



# VYSOKÉ UČENÍ TECHNICKÉ V BRNĚ

BRNO UNIVERSITY OF TECHNOLOGY

## FAKULTA STROJNÍHO INŽENÝRSTVÍ

FACULTY OF MECHANICAL ENGINEERING

## ÚSTAV MECHANIKY TĚLES, MECHATRONIKY A BIOMECHANIKY

INSTITUTE OF SOLID MECHANICS, MECHATRONICS AND BIOMECHANICS

## VÝPOČTOVÁ ANALÝZA ELEKTRO-MECHANICKÝCH CHARAKTERISTIK FERROELEKTRICKÉHO/DIELEKTRICKÉHO KOMPOZITNÍHO MATERIÁLU

COMPUTATIONAL ANALYSIS OF THE ELECTRO-MECHANICAL CHARACTERISTICS OF  
FERROELECTRIC/DIELECTRIC COMPOSITE MATERIAL

### DIPLOMOVÁ PRÁCE

MASTER'S THESIS

### AUTOR PRÁCE

AUTHOR

Bc. Tomáš Vítek

### VEDOUCÍ PRÁCE

SUPERVISOR

Ing. Oldřich Ševeček, Ph.D.

BRNO 2023





## Zadání diplomové práce

Ústav:	Ústav mechaniky těles, mechatroniky a biomechaniky
Student:	<b>Bc. Tomáš Vitek</b>
Studijní program:	Inženýrská mechanika a biomechanika
Studijní obor:	Inženýrská mechanika
Vedoucí práce:	<b>Ing. Oldřich Ševeček, Ph.D.</b>
Akademický rok:	2022/23

Ředitel ústavu Vám v souladu se zákonem č.111/1998 o vysokých školách a se Studijním a zkušebním řádem VUT v Brně určuje následující téma diplomové práce:

### **Výpočtová analýza elektro–mechanických charakteristik feroelektrického/dielektrického kompozitního materiálu**

#### **Stručná charakteristika problematiky úkolu:**

Tato práce, navazující na aktuálně řešený vědecko–výzkumný projekt, se bude zabývat výpočtovým modelováním částicových a vrstevnatých kompozitů vytvořených z feroelektrických a dielektrických materiálových komponent. Feroelektrické, resp. piezoelektrické materiály mívají sami o sobě nižší tuhost i lomovou houževnatost než běžné konstrukční keramiky a nejsou tak příliš vhodné pro aplikace s vyšším zatížením. Z tohoto důvodu je snahou přidat do těchto materiálů jinou (dielektrickou) komponentu, např. na bázi korundu či zirkonia, která mívá tyto mechanické vlastnosti podstatně lepší. Cílem je získat kompozitní materiál, který by ideálně vykazoval alespoň částečné funkční vlastnosti piezoelektrické komponenty a současně měl vyšší odolnost vůči mechanickému zatížení zděděnou po dielektrické fázi. Takový kompozit může rovněž navíc obsahovat na hranici komponent i reakční mezifázi, která může výsledné chování kompozitu rovněž ovlivnit – ať již pozitivně tak i negativně. V práci tedy budou vytvořeny výpočtové modely (primárně na bázi metody konečných prvků), které umožní na parametricky definované mikrostruktuře analyzovat homogenizované elektro–mechanické charakteristiky výsledného kompozitu se snahou nalézt či definovat nejvhodnější poměry jednotlivých komponent. Práce bude podpořena i přímou výrobou těchto kompozitů a odpovídajícím měřením na nich a s těmito výsledky konfrontována.

**Cíle diplomové práce:**

- 1) Provést rešerši v oblasti keramických kompozitů se zaměřením na kompozity s funkčními vlastnostmi.
- 2) Vytvořit parametrický 2D/3D numerický model mikrostruktury částicového a vrstevnatého kompozitu složeného z různé feroelektrické a dielektrické keramické fáze umožňující libovolné nastavení objemového podílu jednotlivých komponent a zohledňující rovněž možnou přítomnost mezifázové vrstvy v okolí jejich hranice.
- 3) S využitím výpočtového modelu analyzovat efektivní elastické, piezoelektrické, případně teplotní charakteristiky kompozitu v závislosti na objemovém podílu komponent.
- 4) Získané poznatky srovnat s dostupnými analytickými homogenizačními modely a posoudit jejich omezení.
- 5) Konfrontovat dosažené výsledky s experimentálním pozorováním a definovat doporučení pro návrh feroelektrických–dielektrických kompozitů.

**Seznam doporučené literatury:**

- KELLY, A., ZWEBEN, C., Comprehensive Composite Materials, Pergamon, 2000.
- JONES, R. M., Mechanics of Composite Materials, Taylor & Francis, 1998.
- UCHINO, K. Advanced Piezoelectric Materials, Science and Technology, 2nd edition, Woodhead publishing, 2017
- SETTER, N., Piezoelectric materials in devices, Ceramics Laboratory, EPFL Swiss Federal Institute of Technology, 2002
- AVDIAJ, S. ŠETINA, J. et.al, Modeling of the piezoelectric effect using the finite-element method (FEM), Materials and technology vol. 43, pp.283–291, 2009.
- ANSYS Inc. ANSYS Release 2021 User's Manual. Pennsylvania: Swanson Analysis Sys. Inc, 2021, www.ansys.com.

Termín odevzdání diplomové práce je stanoven časovým plánem akademického roku 2022/23

V Brně, dne

L. S.

---

prof. Ing. Jindřich Petruška, CSc.  
ředitel ústavu

---

doc. Ing. Jiří Hlinka, Ph.D.  
děkan fakulty

## ABSTRAKT

Předložená diplomová práce se zabývá výpočtovým modelováním keramických feroelektrických/dielektrických částicových kompozitů. V rešeršní části je vysvětlen princip piezoelektrického jevu, popsány veličiny definující piezoelektrické chování materiálu a uvedena charakteristika běžně používaných piezoelektrických materiálů včetně zmíněných feroelektrických/dielektrických kompozitů. Výpočtová část práce začíná homogenizací částicových kompozitů sestávajících z feroelektrické matrice a dielektrických částic. Otestovány jsou dostupné analytické modely pro stanovení efektivních elektro-mechanických vlastností kompozitu, dále jsou v programu Ansys Mechanical APDL sestaveny parametrické konečnoprvkové modely částicového kompozitu. Je zde popsán algoritmus tvorby těchto modelů a vysvětlen postup výpočtu příslušných efektivních vlastností kompozitu na základě získaných výsledků. Následně jsou výsledky dosažené analytickými a konečnoprvkovými modely porovnány a je posouzena použitelnost zvolených analytických modelů v závislosti na parametrech kompozitu. Poté jsou s využitím sestavených konečnoprvkových modelů provedeny citlivostní analýzy, prostřednictvím kterých vyhodnoceno, jakým způsobem ovlivňují určité geometrické a materiálové parametry efektivní elektro-mechanické vlastnosti kompozitu. Tyto vlastnosti predikované metodou konečných prvků jsou v další části práce konfrontovány s poskytnutými výsledky experimentů. Následuje výpočtová analýza zbytkových napětí zanesených do kompozitu během sinterování, jejímž výstupem jsou doporučení pro výrobu těchto kompozitů, které by měly vést ke snížení zbytkových napětí a tedy i rizika vzniku trhlin. Na závěr jsou navrženy a analyzovány různé designy feroelektrického/dielektrického kompozitu vyrobitelné metodou 3D tisku, prezentované výsledky mají za cíl sloužit jako základ pro budoucí výzkum.

## ABSTRACT

This diploma thesis deals with the computational modeling of ceramic ferroelectric/dielectric particle composites. The literature review section explains the principle of the piezoelectric phenomenon, describes the quantities defining the piezoelectric behaviour of materials, and provides characteristics of commonly used piezoelectric materials, including the mentioned ferroelectric/dielectric composites. The computational part of the thesis begins with the homogenization of particle composites consisting of a ferroelectric matrix and dielectric particles. Available analytical models for determining the effective electromechanical properties of the composite are tested, and parametric finite element models of the particle composite are assembled using Ansys Mechanical APDL software. The algorithm for creating these models is described, and the procedure for computing the relevant effective properties of the composite based on the obtained results is explained. Subsequently, the results obtained from the analytical and finite element models are compared, and the usability of the chosen analytical models is assessed based on the composite parameters. Sensitivity analyses are then performed using the assembled finite element models to evaluate how specific geometric and material parameters affect the effective electromechanical properties of the composite. These properties predicted by the finite element method are compared to the provided experimental results in the next part of the thesis. A computational analysis of residual stresses induced in the composite during sintering follows, and the output of this analysis provides recommendations for the manufacturing of these composites, aiming to reduce residual stresses and, thus, the risk of crack formation. Finally, various designs of ferroelectric/dielectric composites that can be manufactured using 3D printing are proposed and analysed, with the presented results serving as a basis for future research.

## **KLÍČOVÁ SLOVA**

Keramický kompozit, piezoelectricita, MKP model, Ansys, homogenizace

## **KEYWORDS**

Ceramic composite, piezoelectricity, FEM model, Ansys, homogenization

## **BIBLIOGRAFICKÁ CITACE**

VÍTEK, Tomáš. *Výpočtová analýza elektro-mechanických charakteristik feroelektrického/dielektrického kompozitního materiálu*. Brno, 2023. Dostupné také z: <https://www.vut.cz/studenti/zav-prace/detail/149726>. Diplomová práce. Vysoké učení technické v Brně, Fakulta strojního inženýrství, Ústav mechaniky těles, mechatroniky a biomechaniky. Vedoucí práce Oldřich Ševeček.

## **ČESTNÉ PROHLÁŠENÍ**

Prohlašuji, že jsem diplomovou práci vypracoval samostatně pod vedením Ing. Oldřicha Ševečka, Ph.D. a s použitím uvedené literatury.

V Brně, dne 20. května 2023

.....

Tomáš Vítek

## **PODĚKOVÁNÍ**

Děkuji tímto vedoucímu práce Ing. Oldřichu Ševečkovi, Ph.D. za odborné vedení, vstřícnost a velmi cenné rady při přípravě této práce. Dále bych chtěl poděkovat také Ing. Danielu Drdlíkovi, Ph.D., Ing. Vojtěchu Mařákovi, Ing. Zdeňku Chlupovi, Ph.D. a Ing. Pavlu Tofelovi, Ph.D. za přípravu zkušebních vzorků a realizaci experimentů a současně i Grantové agentuře České republiky za finanční podporu prostřednictvím projektu č. 21-24805S. V neposlední řadě děkuji své rodině a přátelům za jejich plnou podporu a trpělivost v celém průběhu studia.

# OBSAH

1	ÚVOD .....	12
2	ANALÝZA PROBLÉMU A FORMULACE CÍLŮ PRÁCE .....	13
2.1	Problémová situace.....	13
2.2	Formulace problému.....	13
2.3	Cíle řešení problému .....	13
3	REŠERŠE .....	15
3.1	Dielektrické materiály .....	15
3.2	Piezoelektrický jev .....	15
3.3	Veličiny pro popis piezoelektrických materiálů.....	17
3.4	Konstitutivní vztahy piezoelektrických materiálů.....	19
3.5	Využití piezoelektrického jevu.....	20
3.5.1	Zařízení pracující s přímým piezoelektrickým jevem.....	20
3.5.2	Zařízení pracující s nepřímým piezoelektrickým jevem.....	21
3.6	Piezoelektrické materiály .....	21
3.6.1	Monokrystaly .....	21
3.6.2	Keramiky.....	22
3.6.3	Polymery .....	24
3.6.4	Kompozity.....	24
4	HOMOGENIZACE ČÁSTICOVÝCH KOMPOZITŮ .....	28
4.1	Analytické modely .....	28
4.1.1	Model Jayasundere.....	29
4.1.2	Model Pal .....	29
4.1.3	Model Wang.....	29
4.1.4	Model Kerner .....	31
4.2	Konečnoprvkové modely .....	31
4.2.1	Model jedné částice.....	31
4.2.2	Model více částic .....	32
4.2.3	Postup výpočtu homogenizovaných veličin.....	34
4.2.4	Odladění modelu jedné částice .....	36
4.2.5	Odladění modelu více částic .....	37
4.3	Porovnání analytických a konečnoprvkových modelů.....	40
5	ANALÝZA PARAMETRŮ OVLIVŇUJÍCÍCH VLASTNOSTI ČÁSTICOVÉHO KOMPOZITU .....	45
5.1	Vliv tvaru částic.....	45

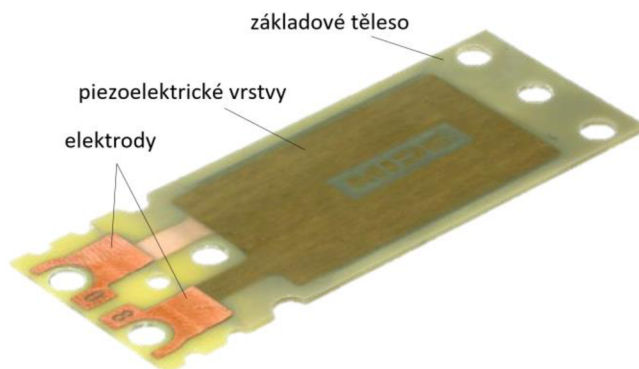


5.2	Vliv Youngova modulu pružnosti částic .....	49
5.3	Vliv permitivity částic.....	52
5.4	Vliv ortotropie permitivity matrice .....	54
5.5	Vliv přítomnosti reakční vrstvy mezi částicí a matricí .....	56
5.6	Shrnutí získaných poznatků .....	62
6	KONFRONTACE S EXPERIMENTY .....	63
7	ANALÝZA ZBYTKOVÝCH NAPĚTÍ V ČÁSTICOVÉM KOMPOZITU.....	66
7.1	Stanovení potřebných materiálových vlastností .....	66
7.2	Konečnoprvkový model pro určení zbytkových napětí .....	67
7.3	Prezentace výsledků zbytkových napětí .....	68
8	ANALÝZA PIEZOELEKTRICKÝCH KOMPOZITŮ S RŮZNOU 3D KONEKTIVITOU KOMPONENT .....	76
9	ZÁVĚR.....	79
	SEZNAM POUŽITÝCH ZDROJŮ .....	81
	SEZNAM POUŽITÝCH ZKRATEK A SYMBOLŮ .....	87

# 1 ÚVOD

V současné době je věnována velká pozornost generování elektrické energie z alternativních zdrojů. Jednou z oblastí, v níž probíhá intenzivní výzkum, je tzv. *energy harvesting*. Tento pojem vyjadřuje především získávání energie z okolního prostředí, která by jinak nebyla nijak účelně využita. Může se jednat o generování elektrické energie například z proudění vzduchu, kapalin, z vibrací či rozdílu teplot mezi tělesy. Zpravidla je takto získáván poměrně nízký elektrický výkon (v řádu mW), který není možné využít k provozu běžných spotřebičů, je však dostačující např. pro napájení nejrůznějších snímačů. V situacích, kdy nelze napájet snímač z elektrické sítě a využití bateriového zdroje není žádoucí z hlediska bezpečnosti či jeho omezené životnosti, může *energy harvesting* představovat velmi zajímavou alternativu.

Při získávání elektrické energie z vibrací hrají důležitou roli tzv. piezoelektrické materiály. Jedná se o specifickou skupinu materiálů, jež jsou schopny generovat elektrické pole v důsledku deformace a naopak, tedy vykazují deformaci v situaci, kdy jsou vystaveny účinkům elektrického pole vytvořeného vnějším zdrojem. Pokud je vhodně konstruované zařízení obsahující piezoelektrické materiály umístěno na zdroj vibrací, dochází k jeho deformaci a na připojených elektrodách vzniká elektrické napětí.



Obr. 1: Ukázka piezoelektrického energy harvesteru [1].

