American Ceramic Society* 73 (1990), S. 893 –903.
- [29] R. DITTMER, K. G. WEBBER, E. AULBACH, W. JO, X. TAN und J. RÖDEL. „Electric-field-induced polarization and strain in  $0.94(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3 - 0.06\text{BaTiO}_3$  under uniaxial stress“. *Acta Materialia* 61 (2013), S. 1350 –1358.
- [30] R. DITTMER, K. G. WEBBER, E. AULBACH, W. JO, X. TAN und J. RÖDEL. „Optimal working regime of lead-zirconate-titanate for actuation applications“. *Acta Materialia* 61 (2013), S. 1350 –1358.
- [31] D. K. DUSTHAKAR, A. MENZEL und B. SVENDSEN. „A laminate-based modelling approach for rate-dependent switching in ferroelectric materials“. In: *86<sup>th</sup> Annual Meeting of the International Association of Applied Mathematics and Mechanics (GAMM)*. Proceedings in Applied Mathematics and Mechanics 15. 2015, S. 3 –6.
- [32] M. M. EL-OKR, M. A. SALEM, M. S. SALIM, R. M. EL-OKR, M. ASHOUSH und H. M. TALAAT. „Synthesis of cobalt ferrite nano-particles and their magnetic characterization“. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 323 (2011), S. 920 –926.
- [33] M. ENDERLEIN. „Finite Elemente Verfahren zur bruchmechanischen Analyse von Rissen in piezoelektrischen Strukturen bei transienter elektromechanischer Belastung“. Diss. Freiberg: Technische Universität Bergakademie Freiberg, 2007.
- [34] M. ENDERLEIN, A. RICOEUR und M. KUNA. „Finite element techniques for dynamic crack analysis in piezoelectrics“. *International Journal of Fracture* 134 (2005), S. 191 –208.
- [35] G. ENGBAHL. *Handbook of Giant Magnetostrictive Materials*. San Diego: Academic Press, 2000.
- [36] F. ERDOGAN und M. RATWANI. „Fatigue and fracture of cylindrical shells containing a circumferential crack“. *International Journal of Fracture Mechanics* 6 (1970), S. 379 –392.
- [37] M. ETIER, Y. GAO, V. V. SHVARTSMAN, D. C. LUPASCU, J. LANDERS und H. WENDE. „Magnetolectric properties of  $0,2\text{CoFe}_2\text{O}_4 - 0,8\text{BaTiO}_3$  composite prepared by organic method“. In: *Proceedings of the European conference on the applications of polar dielectrics*. 2012, S. 1 –4.
- [38] M. ETIER, V. V. SHVARTSMAN, Y. GAO, J. LANDERS, H. WENDE und D. C. LUPASCU. „Magnetolectric effect in  $(0-3)\text{CoFe}_2\text{O}_4 - \text{BaTiO}_3(20/80)$  composite ceramics prepared by the organosol route“. *Ferroelectrics* 448 (2013), S. 77 –85.
- [39] J. FAN, W. A. STOLL und C. S. LYNCH. „Nonlinear constitutive behavior of soft and hard PZT: experiments and modeling“. *Acta Materialia* 47 (1999), S. 4415 –4425.

- [40] E. FELDTKELLER. *Dielektrische und magnetische Materialeigenschaften I*. Mannheim: Bibliographisches Institut AG, 1973.
- [41] G. FISCHER. *Lineare Algebra - Eine Einführung für Studienanfänger*. Wiesbaden: Springer-Verlag, 2014.
- [42] B. FISHBINE. „SQUID Magnetometry - Harnessing the Power of Tiny Magnetic Fields“. *Los Alamos Research Spring* (2003), S. 4 –11.
- [43] A. FÖRDERREUTHER. „Mechanische Eigenschaften von BaTiO<sub>3</sub>-Keramiken unter mechanischer und elektrischer Belastung“. Diss. Stuttgart: Universität Stuttgart, 2003.
- [44] R. G. FOREMAN, V. E. KEARNEY und R. M. ENGLE. „Numerical analysis of crack propagation in cyclic-loaded structures“. *Journal of Basic Engineering* 89 (1967), S. 459 –463.
- [45] D. J. FRANZBACH, Y.-H. SEO, A. J. STUDER, Y. ZHANG, J. GLAUM, J. E. DANIELS, J. KORUZA, A. BENČAN, B. MALIČ und K. G. WEBBER. „Electric-field-induced phase transitions in co-doped Pb (Zr<sub>1-x</sub>Ti<sub>x</sub>)O<sub>3</sub>“. *Science and Technology of Advanced Materials* 15 (2014).