Nejrozšířenějším typem piezoelektrického materiálu jsou v současnosti pravděpodobně keramiky na bázi olova označované zkratkou PZT. Zásadní nevýhodou PZT keramik je však vysoká toxicita olova, kvůli níž je snahou vyvinout alternativní materiály s podobnými vlastnostmi, které ovšem nebudou představovat tak vysokou zátěž pro životní prostředí. Jedním z nich je keramika na bázi  $\text{BaTiO}_3$  označovaná zkratkou BTO. Významný problém této keramiky však spočívá v její nízké lomové houževnatosti i pevnosti, které znesnadňují použití BTO ve vysoce namáhaných zařízeních, kterými zmíněné energy harvestery bezesporu jsou. Řešení tohoto problému by mohlo spočívat v přidání malého množství keramiky s podstatně lepšími mechanickými vlastnostmi (např.  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), čímž by vznikl částicový kompozit vhodnější pro aplikace s vyšším zatížením v porovnání s čistým BTO.

Tato práce si tedy klade za cíl stanovit elektro-mechanické vlastnosti uvedených keramických kompozitů v závislosti na vlastnostech jednotlivých komponent. Dále budou také pomocí výpočtového modelování analyzována zbytková napětí vznikající v kompozitech v důsledku výrobního procesu za vysokých teplot, která mohou vyvolat vznik trhlin znemožňujících použití kompozitu pro daný účel. Zjištěné závislosti poté mohou být využity při návrhu a výrobě těchto kompozitů tak, aby bylo docíleno materiálu s co nejlepšími piezoelektrickými vlastnostmi a zároveň vysokou mechanickou odolností.

## 2 ANALÝZA PROBLÉMU A FORMULACE CÍLŮ PRÁCE

### 2.1 Problémová situace

Piezoelektrické materiály jsou stěžejní součástí konstrukce mnoha zařízení, z nichž lze zmínit např. senzory vibrací, aktuátory či v poslední době intenzivně zkoumaná zařízení využívající elektromechanickou přeměnu energie, tzv. *energy harvestery*. Pro tyto účely jsou v současnosti nejvíce využívány tzv. PZT keramiky, tedy materiály na bázi olova, zirkonu a titanu. Vzhledem k vysoké toxicitě olova probíhají snahy o vývoj nových bezolovnatých materiálů, které by mohly v maximální možné míře zmíněné PZT keramiky nahradit - jedná se zejména o titaničitan barnatý ( $\text{BaTiO}_3$ ).

Jak již bylo zmíněno, problémem keramik vykazujících piezoelektrické chování je z pohledu mechaniky primárně jejich relativně nízká tuhost, pevnost i lomová houževnatost, což vede ke snaze o vytvoření kompozitů obsahujících vedle zmíněné feroelektrické keramiky také dielektrickou komponentu tvořenou běžnou konstrukční keramikou, jež má za cíl vylepšit uvedené mechanické vlastnosti materiálu a umožnit jeho použití i při vyšším mechanickém zatížení. V současné době však není v dostatečné míře popsáno chování zejména kompozitů tvořených feroelektrickou bezolovnatou keramikou s minoritním podílem dielektrických částic. Aby bylo možné vyrobit ze zmíněných komponent kompozit s co nejlepšími elektro-mechanickými vlastnostmi, je nutná detailní analýza toho, jakým způsobem jsou tyto vlastnosti ovlivněny objemovým podílem jednotlivých komponent a jejich materiálovými parametry stejně jako parametry procesu výroby výsledného kompozitu.

Dalším potenciálním problémem kompozitů obsahujících bezolovnatou feroelektrickou keramiku na bázi  $\text{BaTiO}_3$  je vysoká reaktivita tohoto materiálu a vznik reakční vrstvy na rozhraní různých komponent. Na základě provedené rešerše není dosud známo, jaký vliv má tato reakční vrstva na elektro-mechanické vlastnosti vyrobeného kompozitu.

### 2.2 Formulace problému

- Predikce elektro-mechanických vlastností bezolovnatého feroelektrického/dielektrického kompozitního materiálu na základě podílu jednotlivých komponent a jejich materiálových vlastností.
- Stanovení optimálních parametrů kompozitu pro dosažení co nejlepších elektro-mechanických vlastností.
- Posouzení vlivu reakční vrstvy na rozhraní materiálových komponent na efektivní vlastnosti kompozitu.

### 2.3 Cíle řešení problému

1. Provést rešerši v oblasti keramických kompozitů se zaměřením na kompozity s funkčními vlastnostmi.
2. Vytvořit parametrický 2D/3D numerický model mikrostruktury částicového kompozitu složeného z různé feroelektrické a dielektrické keramické fáze umožňující libovolné

nastavení objemového podílu jednotlivých komponent a zohledňující rovněž možnou přítomnost mezifázové vrstvy v okolí jejich hranice.

3. S využitím výpočtového modelu analyzovat efektivní elastické, piezoelektrické, případně teplotní charakteristiky kompozitu v závislosti na objemovém podílu komponent.
4. Získané poznatky srovnat s dostupnými analytickými homogenizačními modely a posoudit jejich omezení.
5. Konfrontovat dosažené výsledky s experimentálním pozorováním a definovat doporučení pro návrh feroelektrických/dielektrických kompozitů.

## 3 REŠERŠE

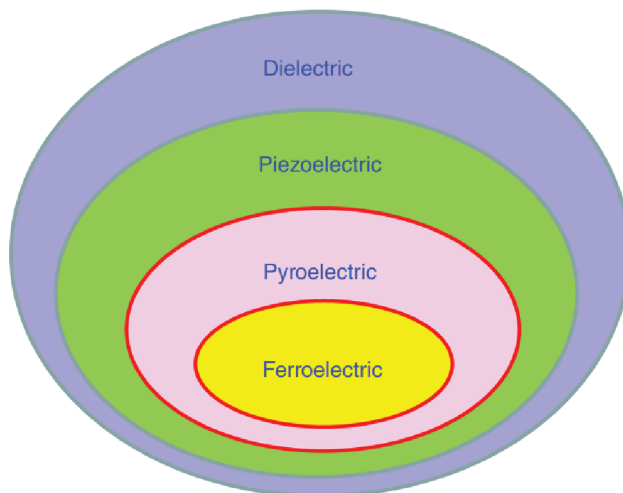
### 3.1 Dielektrické materiály

Dielektrické materiály jsou takové, které se při působení vnějšího elektrického pole polarizují. V látce dochází ke vzniku elektrických dipólů, přičemž výsledné vnitřní elektrické pole má opačný směr než vnější elektrické pole a materiál se tedy chová jako izolant. Míra polarizace dielektrika při působení vnějšího elektrického pole je vyjádřena permitivitou  $\epsilon$ , přičemž platí

$$\epsilon = \epsilon_r \cdot \epsilon_0 \quad (1)$$

$$D = \epsilon \cdot \mathcal{E} \quad (2)$$

kde  $\epsilon_0$  označuje permitivitu vakua,  $\epsilon_r$  relativní permitivitu materiálu (dříve uváděna jako dielektrická konstanta),  $D$  elektrickou indukci a  $\mathcal{E}$  intenzitu elektrického pole [2]. Dielektrika tvoří rozsáhlou skupinu materiálů, kterou lze dále rozčlenit dle specifických vlastností souvisejících se způsobem polarizace viz obr. 2.



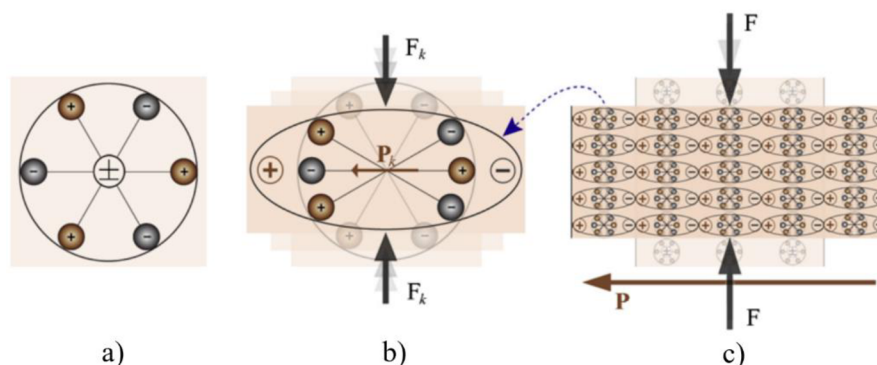
Obr. 2: Schéma podmožin dielektrických materiálů [3].

Piezoelektrické materiály lze vedle působení elektrického pole polarizovat také mechanickým zatížením – tento jev je podrobněji popsán v následující kapitole. V případě pyroelektrických materiálů lze polarizaci vyvolat změnou teploty [4]. Materiál, jenž zůstává polarizovaný i po zániku vnějšího elektrického pole, je označován jako feroelektrický. Z výše uvedeného vyplývá, že všechny feroelektrické materiály jsou zároveň pyroelektrické a ty jsou současně také piezoelektrické a dielektrické [5].

### 3.2 Piezoelektrický jev

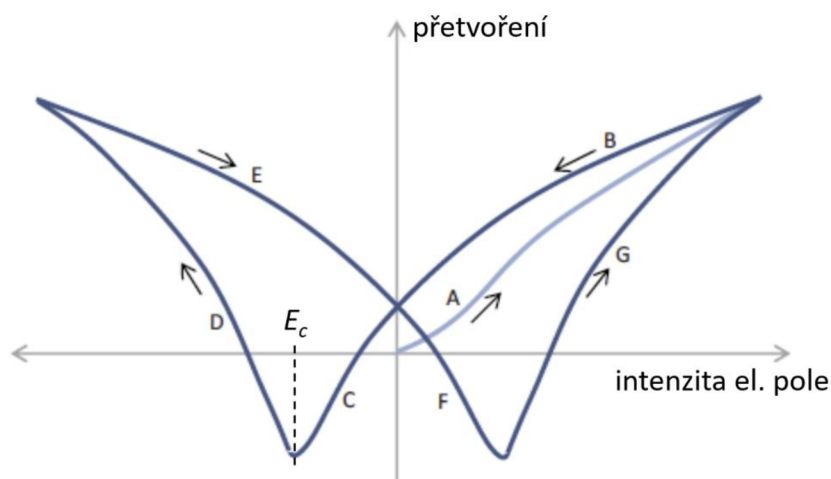
Piezoelektrický jev vyjadřuje schopnost materiálu generovat elektrické napětí v důsledku mechanického zatížení – v takovém případě se jedná o tzv. přímý piezoelektrický jev. Nepřímý piezoelektrický jev naopak popisuje deformaci materiálu (resp. vznik napjatosti) vlivem přítomnosti vnějšího elektrického pole [4]. Tento jev se vyskytuje výhradně u krystalů bez středu symetrie, jedná se však o podmínku nutnou, nikoli dostačující [6]. Podstata piezoelektrického jevu je na jednoduchém molekulárním modelu znázorněna na obr. 3. V nedeformovaném stavu (obr. 3a) je střed kladného náboje totožný se středem záporného náboje a molekula je tedy elektricky neutrální. Při deformaci (obr. 3b) však dochází k posuvu nábojů a vzniká tak

elektrický dipól. Pokud je těleso zhotoveno z feroelektrického materiálu a polarizováno ve vhodném směru vzhledem k zatížení, tj. většina takto vzniklých dipólů má stejnou orientaci (obr. 3c), vzniká elektrické pole, které lze využít k přeměně mechanické energie na elektrickou [4].

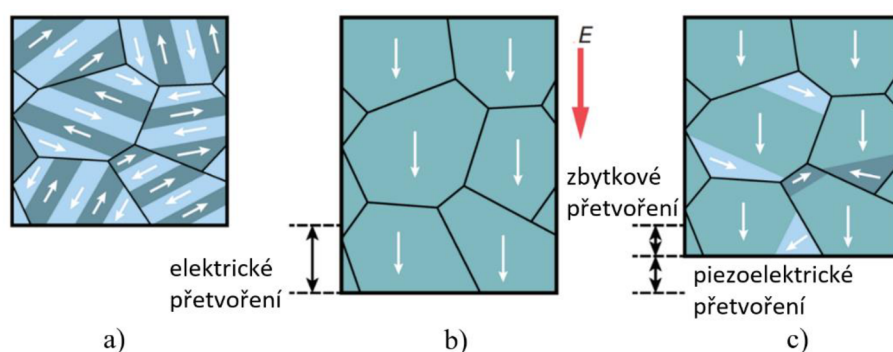


Obr. 3: Podstata piezoelektrického jevu: a) výchozí nedeformovaný stav molekuly; b) posuv středů nábojů při deformaci; c) vznik elektrického pole v materiálu [4].

Pokud není polarizace tělesa provedena, mají jednotlivé elektrické dipóly náhodnou orientaci, navzájem se vruší a napříč tělesem tedy při zatížení nevznikne elektrické pole, resp. jeho výsledná intenzita je zanedbatelná. Polarizovat těleso z feroelektrického materiálu je možné působením vnějšího elektrického pole o dostatečné intenzitě (řádově obvykle v jednotkách kV/mm) [7] – průběh polarizace je vysvětlen pomocí závislosti přetvoření na intenzitě elektrického pole na obr. 4, která je díky svému tvaru obvykle označována jako „motýlí křivka“. Působením elektrického pole na nepolarizovaný feroelektrický materiál dochází při zvyšování intenzity pole k nárůstu přetvoření a postupnému natačení jednotlivých elektrických domén (dipólů) do směru působícího elektrického pole, tj. polarizaci (A). Při určité intenzitě je materiál saturován a nárůst přetvoření výrazně zpomalí. Pokud je poté intenzita pole naopak snižována (B), velikost přetvoření klesá – lze si všimnout, že i při nulové intenzitě pole zůstává v materiálu určitá hodnota přetvoření vlivem provedené polarizace. V tomto stavu je tedy materiál polarizován a vhodný pro potenciální aplikaci. Ilustrace orientace elektrických domén polarizovaného feroelektrika je znázorněna na obr. 5. Jestliže je však materiál v tomto momentě vystaven elektrickému poli opačného směru, přetvoření dále klesá a elektrické domény se otáčejí do opačného směru (C). Dosažením tzv. koercitivní intenzity elektrického pole  $E_c$  nastává situace, kdy je v materiálu srovnatelné množství elektrických domén natočených do obou směrů, materiál tím pádem ztrácí polarizaci a pokles přetvoření se zastaví. Při dalším zvyšování intenzity pole roste počet domén otočených do nového směru a přetvoření opět narůstá opět do dosažení saturace (D) [8]. Z výše uvedeného tedy vyplývá, že velikost koercitivní intenzity elektrického pole  $E_c$  příslušného materiálu stanovuje mezní hodnotu aplikované intenzity, resp. odpovídajícího elektrického napětí, do kterého lze teoreticky součást zhotovenou z tohoto materiálu používat jako aktuátor – při překročení totiž materiál ztrácí polarizaci a součást přestává plnit svou funkci.



Obr. 4: Motýlí křivka feroelektrického materiálu; převzato z [8] a upraveno.



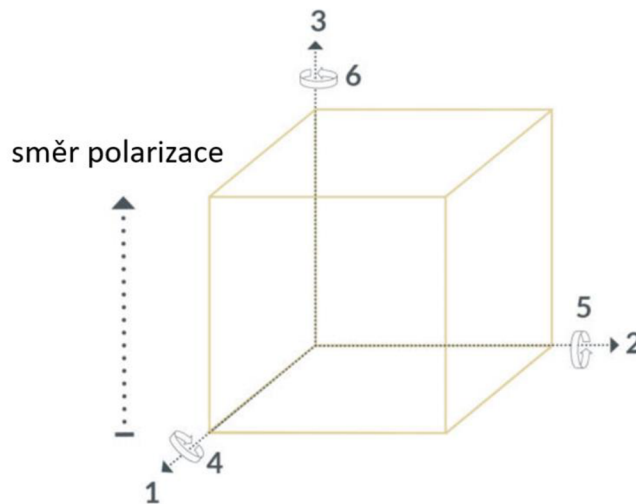
Obr. 5: Orientace elektrických domén feroelektrického materiálu během polarizace: a) výchozí stav; b) působení polarizačního elektrického pole; c) po provedení polarizace [3].

Důležitým parametrem piezoelektrických materiálů je Curieova teplota  $T_C$ , která definuje bod, při jehož překročení materiál ztrácí své piezoelektrické vlastnosti [9]. Tato teplota se pohybuje v širokém rozmezí od přibližně od 60 °C v případě některých polymerů [10] až po řádově nižší stovky stupňů Celsia u speciálních keramik [11].

### 3.3 Veličiny pro popis piezoelektrických materiálů

Piezoelektrické materiály vykazují kvůli polarizaci anizotropii, resp. zpravidla ortotropii, kdy jsou vlastnosti materiálu rozdílné ve směru polarizace a kolmo na tento směr. Z toho důvodu jsou příslušné konstanty vždy specifikovány indexy  $i, j$ , kde  $i$  udává směr polarizace,  $j$  označuje směr namáhání, resp. deformace. Standardní značení jednotlivých směrů vzhledem k polarizaci je znázorněno na obr. 6. Níže jsou uvedeny nejdůležitější veličiny pro popis piezoelektrického materiálu, jejichž charakteristika byla převzata z [9; 12].



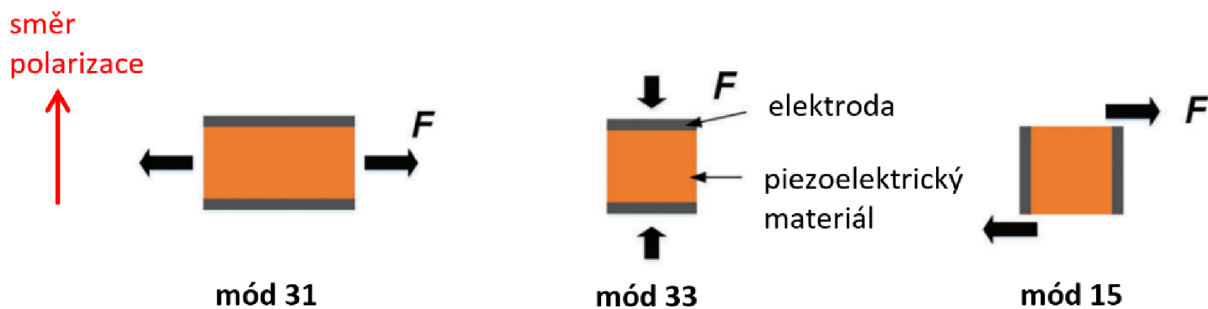


Obr. 6: Souřadný systém používaný v piezoelektrických materiálech [13].

### Piezoelektrický nábojový koeficient $d_{ij}$

Tato konstanta vyjadřuje poměr mezi přetvořením v příslušném směru a intenzitou elektrického pole, kterým bylo toto přetvoření způsobeno (nepřímý piezoelektrický jev) – má proto zásadní význam při aplikacích v aktuátorech. Alternativně je tento koeficient roven také poměru generovaného elektrického náboje ku působící síle (přímý piezoelektrický jev). Pokud je materiál vystaven působení elektrického pole ve směru polarizace, stanovuje koeficient  $d_{33}$  přetvoření v tomto směru, koeficient  $d_{31}$  pak přetvoření ve směru kolmém. Jednotkou je [C/N] (uváděna u přímého jevu), případně [m/V] (uváděna u nepřímého jevu).

Piezoelektrické zařízení může v závislosti na směru namáhání vzhledem ke směru polarizace pracovat ve 3 různých módech viz obr. 7.



Obr. 7: Operační módy piezoelektrického materiálu [14].

### Piezoelektrický napěťový koeficient $g_{ij}$

Udává poměr generovaného elektrického pole vůči mechanickému napětí vyvolanému v materiálu vnějším zatížením. Hodnota tohoto koeficientu je důležitá pro použití v senzorech, kde je zpravidla požadováno maximální generované napětí při působení vnějších sil. Jednotkou je [Vm/N].

### Piezoelektrický coupling koeficient $k_{ij}$

Tento bezrozměrný koeficient vyjadřuje efektivitu přeměny mechanické energie na elektrickou a naopak dle vztahu



$$k = \sqrt{\frac{\text{akumulovaná mechanická energie}}{\text{přivedená elektrická energie}}} = \sqrt{\frac{\text{akumulovaná elektrická energie}}{\text{přivedená mechanická energie}}} \quad (3)$$

### Permitivita $\epsilon$

Permitivita je definována jako míra polarizace dielektrika při působení vnějšího elektrického pole viz kap. 3.1. Pro popis piezoelektrických materiálů je nutné rozlišovat permitivitu při konstantním mechanickém napětí  $\epsilon^T$  a při konstantním přetvoření  $\epsilon^S$ .

### Elastická poddajnost $s$

U piezoelektrických materiálů se liší poddajnost  $s^E$  při zapojení typu „short-circuit“, kdy je elektrický náboj na elektrodách během deformace nulový, a poddajnost  $s^D$  při zapojení typu „open-circuit“, kdy při deformaci dochází ke kumulaci elektrického náboje na elektrodách, přičemž platí  $s^E > s^D$ . Elastické vlastnosti piezoelektrického materiálu lze analogicky vyjádřit také tuhostí  $c^E$ , resp.  $c^D$  a platí

$$[c] = [s]^{-1} \quad (4)$$

### Vztahy mezi jednotlivými veličinami

Určité konstanty piezoelektrických materiálů lze navzájem převádět dle odpovídajících vztahů. Výsledky měření piezoelektrických vlastností jsou často udávány ve formě piezoelektrické matice napětí  $[e]$ , kterou lze na piezoelektrickou matici přetvoření  $[d]$  tvořenou nábojovými koeficienty  $d_{ij}$  převést pomocí následujícího vztahu [15]:

$$[d] = [s^E][e] \quad (5)$$

Mezi piezoelektrickými nábojovými koeficienty  $d_{ij}$  a napěťovými koeficienty  $g_{ij}$  platí závislost [16]:

$$g_{ij} = \frac{d_{ij}}{\epsilon_{ij}} \quad (6)$$

Permitivitu při konstantním mechanickém napětí  $\epsilon^T$  lze na permitivitu při konstantním přetvoření  $\epsilon^S$  přepočítat tímto způsobem [15]:

$$[\epsilon^S] = [\epsilon^T] - [e]^T [d] \quad (7)$$

z čehož plyne, že obecně  $\epsilon^T > \epsilon^S$ .

## 3.4 Konstitutivní vztahy piezoelektrických materiálů

Piezoelektricitu představuje druh závislosti mezi mechanickými veličinami (napětí a přetvoření) a dielektrickými veličinami (elektrická indukce a intenzita elektrického pole) [4]. Tato závislost je definována těmito konstitutivními vztahy [15]:

$$\begin{Bmatrix} \{T\} \\ \{D\} \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} [c^E] & [e] \\ [e]^T & -[\epsilon^S] \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \{S\} \\ -\{E\} \end{Bmatrix} \quad (8)$$

kde

$\{T\}$  je tenzor mechanického napětí

$\{D\}$  je tenzor elektrické indukce

$\{S\}$  je tenzor přetvoření

$\{E\}$  je vektor intenzity elektrického pole

$[c^E]$  je matice tuhosti při konstantní intenzitě elektrického pole

$[e]$  je piezoelektrická matice napětí

$[\epsilon^S]$  je matice permitivity při konstantním přetvoření.

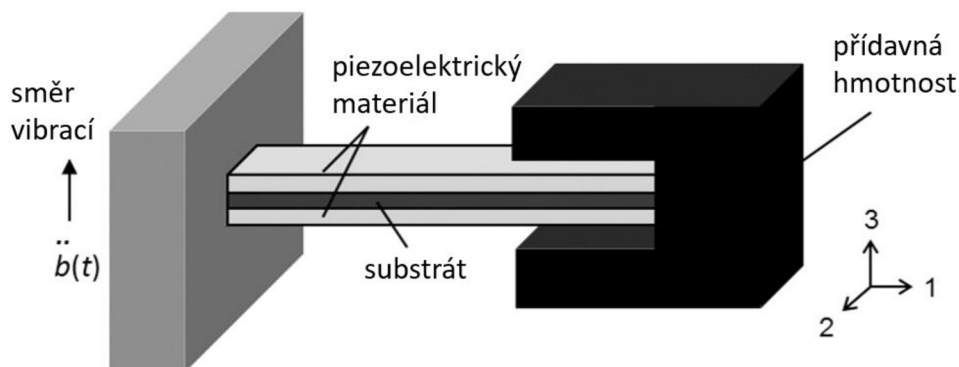
### 3.5 Využití piezoelektrického jevu

Piezoelektrická zařízení lze rozdělit do dvou kategorií podle toho, zda využívají přímý, či nepřímý piezoelektrický jev. Popis jednotlivých aplikací byl převzat z [17].

#### 3.5.1 Zařízení pracující s přímým piezoelektrickým jevem

Jedno z nejběžnějších využití piezoelektrického efektu představuje klasický zapalovač, ve kterém dochází k deformaci piezoelektrické keramiky a vygenerování vysokého napětí, které způsobí jiskru a následné zažehnutí plamene. Piezoelektrické materiály jsou také integrovány do většiny tlakových senzorů.

Zejména v posledních letech probíhá intenzivní výzkum v oblasti tzv. *energy harvesting*, tedy generování elektrické energie například z vibrací, kde piezoelektrické materiály nacházejí významné uplatnění. Schéma piezoelektrického harvesteru je zobrazeno na obr. 8. Tento typ harvesteru funguje na principu deformace piezoelektrických vrstev nosníku, ke kterým jsou připojeny elektrody a na nich generováno elektrické napětí (pracuje tedy v módu 31). Je zpravidla žádoucí, aby vlastní frekvence harvesteru byla co nejbližší frekvenci vibrací a zařízení tak pracovalo v rezonanci, kdy dochází k největším výchylkám a tedy i generovanému napětí.



Obr. 8: Schéma piezoelektrického harvesteru [18].

Dále jsou piezoelektrické materiály využívány například v mikrofonech, kde slouží k převodu zvukových vln na elektrický signál.

### 3.5.2 Zařízení pracující s nepřímým piezoelektrickým jevem

V malých elektronických zařízeních, jako jsou hodinky či levnější sluchátka, mohou být montovány piezoelektrické reproduktory, které poskytují cenově přijatelné řešení a snadné zapojení při dostatečné kvalitě výstupního zvuku.

Nepřímého piezoelektrického jevu se v posledních letech využívá i ve vstřikovačích paliva spalovacích motorů, kde neustále roste poptávka po vyšší efektivitě jejich provozu. Piezoelektrické vstřikovače umožňují precizní kontrolu procesu vstřikování paliva v několika cyklech během jediného zdvihu při tlacích přesahujících 1800 barů.

Piezoelektrické aktuátory jsou také využívány ve vysoce citlivých optických zařízeních, umožňují totiž rychlé a přesné nastavení potřebné pozice jednotlivých prvků těchto zařízení, případně je možné pomocí nich také eliminovat vliv vibrací během provozu díky řízení těchto aktuátorů v reálném čase.

Sonary a ultrazvuky patří mezi zařízení, které využívají obou typů piezoelektrického jevu. Vlnění generované vysílačem (nepřímý piezoelektrický jev) je po odrazu od objektu zachyceno přijímačem (přímý piezoelektrický jev) a převedeno na elektrický signál, díky čemuž lze přesně určit pozici tohoto objektu.

## 3.6 Piezoelektrické materiály

Materiály vykazující piezoelektrický efekt lze rozdělit do několika kategorií popsaných v následujících kapitolách.

### 3.6.1 Monokrystaly

U monokrystalických piezoelektrických materiálů se vyskytuje výrazná anizotropie jejich vlastností, při jejich použití je tedy nutné zajistit odpovídající orientaci krystalografických os. Jejich klíčovými charakteristikami jsou velmi vysoký Q-faktor a teplotní stálost mechanických vlastností, díky čemuž jsou vhodné pro konstrukci frekvenčně stabilních oscilátorů. Nevýhodou jsou ovšem relativně nízké hodnoty piezoelektrických konstant v porovnání s keramikami, monokrystaly tedy nejsou příliš vhodné pro aplikace v podobě senzorů či energy harvesterů [19].

Pravděpodobně nejznámějším zástupcem této skupiny materiálů je křemen (quartz). Využíván je zejména ve stejnojmenných hodinových strojích typu Quartz, které se postupem času staly dominantním mechanismem v zařízeních na měření času. Princip fungování tohoto strojků spočívá v přivedení náboje na krystal, díky jeho piezoelektrickým vlastnostem je následně vyvolána oscilace o frekvenci 32 768 Hz. Pomocí mikročipu je tato oscilace detekována a převedena na elektrický signál po každých 32 768 kmitech (tedy 1 s) [20]. Dále lze mezi piezoelektrické monokrystaly zařadit například niobičnan lithný ( $\text{LiNbO}_3$ ) nebo tantaličnan lithný ( $\text{LiTaO}_3$ ), které nacházejí využití v tzv. SAW zařízeních (*surface acoustic wave*), tedy zařízeních na převod akustických vln na elektrický signál a naopak [16].

### 3.6.2 Keramiky

Piezelektrické keramiky jsou polykrystalické materiály vyznačující se velkým modulem pružnosti a zpravidla také vysokými hodnotami piezelektrických nábojových koeficientů  $d_{ij}$  a coupling koeficientů  $k_{ij}$  viz tab. 1. Dosahují však relativně nízkých hodnot piezelektrického napěťového koeficientu  $g_{ij}$  z důvodu vysoké permitivity – tato skutečnost vychází z rovnice (6). Z mechanického pohledu je také nevýhodou jejich křehkost [16].

Tyto keramiky lze rozdělit do několika skupin dle různých kritérií. Základním dělením je rozlišování tzv. měkkých a tvrdých keramik. Měkké keramiky jsou charakteristické vysokými hodnotami permitivity a piezelektrických koeficientů, na druhé straně jsou náchylné na depolarizaci vlivem nízké koercitivní intenzity elektrického pole a zpravidla mají také nízkou Curieovu teplotu (pod 300 °C), což omezuje spektrum jejich použití. Tvrdé keramiky jsou přesným opakem, jsou tedy odolnější vůči depolarizaci a lze je efektivně používat i při vyšších teplotách, nedosahují ale obecně tak vysokých hodnot piezelektrických koeficientů [21]. Dalším možným rozdělením těchto keramik je na olovnaté a bezolovnaté viz následující text.

Tab. 1: Vlastnosti vybraných piezelektrických materiálů [16].

Parametr	Quartz	BaTiO <sub>3</sub>	PZT 4	PZT 5H	PVDF-TrFE
$d_{33}$ [pC · N <sup>-1</sup> ]	2.3	190	289	593	33
$g_{33}$ [10 <sup>-3</sup> Vm · N <sup>-1</sup> ]	57.8	12.6	26.1	19.7	380
$\epsilon_{r3}$ [–]	5	1700	1300	3400	6
$T_C$ [°C]	neuveđeno	120	328	193	neuveđeno

#### Olovnaté piezelektrické keramiky

Tyto keramiky byly poprvé vytvořeny v 50. letech 20. století. Základní sloučeninou pro jejich výrobu je v naprosté většině případů titaničitan olovnatý (PbTiO<sub>3</sub>). Tato keramika má však poměrně špatné dielektrické a piezelektrické vlastnosti související s její velice náročnou přípravou – během procesu sintrování dochází k vylučování olova a navíc také kvůli anizotropii teplotní roztažnosti snadno k trhlinám. V průběhu 20. století tak bylo snahou nalézt látku, kterou by bylo možné PbTiO<sub>3</sub> modifikovat a dosáhnout tím keramiky s vylepšenými vlastnostmi. Řešením se nakonec ukázal být zirkoničitan olovnatý (PbZrO<sub>3</sub>). Tato látka sama o sobě nevykazuje piezelektrický efekt, ale její kombinací se zmíněným PbTiO<sub>3</sub> lze získat materiál označovaný jako PZT s výtečnými dielektrickými i piezelektrickými charakteristikami (viz tab. 1), který se řadí mezi nejuniverzálnější a nejpoužívanější piezelektrické keramiky. Zásadním problémem, na který je zejména v současnosti kladen vysoký důraz, je vysoká toxicita olova, proto probíhá snaha o nahrazení PZT jinými druhy keramik, které představují menší zátěž pro životní prostředí [22].