- [46] C. C. FULTON und H. GAO. „Microstructural modeling of ferroelectric fracture“. *Acta Materialia* 49 (2001), S. 2039 –2054.
- [47] R. GELLMANN und A. RICOEUR. „Extended semi-analytical investigations of crack growth resistance behavior in ferroelectric materials“. *Acta Mechanica* 223 (2012), S. 2357 –2368.
- [48] R. GELLMANN und A. RICOEUR. „Some new aspects of boundary conditions at cracks in piezoelectrics“. *Archive of Applied Mechanics* 82 (2012), S. 841 –852.
- [49] R. GELLMANN und A. RICOEUR. „Nonlinear constitutive model and finite element analysis of damage processes in ferroelectrics“. In: *20<sup>th</sup> European Conference on Fracture (ECF20)*. Procedia Materials Science 3. 2014, S. 2117 –2121.
- [50] R. GELLMANN und A. RICOEUR. „Continuum damage model for ferroelectric materials and its application to multilayer actuators“. *Smart Materials and Structures* 25 (2016).
- [51] R. GELLMANN, A. RICOEUR, E. MERKEL und Z. WANG. „Generalized boundary conditions and effective properties in cracked piezoelectric solids“. In: *84<sup>th</sup> Annual Meeting of the International Association of Applied Mathematics and Mechanics (GAMM)*. Proceedings in Applied Mathematics and Mechanics 13. 2013, S. 225 –226.
- [52] C. J. GILBERT, R. H. DAUSKARDT und R. O. RITCHIE. „Behavior of cyclic fatigue cracks in monolithic silicon nitride“. *Journal of the American Ceramic Society* 78 (1995), S. 2291 –2300.
- [53] D. GROSS und T. SEELIG. *Bruchmechanik - Mit einer Einführung in die Mikromechanik*. 3. Aufl. Berlin: Springer-Verlag, 2007.

- [54] D. GROSS, W. HAUGER, J. SCHRÖDER und W. A. WALL. *Technische Mechanik - Band 2: Elastostatik*. 10. Aufl. Berlin: Springer-Verlag, 2009.
- [55] A. GUINIER und R. JULLIEN. *Die physikalischen Eigenschaften von Festkörpern: eine verständliche Einführung in die Festkörperphysik*. München: Hanser Verlag, 1992.
- [56] T. HAO und Z. SHEN. „New electric boundary condition of electric fracture mechanics and its applications“. *Engineering Fracture Mechanics* 47 (1994), S. 793 –802.
- [57] A. HAUG, J. E. HUBER, P. R. ONCK und E. V. der GIESSEN. „Multi-grain analysis versus self-consistent estimates of ferroelectric polycrystals“. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 55 (2007), S. 648 –665.
- [58] P. HAUPT. *Continuum mechanics and theory of materials*. 2. Aufl. Berlin: Springer-Verlag, 2000.
- [59] M. J. HOFFMANN, M. HAMMER, A. ENDRISS und D. C. LUPASCU. „Correlation between microstructure, strain behavior and acoustic emission of soft PZT ceramics“. *Acta Materialia* 49 (2001), S. 1301 –1310.
- [60] H. HORI und S. NEMAT-NASSER. „Overall moduli of solids with microcracks: load-induced anisotropy“. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 33 (1983), S. 155 –171.
- [61] J. H. HUANG und W.-S. KUO. „The analysis of piezoelectric/piezomagnetic composite materials containing ellipsoidal inclusions“. *Journal of Applied Physics* 81 (1997), S. 1378 –1386.
- [62] J. E. HUBER, N. A. FLECK, C. M. LANDIS und R. M. McMEEKING. „A constitutive model for ferroelectric polycrystals“. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 47 (1999), S. 1663 –1697.
- [63] Y. HUO und Q. JIANG. „Modeling of domain switching in polycrystalline ferroelectric ceramics“. *Smart Materials and Structures* 6 (1997), S. 441 –447.
- [64] S. C. HWANG und R. WASER. „Study of electrical and mechanical contribution to switching in ferroelectric/ferroelastic polycrystals“. *Acta Materialia* 48 (2000), S. 3271 –3282.