#### Bezolovnaté piezelektrické keramiky

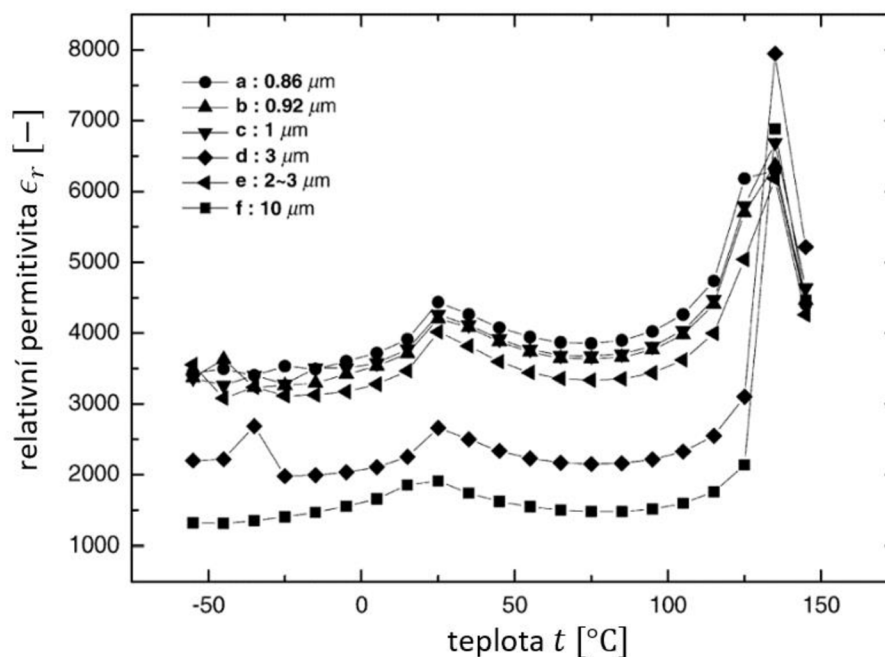
Mezi bezolovnaté keramiky se řadí modifikovaný niobát KNbO<sub>3</sub>-NaNbO<sub>3</sub> označovaný zkratkou KNN, titanát (Bi<sub>0.5</sub>Na<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> označovaný jako BNT či titaničitan barnatý BaTiO<sub>3</sub> (BTO). Tyto materiály momentálně ve většině případů nedosahují z pohledu piezelektricity kvality PZT, v této oblasti proto probíhá intenzivní výzkum s cílem vyvinout takový materiál, který se zmíněnému PZT minimálně vyrovná [23].

KNN keramika se skládá z feroelektrického  $\text{KNbO}_3$  a antiferoelektrického  $\text{NaNbO}_3$  – je zde tedy zřetelná podobnost s PZT. Tento materiál vykazuje poměrně slibný potenciál, v [24] bylo jeho specifickými modifikacemi dosaženo vysokých hodnot piezoelektrických koeficientů srovnatelných s PZT. Překážkou zůstává obtížný proces sinterování této keramiky [23].

Keramika na bázi bismutu (BNT) je vhodná pro aplikaci do zařízení pracujících při frekvenci mikrovln díky vysoké permitivitě a nízkým dielektrickým ztrátám v této frekvenční oblasti. Nevýhodou může představovat vysoká hodnota koercitivní intenzity elektrického pole  $E_c$  (až 70 kV/cm) způsobující obtížnou polarizaci a znemožňující použití této keramiky v situacích, kdy je třeba měnit polaritu v průběhu pracovního cyklu zařízení [25]. Také zde jsou zkoumány možnosti modifikace jinými keramikami ( $\text{CaTiO}_3$ ,  $\text{NaNbO}_3$ ) pro zlepšení dielektrických vlastností. Bylo zjištěno, že nejvýraznější zlepšení těchto vlastností nastává v případě, kdy je díky modifikaci zformováno tzv. morfotropní fázové rozhraní mezi tetragonální a rhombohedrální fází [24].

Hlavním předmětem zájmu této práce je keramika typu BTO obsahující barium, která nabízí množství zajímavých vlastností. Jedná se o chemicky stabilní materiál s vysokou permitivitou a nízkými dielektrickými ztrátami, jehož charakteristiky lze dále vylepšit vhodným dopováním [26].

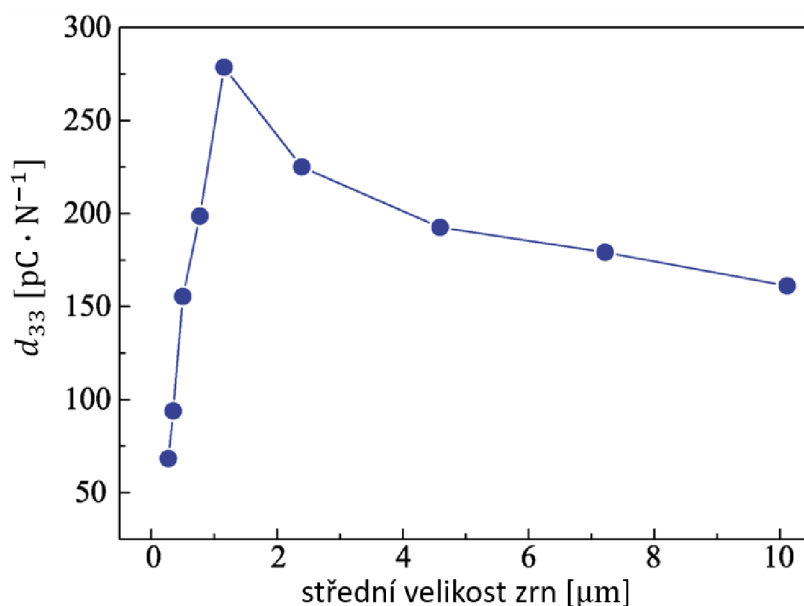
Vlastnosti BTO velmi výrazně závisí na technologii výroby. Bylo zjištěno, že permitivita je významně ovlivněna velikostí zrn viz obr. 9 – při střední velikosti zrn  $0.86 \mu\text{m}$ , resp.  $10 \mu\text{m}$  byla v [27] naměřena relativní permitivita  $\epsilon_r = 4500$ , resp.  $\epsilon_r = 1800$ . Z přiloženého grafu je také patrná závislost permitivity na teplotě, přičemž maximum nastává těsně pod Curievou teplotou.



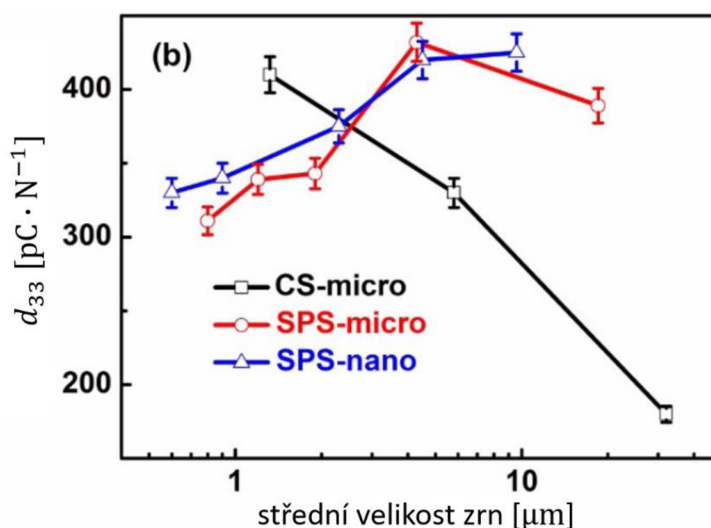
Obr. 9: Závislost permitivity BTO na teplotě [27].

Velikostí zrn jsou ovlivněny také piezoelektrické charakteristiky. Dle dat naměřených v [28] [29] se pro velmi malé velikosti zrn (řádově jednotky  $\mu\text{m}$ ) nejprve hodnota koeficientu  $d_{33}$  s rostoucí velikostí zrn prudce zvyšuje, při dosažení maxima se tento trend otáčí a při dalším růstu zrn se hodnota  $d_{33}$  již pouze snižuje (obr. 10). Není bez zajímavosti, že dle výsledků

dosažených v [30] je tvar závislosti  $d_{33}$  na velikosti zrn dán také typem sinterování keramiky viz obr. 11, kde CS označuje konvenční způsob sinterování a SPS tzv. *spark plasma sintering*.



Obr. 10: Závislost  $d_{33}$  na střední velikosti zrn naměřená v [29].



Obr. 11: Závislost  $d_{33}$  na střední velikosti zrn naměřená v [30]; CS: konvenční sinterování, SPS: *spark plasma sintering*.

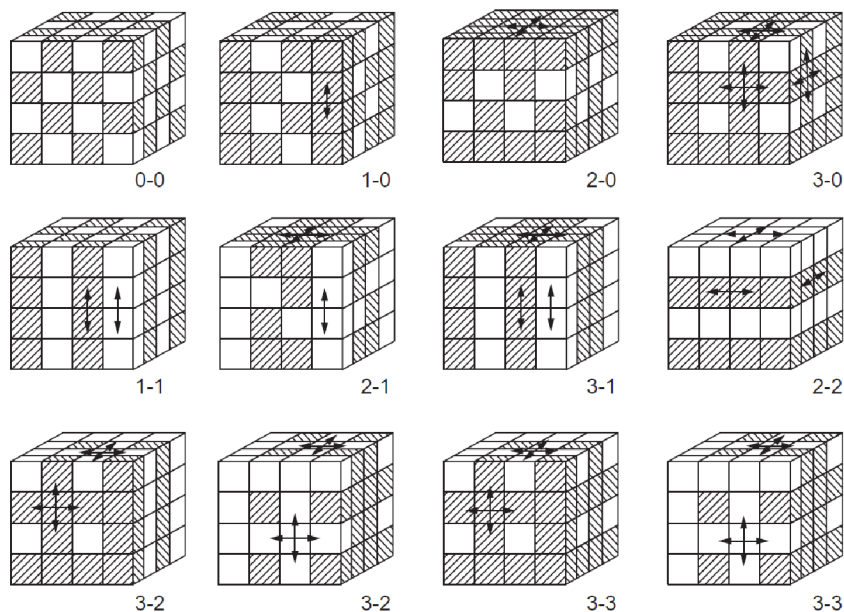
### 3.6.3 Polymery

Piezoelektrické polymery dosahují poměrně nízkých piezoelektrických koeficientů ( $d_{33}$  obvykle 20-30 pC/N) a jsou použitelné pouze do teplot nepřevyšujících maximálně 100 °C. Jejich velkou výhodou je velmi dobrá akustická shoda (angl. *acoustic matching*) s vodou a tekutinami obecně, jsou proto základním konstrukčním prvkem většiny hydrofonů. Dominantním zástupcem tohoto typu piezoelektrických materiálů jsou polymery typu PVDF (polyvinylidenfluorid) [31].

### 3.6.4 Kompozity

Zásadní výhodou piezoelektrických kompozitů jsou velmi široké možnosti optimalizace mechanických, dielektrických a piezoelektrických charakteristik díky kombinaci materiálů

s odlišným chováním. Tyto kompozity lze dle [32] charakterizovat v závislosti na rozložení a propojení jednotlivých fází (obr. 12), kde jednotlivé číslice tohoto dvouciferného označení udávají počet směrů, ve kterých je daná fáze propojena. Kompozit sestávající z částic rozptýlených v matici je tedy definován označením 3-0 (fáze tvořící matici je propojena ve všech 3 směrech, fáze tvořící částice není propojena v žádném směru), vláknový kompozit je označen jako 3-1 atp.



Obr. 12: Značení piezoelektrických kompozitů [16].

Nejběžnějším typem piezoelektrických kompozitů jsou kompozity tvořené piezoelektrickou keramikou v polymerní matici. Výhodu této kombinace lze demonstrovat na příkladu kompozitu tvořeného vlákny z piezoelektrické keramiky (např. PZT) v (dielektrické) polymerní matici (viz tab. 2). Vlivem řádově nižšího Youngova modulu pružnosti polymeru není deformace PZT vláken významně omezena a nábojový koeficient  $d_{33}$  se tedy oproti samotnému PZT sníží relativně málo. Protože však díky polymerní matici dojde k zásadnímu snížení permitivity, dle rovnice (6) se značně zvýší napěťový koeficient  $g_{33}$ , což činí tyto kompozity ideální pro konstrukci nejrůznějších senzorů [16].

Tab. 2: Charakteristiky vybraných kompozitů typu PZT-polymer [16].

Konektivita	Materiál	Elastická konstanta $c_{33}$ [GPa]	Relativní permitivita $\epsilon_{r3}$ [-]	$d_{33}$ [pC · N <sup>-1</sup> ]	$g_{33}$ [pC · N <sup>-1</sup> ]
–	PZT(501A)	81	2000	400	20
3-1	PZT-epoxid	19	400	300	75
3-3	PZT-silikonová pryž	3	40	110	280

Výhodných vlastností je také možné dosáhnout u kompozitů tvořených různými druhy keramik, které jsou předmětem zájmu této práce. Velkou nevýhodou piezoelektrických keramik obecně je jejich relativně nízká tuhost a lomová houževnatost oproti většině konvenčních druhů

technických keramik. Bylo prokázáno, že přidání malého množství částic  $\text{Al}_2\text{O}_3$  nebo  $\text{MgO}$  (okolo 1 % obj.) do PZT keramiky má za následek znatelné zvýšení lomové houževnatosti [33].

### Kompozity typu $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$

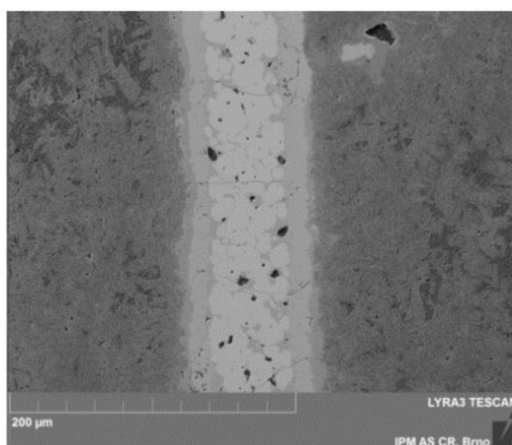
V [34] byl analyzován vliv přidání  $\text{Al}_2\text{O}_3$  do  $\text{BaTiO}_3$  na mikrostrukturu, mechanické a dielektrické vlastnosti této keramiky. Všechny vzorky byly vyrobeny ze stejných keramických prášků totožným technologickým postupem. Výsledkem bylo zjištění, že s rostoucím objemovým podílem  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (měřeno v rozmezí 0 až 5 % obj.) klesá relativní hustota, střední velikost zrn, permitivita a hodnota koeficientu  $d_{33}$ , roste naopak Youngův modul pružnosti výsledného kompozitu viz tab. 3.

Tab. 3: Vlastnosti kompozitu typu 3-0  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  v závislosti na objemovém podílu  $\text{Al}_2\text{O}_3$  [34].

Obsah $\text{Al}_2\text{O}_3$ [% obj.]	Relativní hustota [%]	Střední velikost zrn [ $\mu\text{m}$ ]	$E$ [GPa]	$\epsilon_r$ [-]	$d_{33}$ [ $\text{pC}\cdot\text{N}^{-1}$ ]
0,0	93,5	52,5	99	1606	173
0,5	93,5	49,8	147	1602	178
1,0	93,0	47,0	150	1581	121
3,0	89,7	39,9	161	1213	118
5,0	88,1	37,2	171	942	115

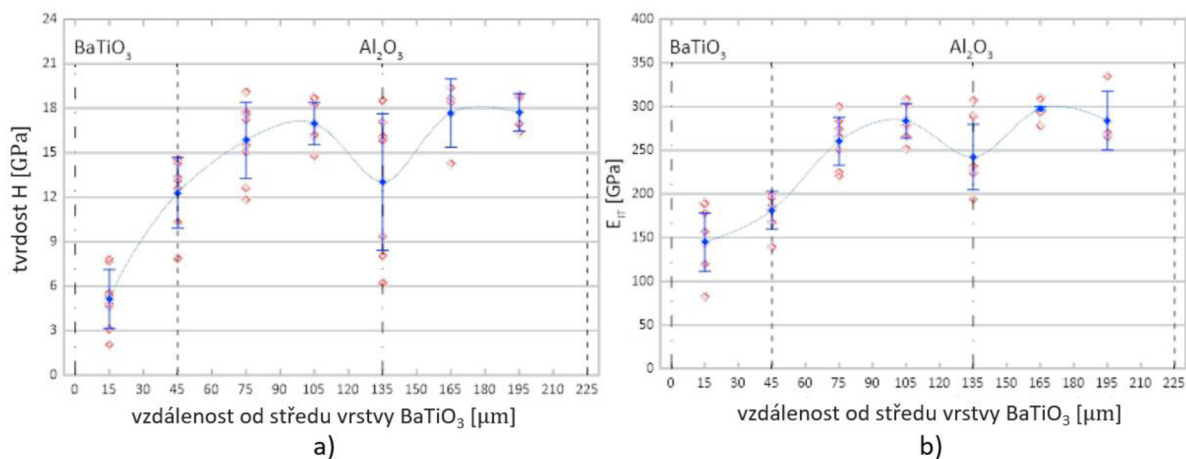
Určitou překážkou při výrobě kompozitů  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  může být vysoká reaktivita těchto komponent, v důsledku které dochází ke vzniku reakční mezifáze tvořené zpravidla  $\text{BaAl}_2\text{O}_4$  a  $\text{Ba}_4\text{Ti}_{10}\text{Al}_2\text{O}_{27}$  [35] [36], některé zdroje uvádějí také přítomnost  $\text{BaAl}_6\text{TiO}_{12}$  [37] a  $\text{Ba}_3\text{Al}_2\text{O}_6$  [38].

Chlup a kol. [39] zhotovili vrstevnatý kompozit  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ , jehož vlastnosti byly poté zkoumány pomocí nanoindentace. Byla pozorována přítomnost reakční vrstvy na rozhraní  $\text{BaTiO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$  viz obr. 13. Obr. 14 znázorňuje tvrdost a Youngův modul pružnosti stanovený nanoindentací v různých místech kompozitu. Pokles těchto vlastností uprostřed vrstvy  $\text{Al}_2\text{O}_3$  je vysvětlen vyšší porozitou v této oblasti.



Obr. 13: Pohled na vrstvu  $\text{BaTiO}_3$  obklopenou reakční vrstvou a vrstvami  $\text{Al}_2\text{O}_3$  [39].





Obr. 14: Mechanické vlastnosti kompozitu BaTiO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> určené nanoindentací: a) tvrdost  $H$ ; b) Youngův modul pružnosti  $E_{IT}$  [39].

### Kompozity typu BaTiO<sub>3</sub>-ZrO<sub>2</sub>

Částicové kompozity obsahující malé množství ZrO<sub>2</sub> přidané do BaTiO<sub>3</sub> byly vyrobeny a analyzovány v [40; 41]. Dle publikovaných zjištění má přidání ZrO<sub>2</sub> na výslednou mikrostrukturu kompozitu podobný vliv jako v případě přidání Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, tedy s rostoucím objemovým podílem ZrO<sub>2</sub> klesá střední velikost zrn BaTiO<sub>3</sub> a snižuje se také relativní hustota vytvořené keramiky. Významný benefit přidání ZrO<sub>2</sub> oproti Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> však může spočívat ve skutečnosti, že ani v jednom z uvedených experimentů nebyla zjištěna přítomnost reakční vrstvy na rozhraní BaTiO<sub>3</sub>/ZrO<sub>2</sub>. Nevýhodou je ovšem zpravidla nižší Youngův modul pružnosti ZrO<sub>2</sub> v porovnání s Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [42; 43].

## 4 HOMOGENIZACE ČÁSTICOVÝCH KOMPOZITŮ

Tato část práce se zabývá popisem a vzájemným porovnáním možných postupů pro stanovení efektivních elektro-mechanických charakteristik feroelektrických/dielektrických částicových kompozitů. K homogenizaci kompozitu byly využity jak analytické, tak i konečnoprvkové modely popsané v následujících kapitolách. Konkrétně bylo analyzováno celkem 5 efektivních charakteristik: piezoelektrické nábojové koeficienty  $d_{31}$  a  $d_{33}$ , relativní permitivita  $\epsilon_r^T$ , Youngův modul pružnosti  $E$  a součinitel teplotní roztažnosti  $\alpha$ .

Homogenizace byla provedena pro částicový kompozit BaTiO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. V rámci řešení projektu GAČR byly od CEITEC (výzkumná skupina Pokročilých multifunkčních keramik) poskytnuty výsledky měření materiálových vlastností vzorků BaTiO<sub>3</sub> a Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (tab. 4). Hodnoty veličin, jež nebyly při řešení tohoto projektu měřeny, ale byly nezbytné pro výpočtové modelování kompozitu, jsou převzaty z dostupných zdrojů: v případě Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> relativní permitivita z [43], u BaTiO<sub>3</sub> piezoelektrické koeficienty  $d_{31}$ ,  $d_{15}$  z Landolt-Börnsteinových tabulek [44].

Tab. 4: Elektro-mechanické vlastnosti jednotlivých fází kompozitu BaTiO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Materiál	$E$ [GPa]	$\mu$ [-]	$\epsilon_r^T$ [-]	$d_{31}$ [ $\frac{pC}{N}$ ]	$d_{33}$ [ $\frac{pC}{N}$ ]	$d_{15}$ [ $\frac{pC}{N}$ ]	$\alpha$ [K <sup>-1</sup> ]
BaTiO <sub>3</sub> (matrice)	70	0,22	3300	-80**	180	250**	$10,49 \cdot 10^{-6}$
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (částice)	380	0,26	10*	0	0	0	$8,77 \cdot 10^{-6}$

Pozn.: \* převzato z [43]; \*\* převzato z [44]

Součástí řešení projektu byla také výroba a měření vzorků částicového kompozitu BaTiO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> obsahujících 3, 5, resp. 10 % obj. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Z těchto hodnot vychází objemové podíly částic uvažované při výpočtovém modelování, porovnání výsledků experimentů a simulací je poté uvedeno v kap. 6.

Následující kapitoly popisují analytické i konečnoprvkové modely použité pro homogenizaci kompozitu.

### 4.1 Analytické modely

V literatuře lze nalézt relativně velké množství analytických modelů popisujících elektro-mechanické chování částicových kompozitů s piezoelektrickou komponentou, v drtivé většině jsou však sestaveny pro kompozitu s částicemi z piezoelektrické keramiky v polymerní matrici. To vede na řadu zjednodušení díky tomu, že Youngův modul pružnosti a také permitivita částic je v takovém případě oproti matrici řádově vyšší. U kompozitů analyzovaných v této práci však piezoelektrické chování vykazuje matrice, její permitivita je v porovnání s částicemi řádově vyšší a ačkoli pro Youngův modul pružnosti matrice ( $E_m$ ) a částic ( $E_p$ ) platí  $E_p > E_m$ , poměr  $\frac{E_m}{E_p}$  není blízký nule a členy obsahující tento výraz tak nelze zanedbat tak, jak některé analytické modely předpokládají. V této práci byly zkoumány celkem 4 analytické modely popsané níže, jejichž chování bylo testováno na kompozitu typu 3-0 se složením BaTiO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Všechny uvedené analytické modely byly zpracovány v programu MATLAB.

### 4.1.1 Model Jayasundere

Model publikovaný v [45] (zde dle jména autora označovaný „Jayasundere“) predikuje permitivitu částicového kompozitu v závislosti na permitivitě jednotlivých komponent a jejich objemovém podílu dle rovnice

$$\epsilon = \frac{\epsilon_1 v_1 + \epsilon_2 v_2 \cdot \frac{3\epsilon_1}{\epsilon_2 + 2\epsilon_1} \cdot \left(1 + \frac{3v_2(\epsilon_2 - \epsilon_1)}{\epsilon_2 + 2\epsilon_1}\right)}{v_1 + \frac{3v_2\epsilon_1}{\epsilon_2 + 2\epsilon_1} \cdot \left(1 + \frac{3v_2(\epsilon_2 - \epsilon_1)}{\epsilon_2 + 2\epsilon_1}\right)} \quad (9)$$

kde  $\epsilon_1$ ,  $v_1$  označují permitivitu a objemový podíl matrice,  $\epsilon_2$ ,  $v_2$  totéž pro částice. Tento model je odvozen z tzv. Kernerovy rovnice za předpokladu  $\epsilon_2 > \epsilon_1$ , který však pro uvažovaný kompozit BaTiO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> neplatí a je tedy nutné počítat s určitou odchylkou.

### 4.1.2 Model Pal

V [46] jsou popsány celkem 4 modely stanovující Youngův modul pružnosti kompozitu, v této práci byl použit model č. 2 (zde dle jména autora označovaný „Pal“), jenž tento modul definuje rovnicí

$$\left(\frac{E}{E_m}\right) \left[\frac{ME_m - 3E_d(P + Q)}{ME - 3E_d(P + Q)}\right]^{N+\frac{53}{46}} \left[\frac{ME - 3E_d(P - Q)}{ME_m - 3E_d(P - Q)}\right]^{N-\frac{53}{46}} = (1 - \phi)^{-2,5} \quad (10)$$

kde  $E$ ,  $E_m$ ,  $E_d$  označují Youngův modul pružnosti kompozitu, matrice a částic v tomto pořadí,  $\phi$  objemový podíl částic a  $M, N, O, P, Q$  jsou konstanty závislé na Poissonovu poměru částic. Určitým omezením je předpoklad nestlačitelnosti matrice vycházející z primárního zaměření tohoto modelu na kompozity s polymerní matricí.

### 4.1.3 Model Wang

Nejkomplexnějším použitým modelem je model publikovaný v [47] (zde dle jména autora označovaný „Wang“), který predikuje jak elastické vlastnosti, tak i permitivitu a piezoelektrické nábojové koeficienty částicového kompozitu sestávajícího z piezoelektrické matrice a dielektrických částic. Tento model je založen na homogenizační metodě Mori-Tanaka [48] a měl by dle předpokladů nejlépe popisovat chování zkoumaného kompozitu BaTiO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Odvozeny byly dvě modifikace tohoto modelu: první varianta vychází z předpokladu izolované částice v teoreticky nekonečné matici (označena „Wang-dilute“) a je tedy určena pouze pro dostatečně nízký objemový podíl částic, druhá varianta uvažuje konečnou koncentraci částic a zahrnuje tak vliv jejich vzájemné interakce (označena „Wang-non-dilute“), měla by proto věrněji modelovat chování kompozitu při vyšších objemových podílech částic. Následující text popisuje postup odvození těchto modelů (pozn.: písmeno  $E$  zde označuje intenzitu elektrického pole, nikoli Youngův modul pružnosti).

Pokud je uvažováno těleso nekonečných rozměrů tvořené piezoelektrickým materiálem, uvnitř něhož je umístěna dielektrická kulová částice a je vystaveno homogennímu poli elastického přetvoření  $\epsilon^0$  a homogennímu elektrickému poli  $E^0$ , dle modelu Wang-dilute jsou přetvoření  $\epsilon^1$  a elektrické pole  $E^1$  uvnitř částice konstantní a dána rovnicemi

$$\epsilon_{ij}^1 = B_{ijkl}^1 \epsilon_{kl}^0 + B_{ijk}^2 E_k^0 \quad (11)$$

$$E_i^1 = B_{ijk}^3 \epsilon_{jk}^0 + B_{ik}^4 E_k^0 \quad (12)$$

kde tenzory  $\mathbf{B}^1, \mathbf{B}^2, \mathbf{B}^3, \mathbf{B}^4$  jsou tvořeny konstantami závisujícími na materiálových parametrech částic a matrice. Potom pro efektivní elastické, piezoelektrické a dielektrické charakteristiky kompozitu  $c_{ijkl}^*, e_{ijk}^*, \alpha_{ij}^*$  platí

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = c_{ijkl}^* \langle \varepsilon_{kl} \rangle - e_{mij}^* \langle E_m \rangle \quad (13)$$

$$\langle D_k \rangle = e_{kij}^* \langle \varepsilon_{ij} \rangle + \alpha_{kl}^* \langle E_l \rangle \quad (14)$$

kde  $\sigma_{ij}$  vyjadřuje napětí,  $D_k$  elektrickou indukci a závorky  $\langle \rangle$  značí průměrnou hodnotu veličiny napříč objemem. Uvedené rovnice lze přepsat do tvaru

$$\langle \sigma_{ij} \rangle = c_{ijkl}^0 \langle \varepsilon_{kl} \rangle - e_{mij}^0 \langle E_m \rangle + v_f (c_{ijkl}^1 \langle \varepsilon_{kl}^1 \rangle - e_{mij}^1 \langle E_m^1 \rangle) \quad (15)$$

$$\langle D_k \rangle = e_{kij}^0 \langle \varepsilon_{ij} \rangle + \alpha_{kl}^0 \langle E_l \rangle + v_f (e_{kij}^1 \langle \varepsilon_{ij}^1 \rangle + \alpha_{kl}^1 \langle E_l^1 \rangle) \quad (16)$$

přičemž platí

$$\mathbf{c}^1 = \mathbf{c} - \mathbf{c}^0 \quad (17)$$

$$\mathbf{e}^1 = \mathbf{e} - \mathbf{e}^0 \quad (18)$$

$$\boldsymbol{\alpha}^1 = \boldsymbol{\alpha} - \boldsymbol{\alpha}^0 \quad (19)$$

kde  $\mathbf{c}, \mathbf{e}, \boldsymbol{\alpha}$  jsou matice elastických, piezoelektrických a dielektrických konstant materiálu částic,  $\mathbf{c}^0, \mathbf{e}^0, \boldsymbol{\alpha}^0$  vyjadřuje totéž pro materiál matrice,  $v_f$  značí objemový podíl částic. Substitucí rovnic (11), (12) do rovnic (15), (16) lze odvodit vztahy pro výpočet efektivních vlastností kompozitu dle modelu Wang-*dilute* následovně:

$$c_{ijkl}^* = c_{ijkl}^0 + v_f c_{ijmn}^1 B_{mnkl}^1 - v_f e_{mij}^1 B_{mkl}^3 \quad (20)$$

$$e_{ijk}^* = e_{mij}^0 + v_f c_{ijkl}^1 B_{klm}^2 + v_f e_{kij}^1 B_{km}^4 \quad (21)$$

$$\alpha_{ijkl}^* = \alpha_{kl}^0 + v_f \alpha_{kl}^1 B_{jl}^4 - v_f e_{kij}^1 B_{ijl}^3 \quad (22)$$