- [65] S. C. HWANG, C. S. LYNCH und R. M. McMEEKING. „Ferroelectric / ferroelastic interactions and a polarization switching model“. *Acta Metallurgica et Materialia* 43 (1995), S. 2073 –2084.
- [66] S. C. HWANG und R. M. McMEEKING. „A finite element model for ferroelectric polycrystals“. *Ferroelectrics* 211 (1998), S. 177–194.
- [67] T. IKEDA. *Fundamentals of Piezoelectricity*. Oxford: Oxford University Press, 1990.
- [68] B. JAFFE, W. R. COOK und H. JAFFE. *Piezoelectric ceramics*. London: Academic Press, 1971.



- [69] S. U. JEN, S. P. SHIEH und S. S. LIOU. „Néel, cross-tie and Bloch walls in  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ni}_x$  films“. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 147 (1995), S. 49–54.
- [70] M. KACHANOV. „Effective elastic properties of cracked solids: critical review of some basic concepts“. *Applied Mechanics Reviews* 45 (1992), S. 304–335.
- [71] G. KÁDÁR. „On the Preisach function of ferromagnetic hysteresis“. *Journal of Applied Physics* 61 (1987), S. 4013–4015.
- [72] M. KAMLAH. „Zur Modellierung von nichtlinearen elektromechanischen Koppelphänomenen in Piezokeramiken“. Habilitationsschrift. Kassel: Universität Kassel, 2000.
- [73] M. KAMLAH. „Ferroelectric and ferroelastic piezoceramics - modeling of electromechanical hysteresis phenomena“. *Continuum Mechanics and Thermodynamics* 13 (2001), S. 219–268.
- [74] M. KAMLAH und C. TSAKMAKIS. „Phenomenological modeling of the nonlinear electromechanical coupling in ferroelectrics“. *International Journal of Solids and Structures* 36 (1999), S. 669–695.
- [75] M. KAMLAH, A. C. LISKOWSKY, R. M. MCMEEKING und H. BALKE. „Finite element simulation of a polycrystalline ferroelectric based on a multi-domain single crystal switching model“. *International Journal of Solids and Structures* 42 (2005), S. 2949–2964.
- [76] M.-A. KEIP, M. LABUSCH und J. SCHRÖDER. „Two-scale computational homogenization of magneto-electric composites“. In: *84<sup>th</sup> Annual Meeting of the International Association of Applied Mathematics and Mechanics (GAMM)*. Proceedings in Applied Mathematics and Mechanics 13. 2013, S. 529–532.
- [77] G. KEMMER und H. BALKE. „Kraftwirkung auf die Flanken nichtleitender Risse in Piezoelektrika“. *Zeitschrift für angewandte Mathematik und Mechanik* 79 (1999), S. 509–510.
- [78] H. KESSLER und H. BALKE. „On the local and average energy release in polarization switching phenomena“. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 49 (2001), S. 953–978.
- [79] W. KOLLENBERG. *Technische Keramik - Grundlagen, Werkstoffe, Verfahrenstechnik*. Essen: Vulkan-Verlag, 2004.
- [80] K. KOPITZKI und P. HERZOG. *Einführung in die Festkörperphysik*. Wiesbaden: Vieweg+Teubner Verlag, 2007.
- [81] S. KOZINOV, M. KUNA und S. ROTH. „A cohesive zone model for the electromechanical damage of piezoelectric / ferroelectric materials“. *Smart Materials and Structures* 23 (2014).
- [82] C. KRAUTGASSER, Z. CHLUP, P. SUPANCIC, R. DANZER und R. BERMEJO. „Influence of subcritical crack growth on the determination of fracture toughness in brittle materials“. *Journal of the European Ceramic Society* 36 (2016), S. 1307–1312.

- [83] M. KUNA. *Numerische Beanspruchungsanalyse von Rissen*. Wiesbaden: Vieweg + Teubner Verlag, 2008.
- [84] H. KUNGL und M. J. HOFFMANN. „Temperature dependence of poling strain and strain under high electric fields in LaSr-doped morphotropic PZT and its relation to changes in structural characteristics“. *Acta Materialia* 55 (2007), S. 5780–5791.
- [85] M. LABUSCH, M. ETIER, D. C. LUPASCU, J. SCHRÖDER und M.-A. KEIP. „Product properties of a two-phase magneto-electric composite: Synthesis and numerical modeling“. *Computational Mechanics* 54 (2014), S. 71–83.