Při vyšším objemovém podílu částic je jejich vzájemná interakce významná a pro přetvoření a elektrické pole v částicích tedy přestávají platit vztahy (11), (12). Model Wang-*non-dilute* aproximuje přetvoření a elektrické pole v částicích a matici pomocí následujících rovnic:

$$\varepsilon_{ij}^1 = B_{ijkl}^1 \langle \varepsilon_{kl}^M \rangle + B_{ijk}^2 \langle E_k^M \rangle \quad (23)$$

$$E_i^1 = B_{ijk}^3 \langle \varepsilon_{jk}^M \rangle + B_{ik}^4 \langle E_k^M \rangle \quad (24)$$

$$\varepsilon_{ij}^0 = v_f \langle \varepsilon_{ij}^1 \rangle + (1 - v_f) \langle \varepsilon_{ij}^M \rangle \quad (25)$$

$$E_k^0 = v_f \langle E_k^1 \rangle + (1 - v_f) \langle E_k^M \rangle \quad (26)$$

ve kterých veličiny vztaheny k vnějšímu zatížení jsou označeny indexem 0, k částicím indexem I a k matici indexem M. Řešením této soustavy rovnic a následně dosazením příslušných veličin do rovnic (15), (16) jsou získány finální vztahy pro výpočet efektivních vlastností kompozitu označené symbolem (\*):

$$c_{11}^* = v_f (c_{11} I_{11}^1 + c_{12} I_{12}^1 + c_{13} I_{31}^1 - e_{31} I_{31}^3) + (1 - v_f) (c_{11}^0 M_{11}^1 + c_{12}^0 M_{12}^1 + c_{13}^0 M_{31}^1 - e_{31}^0 M_{31}^3) \quad (27)$$

$$c_{33}^* = v_f (c_{13} I_{13}^1 + c_{13} I_{13}^1 + c_{33} I_{33}^1 - e_{33} I_{33}^3) + (1 - v_f) (c_{13}^0 M_{13}^1 + c_{13}^0 M_{13}^1 + c_{33}^0 M_{33}^1 - e_{33}^0 M_{33}^3) \quad (28)$$

$$c_{12}^* = v_f(c_{11}I_{12}^1 + c_{13}I_{11}^1 + c_{13}I_{31}^1 - e_{31}I_{31}^3) + (1 - v_f)(c_{11}^0M_{12}^1 + c_{12}^0M_{11}^1 + c_{13}^0M_{31}^1 - e_{31}^0M_{31}^3) \quad (29)$$

$$c_{13}^* = v_f(c_{11}I_{13}^1 + c_{12}I_{13}^1 + c_{13}I_{33}^1 - e_{31}I_{33}^3) + (1 - v_f)(c_{11}^0M_{13}^1 + c_{12}^0M_{13}^1 + c_{13}^0M_{33}^1 - e_{31}^0M_{33}^3) \quad (30)$$

$$c_{44}^* = c_{44} + (1 - v_f)(c_{44} - c_{44}^0)M_{44}^1 + \frac{1}{2}(1 - v_f)(e_{24} - e_{24}^0)M_{15}^3 \quad (31)$$

$$e_{31}^* = -v_f(c_{11}I_{13}^2 + c_{12}I_{13}^2 + c_{13}I_{33}^2 - e_{31}I_{33}^4) - (1 - v_f)(c_{11}^0M_{13}^2 + c_{12}^0M_{13}^2 + c_{13}^0M_{33}^2 - e_{31}^0M_{33}^4) \quad (32)$$

$$e_{33}^* = -v_f(c_{13}I_{13}^2 + c_{13}I_{13}^2 + c_{33}I_{33}^2 - e_{33}I_{33}^4) - (1 - v_f)(c_{13}^0M_{13}^2 + c_{13}^0M_{13}^2 + c_{33}^0M_{33}^2 - e_{33}^0M_{33}^4) \quad (33)$$

$$\alpha_{11}^* = \alpha_{11} - (1 - v_f)(\alpha_{11} - \alpha_{11}^0)M_{11}^4 - 2(1 - v_f)(e_{24} - e_{24}^0)M_{42}^2 \quad (34)$$

$$\alpha_{33}^* = v_f(e_{31}I_{13}^2 + e_{31}I_{13}^2 + e_{33}I_{33}^2 - \alpha_{33}I_{33}^4) - (1 - v_f)(e_{31}^0M_{13}^2 + e_{31}^0M_{13}^2 + e_{33}^0M_{33}^2 - \alpha_{33}^0M_{33}^4) \quad (35)$$

kde  $\mathbf{I}$ ,  $\mathbf{M}$  jsou matice tvořené konstantami stanovenými z materiálových parametrů jednotlivých komponent a jejich objemových podílů.

#### 4.1.4 Model Kerner

Poslední použitý model [49] (zde dle jména autora označovaný „Kerner“) slouží pro predikci koeficientu teplotní roztažnosti kompozitu, jenž je v tomto případě dán rovnicí

$$\alpha = \alpha_m v_m + \alpha_p v_p + v_m v_p \cdot (\alpha_p - \alpha_m) \cdot \frac{K_p - K_m}{v_m K_m + v_p K_p + \frac{3K_m K_p}{4G_m}} \quad (36)$$

kde  $\alpha_m$ ,  $v_m$ ,  $K_m$ ,  $G_m$  označují v tomto pořadí koeficient teplotní roztažnosti, objemový podíl, objemový modul pružnosti a modul pružnosti ve smyku matrice,  $\alpha_p$ ,  $v_p$ ,  $K_p$ ,  $G_p$  totéž pro částice.

## 4.2 Konečnoprvkové modely

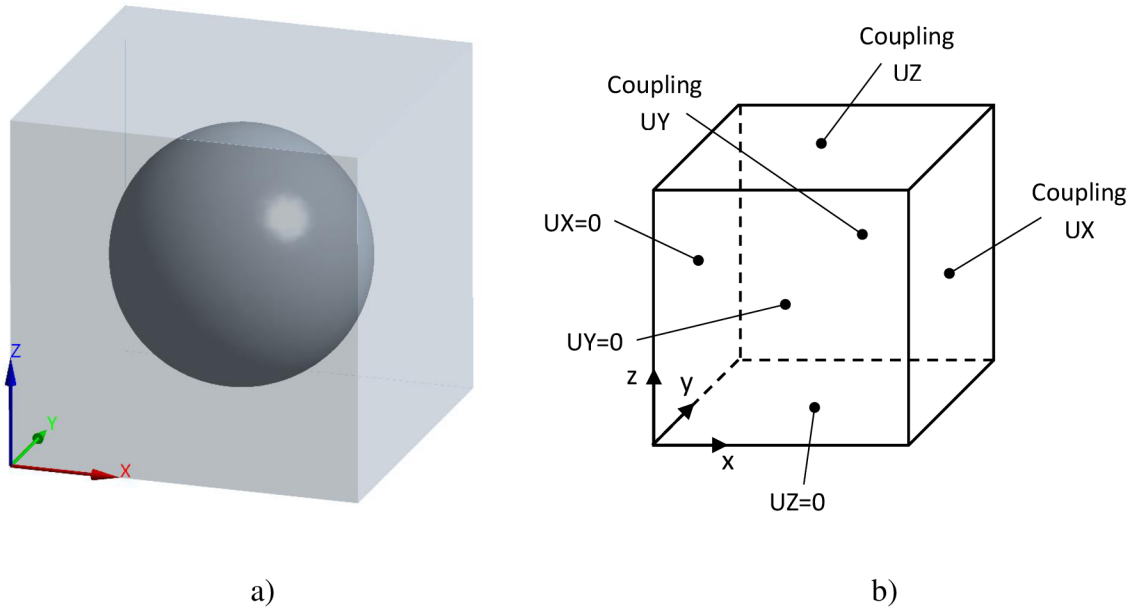
Veškerá příprava modelů, následné výpočty a vyhodnocení byly provedeny v programu Ansys, konkrétně v prostředí Ansys Mechanical APDL verze 2021 R2, některé grafické výstupy byly vytvořeny v prostředí Ansys Workbench. Pro účely homogenizace byly sestaveny dva různé konečnoprvkové modely – první model je tvořen pouze jednou částicí, druhý obsahuje větší množství částic a měl by tak zohledňovat jejich interakci zejména při jejich vyšším objemovém podílu. V následujících kapitolách jsou tyto modely podrobně popsány.

### 4.2.1 Model jedné částice

Geometrie jednočásticového modelu je tvořena kulovou částicí obklopenou maticí, jejíž obálkou je jednotková krychle (délka hrany  $a = 1$ ) viz obr. 15a.

Konečnoprvková síť se skládá z prvků typu SOLID227. Jedná se o tetraedrický 10-uzlový kvadratický prvek s až 6 stupni volnosti v každém uzlu umožňující výpočty tzv. *Coupled Field* analýz, což jsou analýzy, kde dochází ke vzájemné interakci mezi různými typy fyzikálních jevů – u piezoelektrických materiálů se jedná o vazbu mezi deformací (resp. mechanickým

napětím) a elektrickým polem. Pro tento konkrétní případ má prvek SOLID227 celkem 4 stupně volnosti: vedle posuvů UX, UY, UZ je to navíc hodnota elektrického potenciálu označovaná v manuálu programu Ansys zkratkou VOLT [50]. Vliv hustoty sítě konečných prvků tohoto modelu je analyzován v kap. 4.2.4.



Obr. 15: a) geometrie modelu jedné částice; b) periodické okrajové podmínky.

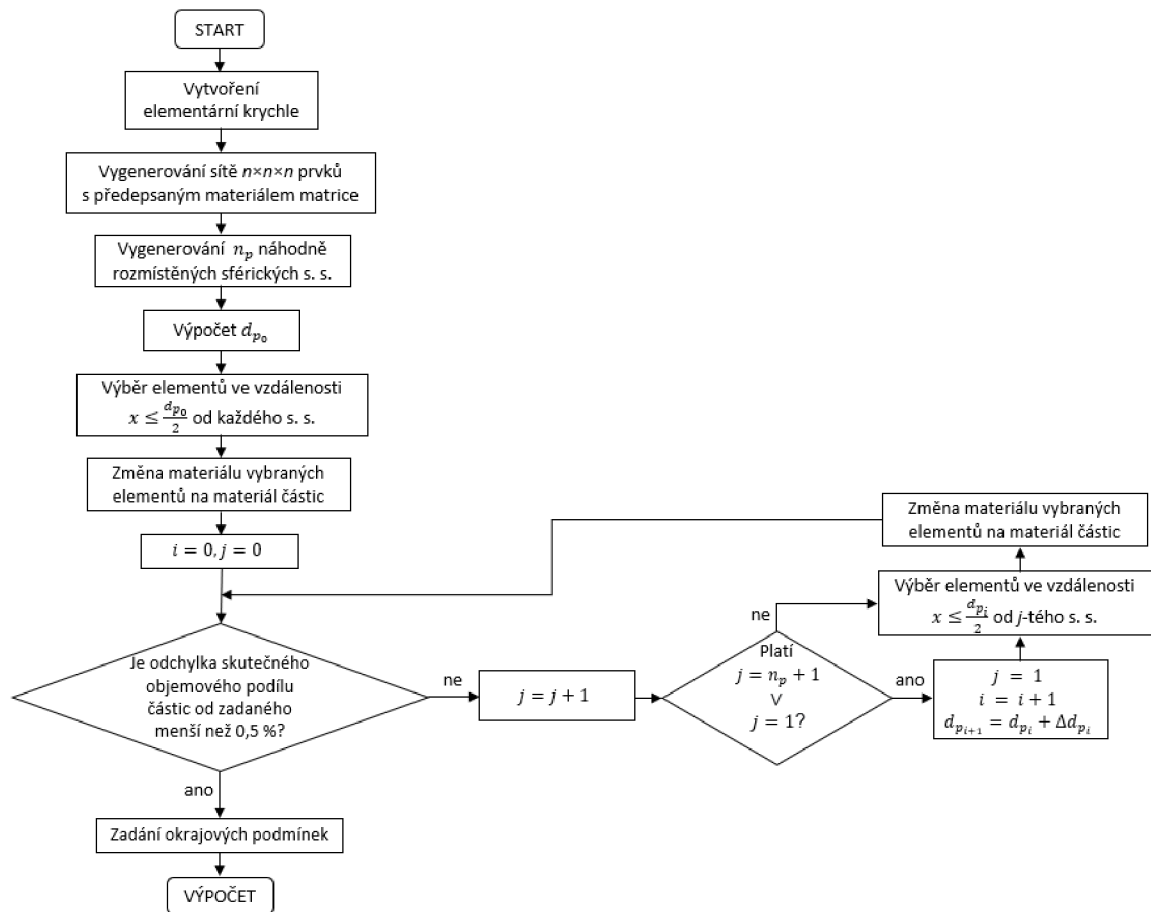
Na takto vytvořenou buňku byly předepsány periodické okrajové podmínky. Na plochách, kde vždy jedna ze souřadnic je nulová, byla aplikována podmínka nulového posuvu ve směru normály příslušné plochy, na protější plochu byla poté použita podmínka typu *coupling* předepisující totožný posuv všech uzlů této plochy ve směru normály viz obr. 15b. Mechanické zatížení a zatížení elektrickým polem se lišila v závislosti na požadované výstupní veličině a jsou popsána v kap. 4.2.3.

#### 4.2.2 Model více částic

Obálku tohoto modelu tvoří rovněž jednotková krychle. Za účelem modelování reprezentativní objemové buňky obsahující větší počet částic byl zvolen tzv. voxelový model, kdy je daný objem vyplněn velkým počtem dostatečně malých elementů krychlového tvaru, přičemž částice jsou následně vytvořeny předepsáním příslušného materiálu na elementy ležící uvnitř zvolených sférických oblastí. Na základě zadaného objemového podílu částic a jejich počtu byl automaticky vypočítán odpovídající průměr jedné částice  $d_{p_0}$  jako

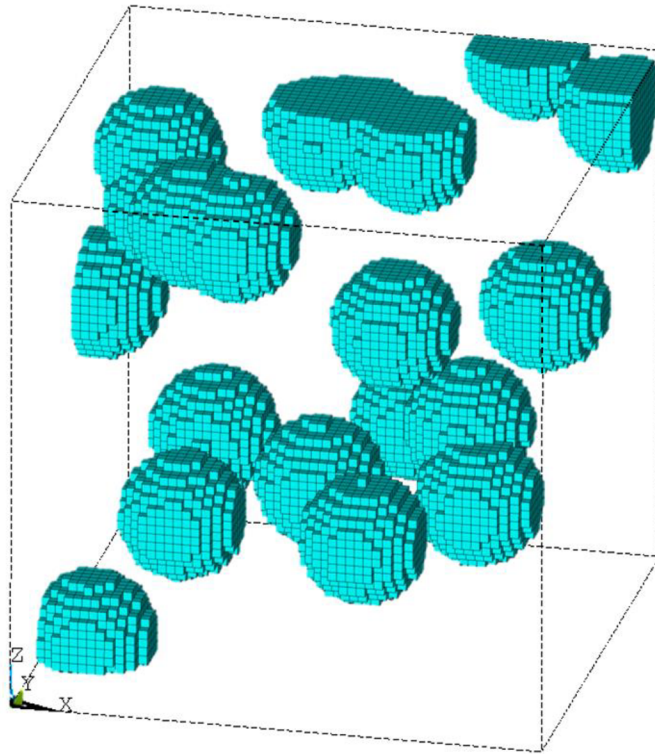
$$d_{p_0} = \sqrt[3]{\frac{6 \cdot v_p \cdot a^3}{\pi \cdot n_p}} \quad (37)$$

kde  $v_p$  označuje zadaný objemový podíl částic,  $n_p$  jejich počet v modelu,  $a$  délku hrany elementární krychle. Poté byly v oblasti elementární buňky náhodně vygenerovány sférické souřadné systémy a vybrány prvky, jejichž vzdálenost od těchto systémů byla menší nebo rovna hodnotě  $d_{p_0}/2$ . Vzhledem k charakteru voxelového modelování a možnosti průniku částic bylo po jejich vygenerování nezbytné kontrolovat jejich skutečný objemový podíl. Za tímto účelem byl implementován cyklus, který po minimálních přírůstcích postupně zvětšoval či zmenšoval průměr jednotlivých částic  $d_{p_i}$  až do okamžiku, kdy se skutečný objemový podíl částic lišil od zadaného o méně než 0,5 %. Algoritmus tvorby tohoto modelu je znázorněn na obr. 16.