- [86] M. LABUSCH, M.-A. KEIP, V. V. SHVARTSMAN, D. C. LUPASCU und J. SCHRÖDER. „On the influence of ferroelectric polarization states on the magneto-electric coupling in two-phase composites“. *Technische Mechanik* 36 (2016), S. 73–87.
- [87] L. D. LANDAU und E. M. LIFSCHITZ. *Elektrodynamik der Kontinua*. 8. Aufl. Berlin: Akademie - Verlag, 1990.
- [88] C. M. LANDIS. „Energetically consistent boundary conditions for electromechanical fracture“. *International Journal of Solids and Structures* 41 (2004), S. 6291–6315.
- [89] C. M. LANDIS. „Non-linear constitutive modeling of ferroelectrics“. *Current Opinion in Solid State and Materials Science* 8 (2004), S. 59–69.
- [90] S. LANGE und A. RICOEUR. „A condensed microelectromechanical approach for modeling tetragonal ferroelectrics“. *International Journal of Solids and Structures* 54 (2015), S. 100–110.
- [91] S. LANGE und A. RICOEUR. „High cycle fatigue damage and life time prediction for tetragonal ferroelectrics under electromechanical loading“. *International Journal of Solids and Structures* 80 (2016), S. 181–192.
- [92] J. LEE, J. G. BOYD und D. C. LAGOUDAS. „Effective properties of three-phase electro-magneto-elastic composites“. *International Journal of Engineering Science* 43 (2005), S. 790–825.
- [93] G. LEHNER. *Elektromagnetische Feldtheorie - für Ingenieure und Physiker*. 7. Aufl. Heidelberg: Springer-Verlag, 2010.
- [94] D. LEVINE und P. J. STEINHARDT. „Quasicrystals: A New Class of Ordered Structures“. *Physical Review Letters* 53 (1984), S. 2477–2480.
- [95] F. X. LI. „Ultrahigh superelastic and actuation strains in ferroelectric crystals by reversible electromechanical domain switching“. In: *5<sup>th</sup> International Congress on Ceramics*. 2014, S. 250.
- [96] F. X. LI und R. K. N. D. RAJAPAKSE. „A constrained domain-switching model for polycrystalline ferroelectric ceramics. Part I: Model formulation and application to tetragonal materials“. *Acta Materialia* 55 (2007), S. 6472–6480.

- [97] F. X. LI und R. K. N. D. RAJAPAKSE. „A constrained domain-switching model for polycrystalline ferroelectric ceramics. Part II: Combined switching and application to rhombohedral materials“. *Acta Materialia* 55 (2007), S. 6481–6488.
- [98] J. Y. LI und M. L. DUNN. „Micromechanics of magnetoelastoelectric composite materials: Average fields and effective behavior“. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures* 9 (1998), S. 404–416.
- [99] Q. LI, A. RICOEUR, M. ENDERLEIN und M. KUNA. „Evaluation of electro-mechanical coupling effect by microstructural modeling of domain switching in ferroelectrics“. *Mechanics Research Communications* 37 (2010), S. 332–336.
- [100] K. LINNEMANN. „Magnetostriktive und piezoelektrische Materialien - Konstitutive Modellierung und Finite-Element-Formulierung“. Diss. Karlsruhe: Universität Karlsruhe (TH), 2008.
- [101] W. LU, D. N. FANG, C. Q. LI und K. C. HWANG. „Nonlinear electric-mechanical behavior and micromechanics modelling of ferroelectric domain evolution“. *Acta Materialia* 47 (1999), S. 2913–2926.
- [102] T. LUBE und R. G. A. BAIERL. „Sub-Critical Crack Growth in Alumina - a Comparison of Different Measurement and Evaluation Methods“. *Berg- und Hüttenmännische Monatshefte* 156 (2011), S. 450–456.
- [103] C. S. LYNCH. „The effect of uniaxial stress on the electro-mechanical response of 8/65/35 PLZT“. *Acta Materialia* 44 (1996), S. 4137–4148.
- [104] C. S. LYNCH. „On the development of multiaxial phenomenological constitutive laws for ferroelectric ceramics“. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures* 9 (1998), S. 555–563.
- [105] M. D. MAEDER, D. DAMJANOVIC und N. SETTER. „Lead Free Piezoelectric Materials“. *Journal of Electroceramics* 13 (2004), S. 385–392.