Obr. 16: Algoritmus tvorby voxelového modelu více částic.

Výhodou voxelového modelování je možnost použití jednodušších lineárních prvků typu SOLID225 (lze použít jejich hexaedrickou variantu, při modelování pomocí jednotlivých objemových těles by bylo nutné použít tetradrickou variantu těchto prvků, která není kvůli nízké přesnosti doporučována), snadnější vytvoření kompozitů s vysokým objemovým podílem částic oproti modelování pomocí jednotlivých objemových těles, odstranění problémů při vytváření sítě konečných prvků a rychlejší výpočet efektivních vlastností viz kap. 4.2.3. Vliv hustoty sítě konečných prvků a počtu částic uvnitř elementární buňky je popsán v kap. 4.2.5. Na obr. 17 jsou zobrazeny částice ve voxelovém modelu při počtu 20 částic, 60 prvků na hraně elementární buňky (216 000 prvků celkem) a objemovém podílu částic  $v_p = 0,1$ .



Obr. 17: Voxelový model 20 částic při 60 elementech na hraně elementární buňky a  $v_p = 0,1$ .

Periodické okrajové podmínky byly předepsány shodně s modelem jedné částice viz obr. 15b.

### 4.2.3 Postup výpočtu homogenizovaných veličin

#### Výpočet piezoelektrických nábojových koeficientů $d_{31}$ , $d_{33}$

Piezoelektrické nábojové koeficienty jsou rovny poměru přetvoření v příslušném směru a intenzitě vnějšího elektrického pole viz kap. 3.3. Na spodní plochu elementární krychle ( $z = 0$ ) byl předepsán elektrický potenciál  $\varphi_0 = 0$ , na horní plochu ( $z = a$ ) potenciál  $\varphi_a = 1$  V viz obr. 18a. Koeficienty  $d_{31}$ ,  $d_{33}$  jsou poté určeny dle vztahů

$$d_{31} = \frac{\varepsilon_x + \varepsilon_y}{2\mathcal{E}} = \frac{\varepsilon_x + \varepsilon_y}{2 \frac{\varphi_a - \varphi_0}{a}} \quad (38)$$

$$d_{33} = \frac{\varepsilon_z}{2\mathcal{E}} = \frac{\varepsilon_z}{2 \frac{\varphi_a - \varphi_0}{a}} \quad (39)$$

kde  $\varepsilon$  označuje přetvoření v příslušném směru,  $\mathcal{E}$  intenzitu vnějšího elektrického pole.

#### Výpočet permitivity $\epsilon$

Permitivitu je možné určit dvěma různými způsoby. Prvním je využití vztahů pro elektrický náboj, kapacitu a napětí na deskovém kondenzátoru z piezoelektrického materiálu při zatížení tlakem  $p$  na plochách pokrytých elektrodami:

$$C = \frac{A \cdot \epsilon_{33}^T}{t} \quad (40)$$

$$Q = d_{33} \cdot F \quad (41)$$



$$U = \varphi_a - \varphi_0 = \frac{Q}{C} = \frac{d_{33}}{\epsilon_0 \cdot \epsilon_{33}^T} \cdot \frac{F}{A} \cdot t = \frac{d_{33}}{\epsilon_0 \cdot \epsilon_{33}^T} \cdot p \cdot t \quad (42)$$

kde  $C$  je kapacita kondenzátoru,  $Q$  náboj na elektrodách,  $A$  plocha příčného průřezu,  $t$  vzdálenost elektrod,  $F$  normálová síla aplikovaná na jednu z elektrod. Permittivitu lze poté vyjádřit z rovnice (40):

$$\epsilon_{33}^T = \frac{d_{33}}{\epsilon_0 \cdot (\varphi_a - \varphi_0)} \cdot \frac{F}{A} \cdot t \quad (43)$$

Okrajové podmínky pro tento výpočet jsou znázorněny na obr. 18b. Nevýhodou tohoto přístupu je nutná znalost hodnoty  $d_{33}$  při dané konfiguraci kompozitu, je tedy třeba nejprve provést simulaci pro zjištění  $d_{33}$  a poté další simulaci s odlišnými okrajovými podmínkami, z ní stanovit napětí mezi elektrodami a tyto hodnoty dosadit do uvedené rovnice (41). Efektivnější metodou je určení permittivity přímo při výpočtu nábojových koeficientů  $d_{31}, d_{33}$ . Pokud jsou všechny elementy v modelu totožné, lze dle [51] stanovit permittivitu podílem sumy elektrické indukce  $D$  a intenzity elektrického pole  $\mathcal{E}$  přes všechny elementy:

$$\epsilon_{33}^T = \frac{\sum_{i=1}^N D_{zi}}{\sum_{i=1}^N \mathcal{E}_{zi}} \quad (44)$$

Tato skutečnost představuje velký benefit voxelového modelu, u kterého je možné vypočítat nábojové koeficienty i permittivitu během jediné simulace na rozdíl od modelu, kde jsou částice tvořeny jednotlivými objemy, kvůli tomu je nevyhnutelné vytvořit síť z nestejně velkých tetraedrických prvků a permittivitu je tak nutné určit další simulací a výpočtem dle rovnice (41). Porovnání obou způsobů výpočtu permittivity je popsáno v kap. 4.2.5.

### Výpočet Youngova modulu pružnosti $E$

Youngův modul pružnosti byl u všech modelů počítán separátní simulací z důvodu odlišných okrajových podmínek a zatížení vykreslených na obr. 18c. Stanoven byl poté dle vztahu

$$E = \frac{\sigma}{\epsilon} \quad (45)$$

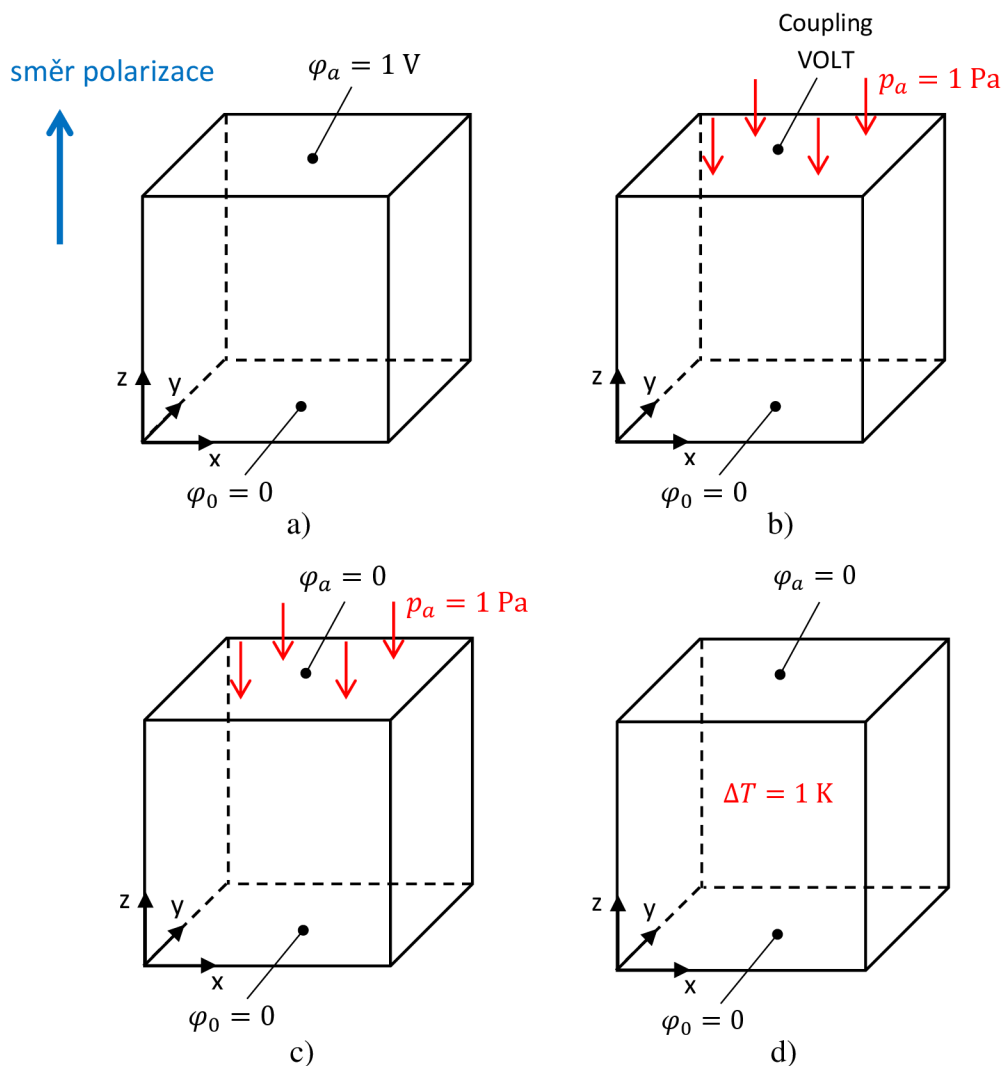
kde  $\sigma$  je normálové napětí,  $\epsilon$  přetvoření v tomto směru.

### Výpočet koeficientu teplotní roztažnosti $\alpha$

Koeficient teplotní roztažnosti byl vypočten dle definice

$$\alpha = \frac{\epsilon}{\Delta T} \quad (46)$$

kde  $\epsilon$  vyjadřuje přetvoření,  $\Delta T$  změnu teploty.



Obr. 18: Okrajové podmínky pro jednotlivé simulace: a) výpočet koeficientů  $d_{31}$ ,  $d_{33}$  dle rovnic (36),(37) a permitivity dle rovnice (42); b) výpočet permitivity dle rovnice (41); c) výpočet Youngova modulu pružnosti dle rovnice (43); d) výpočet koeficientu teplotní roztažnosti dle rovnice (44).

#### 4.2.4 Odladění modelu jedné částice

Na modelu jedné částice byl zkoumán vliv hustoty sítě, která byla tvořena prvky SOLID227 viz kap. 4.2.1. Vliv velikosti prvků byl analyzován na kompozitu s minimálním objemovým podílem částic, tj.  $v_p = 0,03$ , kdy je částice při dané velikosti prvku tvořena nejmenším počtem prvků a lze tedy očekávat největší nepřesnost, materiálové vlastnosti komponent byly zadány dle tab. 4. Velikost prvku byla vždy odvozena od požadovaného počtu dělení hran elementární krychle a následně předepsána na celý model. Hodnoty všech 4 vyhodnocovaných efektivních vlastností kompozitu jsou v závislosti na zvoleném počtu prvků uvedeny v tab. 5. Z tohoto porovnání je patrné, že hustota sítě má v tomto případě zanedbatelný vliv na přesnost výsledků, pro další výpočty byl proto zvolen model s 20 prvky na hraně elementární krychle, u něhož se výpočtový čas při daných HW parametrech pohyboval v řádu desítek sekund.

Tab. 5: Vliv hustoty sítě konečných prvků modelu jedné částice na vypočtené efektivní vlastnosti při  $v_p = 0,03$ .

počet prvků na hraně buňky	počet prvků celkem	počet uzlů	doba výpočtu* [min]	$d_{31}$ [pC/N]	$d_{33}$ [pC/N]	$\epsilon_{r_{33}}^T$ [-]	$E$ [GPa]
10	9 436	13 949	0,08	-75,118	166,364	3139,986	73,248
20	67 093	94 794	1,17	-75,132	166,386	3139,740	73,238
30	225 855	313 040	10,27	-75,134	166,390	3139,726	73,236

\* použitý HW: procesor Intel Core i7-6800K 3,40 GHz (výpočty provedeny na 2 jádrech), 128 GB RAM

#### 4.2.5 Odladění modelu více částic

Pro model více částic byl zkoumán vliv několika různých parametrů potenciálně ovlivňujících přesnost výsledků. Těmito parametry byly konkrétně typ použitých prvků, hustota konečnoprvkové sítě a počet částic v elementární buňce. Materiálové vlastnosti byly aplikovány dle tab. 4.

Modelování piezoelektrického chování v programu Ansys je možné jak lineárními prvky SOLID225, tak kvadratickými prvky SOLID226, resp. SOLID227. Velkou výhodou lineárních prvků při voxelovém modelování je možnost pokrýt elementární buňku výrazně hustší sítí při stejné velikosti matice soustavy oproti prvkům kvadratickým. Byla proto porovnána přesnost lineárních prvků SOLID225 oproti kvadratické variantě SOLID226 na síti tvořené 40 elementy na hraně elementární buňky (nejnižší uvažovaná hustota), přičemž model obsahoval 10 částic při 3 různých objemových podílech viz tab. 6. Pro každý objemový podíl bylo vygenerováno náhodné rozmístění částic, které bylo poté použito u obou typů prvku, aby byl eliminován vliv rozdílné konfigurace částic v modelu. Nejvyšší zaznamenaný rozdíl hodnot vypočtených efektivních vlastností mezi oběma prvky se pohyboval i při relativně hrubé síti okolo 1 % a lze předpokládat, že zjemněním sítě by došlo ke snížení tohoto rozdílu. Byl tedy učiněn závěr, že lineární hexaedrické prvky SOLID225 jsou pro účely homogenizace příslušného kompozitu dostatečně přesné a mohou být použity při dalších výpočtech.

Tab. 6: Porovnání prvků SOLID225 a SOLID226 při 40 prvcích na hraně elementární buňky a 10 částicích v modelu.

$v_p$ [-]	typ prvku	$d_{31}$ [pC · N <sup>-1</sup> ]	$d_{33}$ [pC · N <sup>-1</sup> ]	$\epsilon_{r_{33}}^T$ [-]	$E$ [GPa]
0,03	SOLID225	73,78	-164,16	3119,706	73,74
	SOLID226	73,83	-164,10	3115,82	73,65
	<b>rozdíl [%]</b>	<b>0,06</b>	<b>-0,03</b>	<b>-0,12</b>	<b>-0,12</b>
0,20	SOLID225	46,72	-94,37	2237,27	97,63
	SOLID226	46,75	-94,20	2226,75	97,27
	<b>rozdíl [%]</b>	<b>0,08</b>	<b>-0,18</b>	<b>-0,47</b>	<b>-0,37</b>
0,50	SOLID225	18,03	-28,44	966,52	166,05
	SOLID226	17,98	-28,19	955,11	165,26
	<b>rozdíl [%]</b>	<b>-0,26</b>	<b>-0,89</b>	<b>-1,18</b>	<b>-0,47</b>

Vliv hustoty konečnoprvkové sítě byl opět posuzován při objemovém podílu částic  $v_p = 0,03$  (částice jsou nejmenší a tvoří je tak nejméně prvků) a různých počtech částic. Použity byly lineární prvky SOLID225 viz předchozí text, při daném počtu částic bylo u všech

analyzovaných hustot konečnoprvkové sítě rozložení částic totožné. Závislost výsledných hodnot na počtu prvků je uvedena v tab. 7, vliv počtu prvků na výpočtový čas udává tab. 8.