- [106] MAGNETFABRIK BONN GMBH. *Datenblatt für AlNiCo 35/5*. 2009.
- [107] H. MANG und G. HOFSTETTER. *Festigkeitslehre*. 3. Aufl. Wien: Springer-Verlag, 2008.
- [108] I. D. MAYERGOYZ und G. FRIEDMAN. „Isotropic vector Preisach model of hysteresis“. *Journal of Applied Physics* 61 (1987), S. 4022–4024.
- [109] R. M. McMEEKING. „Crack tip energy release rate for a piezoelectric compact tension specimen“. *Engineering Fracture Mechanics* 64 (1999), S. 217–244.
- [110] E. MERKEL. „Analytische und numerische Homogenisierungsmethoden für Mehrfeldprobleme der Festkörpermechanik“. Bachelorarbeit. Kassel: Universität Kassel, 2013.
- [111] E. MERKEL und A. RICOEUR. „Effective properties of cracked piezoelectrics with non-trivial crack face boundary conditions“. *Archive of Applied Mechanics* DOI 10.1007/s00419-016-1118-8 (2016).

- [112] R. MERKEL. „Konstitutive Modellierung ferroelektrischer PZT-Keramiken an der morphotropen Phasengrenze“. Diplomarbeit. Kassel: Universität Kassel, 2014.
- [113] T. MICHELITSCH und W. S. KREHER. „A simple model for the nonlinear material behavior of ferroelectrics“. *Acta Materialia* 46 (1998), S. 5085 – 5094.
- [114] S. MIDDELHOEK. „Domain Walls in Thin Ni-Fe Films“. *Journal of Applied Physics* 34 (1963), S. 1054.
- [115] K. K. MOHAIDEEN und P. A. JOY. „Studies on the effect of sintering conditions on the magnetostriction characteristics of cobalt ferrite derived from nanocrystalline powders“. *Journal of the European Ceramic Society* 34 (2014), S. 677 –686.
- [116] T. MORI und K. TANAKA. „Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions“. *Acta Metallurgica* 21 (1973), S. 571 –574.
- [117] A. J. MOULSON und J. M. HERBERT. *Electroceramics - Material, Properties, Applications*. Chichester: Wiley Ltd., 2003.
- [118] P. MURALI. „Pyroelectricity“. In: *Encyclopedia of Condensed Matter Physics*. Hrsg. von F. BASSANI, G. L. LIEDL und P. WYDER. Bd. 4. Oxford: Elsevier Ltd., 2005, S. 441 –448.
- [119] C.-W. NAN. „Magnetolectric effect in composites of piezoelectric and piezomagnetic phases“. *Physical Review B* 50 (1994), S. 6082 –6088.
- [120] S. NEMAT-NASSER und M. HORI. *Micromechanics: overall properties of heterogeneous materials*. 2. Aufl. Amsterdam: Elsevier, 1999.
- [121] P. NEUMEISTER. „Mikromechanische Modellierung morphotroper PZT-Keramiken“. Diss. Dresden: Technische Universität Dresden, 2011.
- [122] R. F. NEWNHAM, D. P. SKINNER und L. E. CROSS. „Connectivity and piezoelectric-pyroelectric composites“. *Materials Research Bulletin* 13 (1978), S. 525 –536.
- [123] B. NOHEDA, J. A. GONZALO, L. E. CROSS, R. GUO, S.-E. PARK, D. E. COX und G. SHIRANE. „Tetragonal-to-monoclinic phase transition in a ferroelectric perovskite: The structure of  $\text{PbZr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48}\text{O}_3$ “. *Physical Review B* 61 (2000), S. 8687 –8695.
- [124] A. NORRIS. „A differential scheme the effective moduli of composites“. *Mechanics of Materials* 4 (1985), S. 1 –16.
- [125] Y. E. PAK. „Linear electro-elastic fracture mechanics of piezoelectric materials“. *International Journal of Fracture* 54 (1992), S. 79 –100.
- [126] P. C. PARIS und F. ERDOGAN. „A critical analysis of crack propagation laws“. *Journal of Basic Engineering* 85 (1963), S. 528 –533.
- [127] H. PARISCH. *Festkörper-Kontinuumsmechanik: Von den Grundgleichungen zur Lösung mit Finiten Elementen*. Stuttgart: B. G. Teubner-Verlag, 2003.

- [128] V. Z. PARTON und B. A. KUDRYAVTSEV. *Electromagnetoelasticity*. New York: Gordon und Breach Science Publishers, 1988.
- [129] F. PREISACH. „Über die magnetische Nachwirkung“. *Zeitschrift für Physik* 94 (1935), S. 277 –302.
- [130] Q.-H. QIN. *Advanced Mechanics in Piezoelectricity*. Heidelberg: Springer-Verlag, 2013.
- [131] A. RICOEUR. „Theoretische Untersuchungen zum Bruchverhalten ferroelektrischer Keramiken bei elektromechanischer Beanspruchung“. Habilitationsschrift. Freiberg: Technische Universität Bergakademie Freiberg, 2006.
- [132] A. RICOEUR und M. KUNA. „A micromechanical model for the fracture process zone in ferroelectrics“. *Computational Materials Science* 27 (2003), S. 235 –249.
- [133] A. RICOEUR und M. KUNA. „Influence of electric fields on the fracture of ferroelectric ceramics“. *Journal of the European Ceramic Society* 23 (2003), S. 1313 –1328.
- [134] A. RICOEUR, R. GELLMANN und Z. WANG. „Influence of inclined electric fields on the effective fracture toughness of piezoelectric ceramics“. *Acta Mechanica* 226 (2014), S. 491 –503.
- [135] A. RICOEUR, S. LANGE und R. GELLMANN. „Modeling approaches to predict damage evolution and life time of brittle ferroelectrics“. In: *Recent Trends in Fracture and Damage Mechanics*. Hrsg. von G. HÜTTER und L. ZYBELL. Berlin: Springer-Verlag, 2015, S. 257 –282.
- [136] E. ROOS und K. MAILE. *Werkstoffkunde für Ingenieure - Grundlagen, Anwendungen, Prüfungen*. Berlin: Springer Verlag, 2015.
- [137] C. R. J. SALZ, M. HOFFMAN, I. WESTRAM und J. RÖDEL. „Cyclic fatigue crack growth in PZT under mechanical loading“. *Journal of the American Ceramic Society* 88 (2005), S. 1331 –1333.
- [138] M. SCHÄFER. *Numerik im Maschinenbau*. 8. Aufl. Berlin: Springer-Verlag, 1999.
- [139] G. A. SCHNEIDER. „Influence of electric field and mechanical stress on the fracture of ferroelectrics“. *Annual Review of Materials Research* 37 (2007), S. 491 –538.
- [140] T. SCHOLEHWAR. „Charakterisierung der Struktur - Gefüge - Eigenschaftsbeziehung von piezokeramischen Werkstoffen des Systems PZT / SKN“. Diss. Dresden: Technische Universität Dresden, 2010.
- [141] J. SCHRÖDER und M.-A. KEIP. „Two-scale homogenization of electromechanically coupled boundary value problems“. *Computational Mechanics* 50 (2012), S. 229 –244.
- [142] J. SCHRÖDER, M. LABUSCH, M.-A. KEIP, B. KIEFER, D. BRANDS und D. C. LUPASCU. „Computation of non-linear magneto-electric product properties of 0-3 composites“. *GAMM-Mitteilung* 38 (2015), S. 8 –24.

- [143] J. F. SCOTT. „Multiferroic memories“. *Nature Materials* 6 (2007), S. 256–257.
- [144] W. SEIDEL. *Werkstofftechnik - Werkstoffe, Eigenschaften, Prüfung, Anwendung*. München: Hanser Verlag, 2008.
- [145] D. SHECHTMAN, I. BLECH, D. GRATIAS und J. W. CAHN. „Metallic Phase with Long-Range Orientational Order and No Translational Symmetry“. *Physical Review Letters* 53 (1984), S. 1951–1953.
- [146] T. R. SHROUT und S. J. ZHANG. „Lead-free piezoelectric ceramics: Alternatives for PZT?“. *Journal of Electroceramics* 19 (2007), S. 113–126.
- [147] H. SOSA. „On the fracture mechanics of piezoelectric solids“. *International Journal of Solids and Structures* 29 (1990), S. 1–29.
- [148] J. H. SPURK und N. AKSEL. *Strömungslehre - Einführung in die Theorie der Strömungen*. 8. Aufl. Berlin: Springer-Verlag, 2010.
- [149] P. STEPHAN, K. SCHABER, K. STEPHAN und F. MAYINGER. *Thermodynamik - Grundlagen und technische Anwendungen Band 1: Einstoffsysteme*. 19. Aufl. Berlin: Springer-Verlag, 2013.
- [150] W. STRAMPP. *Elementare Mathematik: Vor- und Aufbaukurs*. München: Oldenbourg Wissenschaftsverlag, 2002.
- [151] Z. SUO. „Models for breakdown-resistant dielectric and ferroelectric ceramics“. *Journal of Mechanics and Physics of Solids* 41 (1993), S. 1155–1176.
- [152] P. H. SUPANCIC und H. M. SCHÖPF. „Excact implementation of subcritical crack growth into Weibullian strength distribution under constant stress rate conditions“. *Journal of the European Ceramic Society* 32 (2012), S. 4031–4040.
- [153] M. TAYA. *Electronic Composites: Modeling, Characterization, Processing and MEMS applications*. Cambridge: Cambridge University Press, 2005.
- [154] H. F. TIERSTEN. *Linear Piezoelectric Plate Vibrations - Elements of the linear Theory of Piezoelectricity and the Vibrations of Piezoelectric Plates*. New York: Springer Science + Business Media, 1969.
- [155] P. UCKERMANN. „Zur Berechnung von Eigenspannungen in Ferroelektrika in Folge gradierter elektrischer Felder mit einer kondensierten Methode“. Bachelorarbeit. Kassel: Universität Kassel, 2015.
- [156] J. J. WANG, F. Y. MENG, X. Q. MA, M. X. XU und L. Q. CHEN. „Lattice, elastic, polarization and electrostrictive properties of BaTiO<sub>3</sub> from first-principles“. *Journal of Applied Physics* 108 (2010).
- [157] X. D. WANG und L. Y. JIANG. „The effective electroelastic property of piezoelectric media with parallel dielectric cracks“. *International Journal of Solids and Structures* 40 (2003), S. 5287–5303.
- [158] X. D. WANG und L. Y. JIANG. „The effective electroelastic property of cracked piezoelectric media“. *Acta Mechanica* 177 (2005), S. 97–113.
- [159] W. WEISSBACH, M. DAHMS und C. JAROSCHEK. *Werkstoffkunde - Strukturen, Eigenschaften, Prüfung*. Wiesbaden: Springer Verlag, 2015.

- [160] I. WESTRAM, A. RICOEUR, A. EMRICH, J. RÖDEL und M. KUNA. „Fatigue crack growth law for ferroelectrics under cyclic electrical and combined electromechanical loading“. *Journal of the European Ceramic Society* 27 (2007), S. 2485 –2494.
- [161] I. WESTRAM, W. S. OATES, D. C. LUPASCU, J. RÖDEL und C. C. LYNCH. „Mechanism of electric fatigue crack growth in lead zirconate titanate“. *Acta Materialia* 55 (2007), S. 301 –312.
- [162] K. WIPPLER, A. RICOEUR und M. KUNA. „Towards the computation of electrically permeable cracks in piezoelectrics“. *Engineering Fracture Mechanics* 71 (2004), S. 2567 –2587.
- [163] E. ZEIDLER. *Springer-Handbuch der Mathematik I: Begründet von I.N. Bronstein und K.A. Semendjaew Weitergeführt von G. Grosche, V. Ziegler und D. Ziegler Herausgegeben von E. Zeidler*. Wiesbaden: Springer-Verlag, 2013.
- [164] D. ZHOU. „Experimental investigation of non-linear constitutive behavior of PZT piezoceramics“. Diss. Karlsruhe: Universität Karlsruhe (TH), 2003.
- [165] D. ZHOU und M. KAMLAH. „Dielectric and piezoelectric performance of soft PZT piezoceramics under simultaneous alternating electromechanical loading“. *Journal of the European Ceramic Society* 25 (2005), S. 2415 –2420.
- [166] D. ZHOU, M. KAMLAH und D. MUNZ. „Uniaxial compressive stress dependence of the high-field dielectric and piezoelectric performance of soft PZT piezoceramics“. *Journal of Materials Research* 19 (2004), S. 834 –842.
- [167] T. ZHU und W. YANG. „Fatigue crack growth in ferroelectrics driven by cyclic electric loading“. *Mechanics and Physics of Solids* 47 (1999), S. 81 –97.
- [168] O. C. ZIENKIEWICZ und R. L. TAYLOR. *The finite element method*. 6. Aufl. Amsterdam: Elsevier, 2005.

ISBN 978-3-7376-0342-3



9 783737 603423 >