Tab. 7: Vliv hustoty sítě konečných prvků modelu více částic na vypočtené efektivní vlastnosti při  $v_p = 0,03$ .

počet částic	počet prvků na hraně buňky	$d_{31}$ [pC · N <sup>-1</sup> ]	$d_{33}$ [pC · N <sup>-1</sup> ]	$\epsilon_{r33}^T$ [-]
10	40	74,05	-164,31	3121,79
	60	74,25	-164,71	3122,57
	80	74,37	-164,92	3124,12
15	40	74,28	-164,84	3131,65
	60	74,49	-165,21	3133,12
	80	74,59	-165,39	3133,81
20	40	74,21	-163,93	3127,64
	60	74,44	-164,36	3129,14
	80	74,55	-164,58	3129,80

Tab. 8: Doba výpočtu v závislosti na počtu prvků.

počet prvků na hraně buňky	počet prvků celkem	počet uzlů	doba výpočtu* [min]
40	64 000	68 921	0,62
50	125 000	132 651	2,03
60	216 000	226 981	5,75
70	343 000	357 911	13,63
80	512 000	531 441	28,62

\* použitý HW: procesor Intel Core i7-6800K 3,40 GHz (výpočty provedeny na 2 jádrech), 128 GB RAM

Z tab. 7 vyplývá, že při síti 40×40×40 prvků je hustota sítě pro zjištění efektivních vlastností kompozitu dostatečná a další zjemňování sítě má na výsledky zanedbatelný vliv. Pro další výpočty byla zvolena síť 50×50×50, u které je čas výpočtu při použití HW stále relativně krátký (přibližně 2 min viz tab. 8) a poskytuje oproti hrubší síti lepší vystižení tvaru částic i při jejich malých objemových podílech.

Posledním parametrem vícečásticového modelu, jehož vliv bylo nutné analyzovat, je počet částic v elementární buňce. Testováno bylo 10, 15, 20 a 25 částic při objemových podílech 0,03, 0,20, 0,50, kdy hranu elementární krychle tvořilo 50 prvků typu SOLID225. Každá varianta byla simulována celkem 30krát vždy s náhodným rozmístěním částic a ze získaných výsledků byla poté vypočtena střední hodnota (tab. 9) a variační koeficient  $\nu$  (tab. 10) definovaný vztahem

$$\nu = \frac{s}{\mu} \quad (47)$$

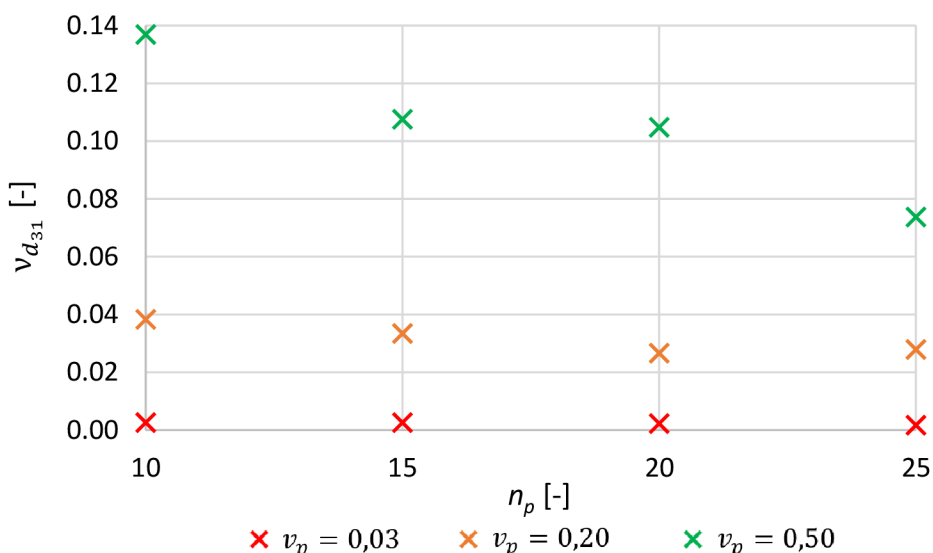
kde  $\mu$  označuje střední hodnotu,  $s$  směrodatnou odchylku. Tento koeficient vyjadřuje relativní význam směrodatné odchylky od průměru, tj. jakou část (kolik procent) průměru představuje samotná směrodatná odchylka.

Tab. 9: Vliv počtu částic na střední hodnotu efektivních vlastností při 30 simulacích pro každou variantu.

$v_p$ [-]	počet částic	$\overline{d_{31}}$ [pC · N <sup>-1</sup> ]	$\overline{d_{33}}$ [pC · N <sup>-1</sup> ]	$\overline{\epsilon_{r33}^T}$ [-]	$\overline{E}$ [GPa]
0,03	10	-74,41	164,89	3127,54	73,72
	15	-74,43	164,81	3129,83	73,72
	20	-74,42	164,88	3131,39	73,75
	25	-74,46	164,92	3132,81	73,73
0,20	10	-47,49	94,70	2223,49	100,09
	15	-46,96	95,77	2234,69	99,12
	20	-47,79	97,25	2260,95	98,83
	25	-47,87	97,12	2256,76	98,84
0,50	10	-16,37	28,92	1017,45	171,09
	15	-16,35	27,98	1001,74	168,45
	20	-16,47	28,62	1016,57	168,18
	25	-16,52	28,83	1000,68	168,92

Tab. 10: Vliv počtu částic na variační koeficient efektivních vlastností při 30 simulacích pro každou variantu.

$v_p$ [-]	počet částic	$v_{d_{31}}$ [-]	$v_{d_{33}}$ [-]	$v_{\epsilon_{r33}^T}$ [-]	$v_E$ [-]
0,03	10	$-2,58 \cdot 10^{-3}$	$2,55 \cdot 10^{-3}$	$1,68 \cdot 10^{-3}$	$2,16 \cdot 10^{-3}$
	15	$-2,59 \cdot 10^{-3}$	$2,43 \cdot 10^{-3}$	$1,58 \cdot 10^{-3}$	$1,83 \cdot 10^{-3}$
	20	$-2,28 \cdot 10^{-3}$	$1,63 \cdot 10^{-3}$	$1,14 \cdot 10^{-3}$	$1,43 \cdot 10^{-3}$
	25	$-1,68 \cdot 10^{-3}$	$1,24 \cdot 10^{-3}$	$7,58 \cdot 10^{-4}$	$9,69 \cdot 10^{-4}$
0,20	10	$-3,83 \cdot 10^{-2}$	$2,10 \cdot 10^{-2}$	$2,77 \cdot 10^{-2}$	$2,18 \cdot 10^{-2}$
	15	$-3,34 \cdot 10^{-2}$	$1,70 \cdot 10^{-2}$	$1,89 \cdot 10^{-2}$	$1,46 \cdot 10^{-2}$
	20	$-2,66 \cdot 10^{-2}$	$1,27 \cdot 10^{-2}$	$1,17 \cdot 10^{-2}$	$1,43 \cdot 10^{-2}$
	25	$-2,79 \cdot 10^{-2}$	$1,36 \cdot 10^{-2}$	$1,36 \cdot 10^{-2}$	$1,19 \cdot 10^{-2}$
0,50	10	$-1,37 \cdot 10^{-1}$	$7,80 \cdot 10^{-2}$	$7,60 \cdot 10^{-2}$	$5,21 \cdot 10^{-2}$
	15	$-1,08 \cdot 10^{-1}$	$1,09 \cdot 10^{-1}$	$7,21 \cdot 10^{-2}$	$3,22 \cdot 10^{-2}$
	20	$-1,05 \cdot 10^{-1}$	$7,73 \cdot 10^{-2}$	$8,92 \cdot 10^{-2}$	$2,76 \cdot 10^{-2}$
	25	$-7,37 \cdot 10^{-2}$	$5,71 \cdot 10^{-2}$	$6,81 \cdot 10^{-2}$	$2,40 \cdot 10^{-2}$



Obr. 19: Závislost variačního koeficientu  $v_{d_{31}}$  na počtu částic při jejich různých objemových podílech

Z tab. 9 výše lze soudit, že při 10 a více částicích při dostatečném počtu provedených simulací střední hodnota efektivních vlastností kompozitu na počtu částic téměř nezávisí. Z tab. 10 a obr. 19 je však až na výjimky jasně patrný trend poklesu variačního koeficientu vypočtených hodnot při zvyšování počtu částic v modelu, při větším počtu částic lze tedy očekávat dostatečně přesný výsledek po menším počtu provedených simulací (náhodného rozložení částic v analyzovaném modelu). Na základě výše uvedeného bylo rozhodnuto, že navazující výpočty budou provedeny na modelech s 20 částicemi, kdy je rozptyl hodnot napříč simulacemi již relativně malý a zároveň mají částice stále dostatečnou velikost pro zachování kulového tvaru při zvolené síti  $50 \times 50 \times 50$  prvků.

Na vícečásticovém modelu byla také ověřena ekvivalence obou způsobů výpočtu permitivity uvedených v kap. 4.2.3. U obou způsobů výpočtu byl použitý totožný konečnoprvkový model lišící se pouze okrajovými podmínkami a zatížením viz obr. 18 s  $50 \times 50 \times 50$  prvky, 20 částicemi a jejich objemovým podílem  $v_p = 0,20$ . Z výsledků v tab. 11 jednoznačně vyplývá rovnost obou postupů.

Tab. 11: Porovnání způsobů výpočtu permitivity.

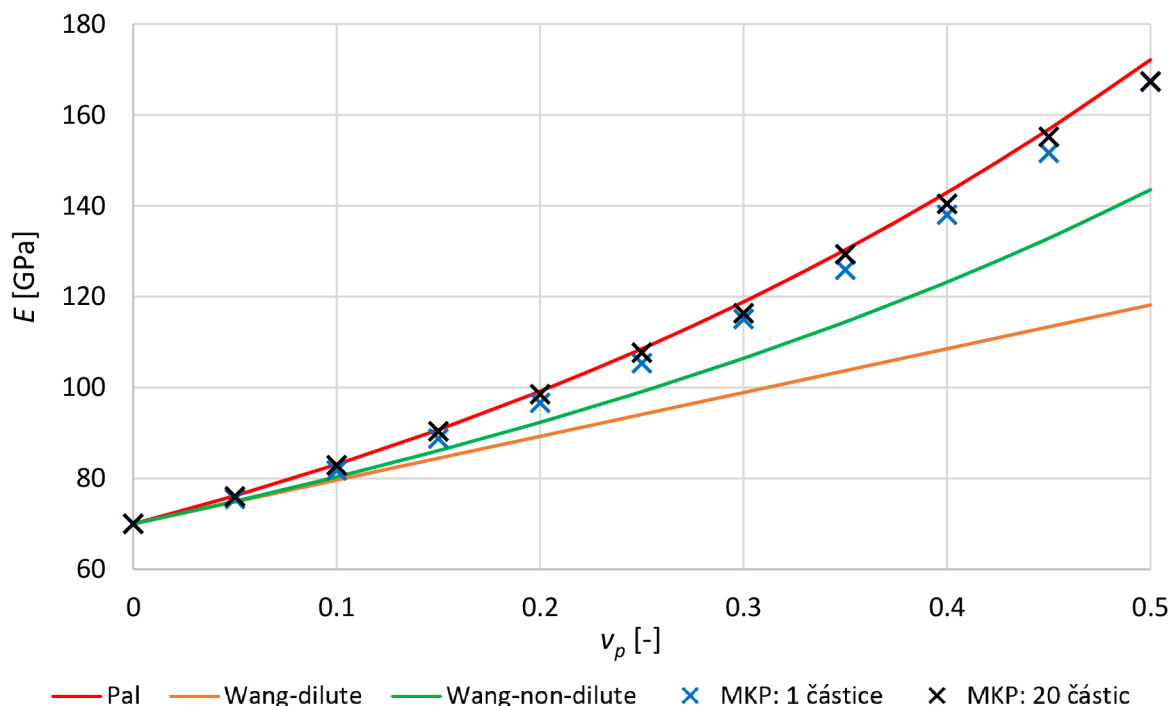
Způsob výpočtu	$\epsilon_{r_{33}}^T [-]$
suma přes elementy dle rovnice (42)	2221,285
vztah pro kapacitu kondenzátoru dle rovnice (41)	2221,283
rozdíl [%]	$9,87 \cdot 10^{-5}$

### 4.3 Porovnání analytických a konečnoprvkových modelů

Ze všech uvedených modelů byly získány výsledky pro 10 objemových podílů částic od  $v_p = 0,05$  do  $v_p = 0,50$ . Konečnoprvkový model jedné buňky tvořila síť s 20 prvky na hraně elementární krychle, model více částic byl tvořen sítí  $50 \times 50 \times 50$  prvků, 20 částicemi a pro každou uvažovanou variantu bylo v tomto případě provedeno celkem 10 simulací s náhodným

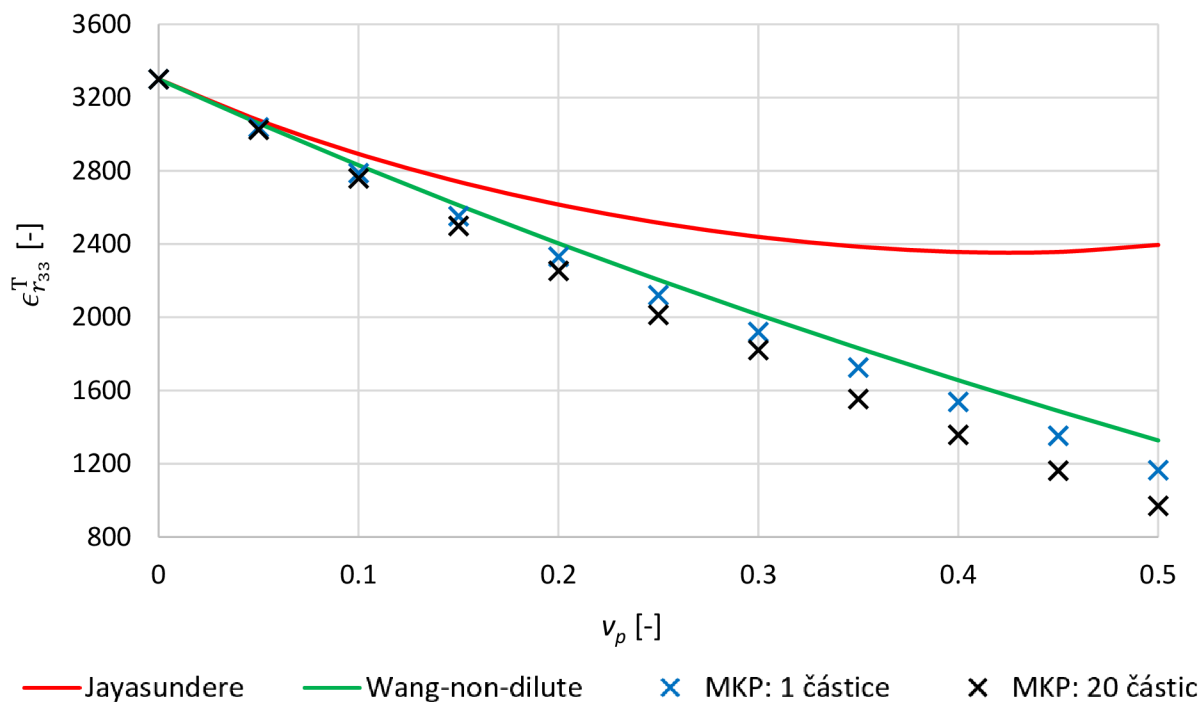
rozložením částic, přičemž výsledná hodnota byla stanovena zprůměrováním všech 10 dílčích výsledků.

Obr. 20 vykresluje průběh Youngova modulu pružnosti predikovaný jednotlivými modely. Za povšimnutí stojí zejména téměř absolutní shoda analytického modelu Pal (viz kap. 4.1.2) v MKP modelem více částic. U tohoto MKP modelu je navíc patrná mírná rozkolísanost výsledků při vyšších objemových podílech způsobená vlivem náhodného rozmístění částic – při provedení většího počtu simulací lze mezi oběma modely očekávat ještě výraznější shodu. Dobrý soulad se zmíněnými modely vykazuje také MKP model jedné částice, naopak u analytických modelů Wang (viz kap. 4.1.2) lze pozorovat výraznější odchýlení, kdy rozdíl výsledku modelu Wang-dilute od MKP modelu více částic dosahuje při  $v_p = 0,50$  téměř 30 %.



Obr. 20: Závislost Youngova modulu pružnosti na objemovém podílu částic predikovaná jednotlivými modely.

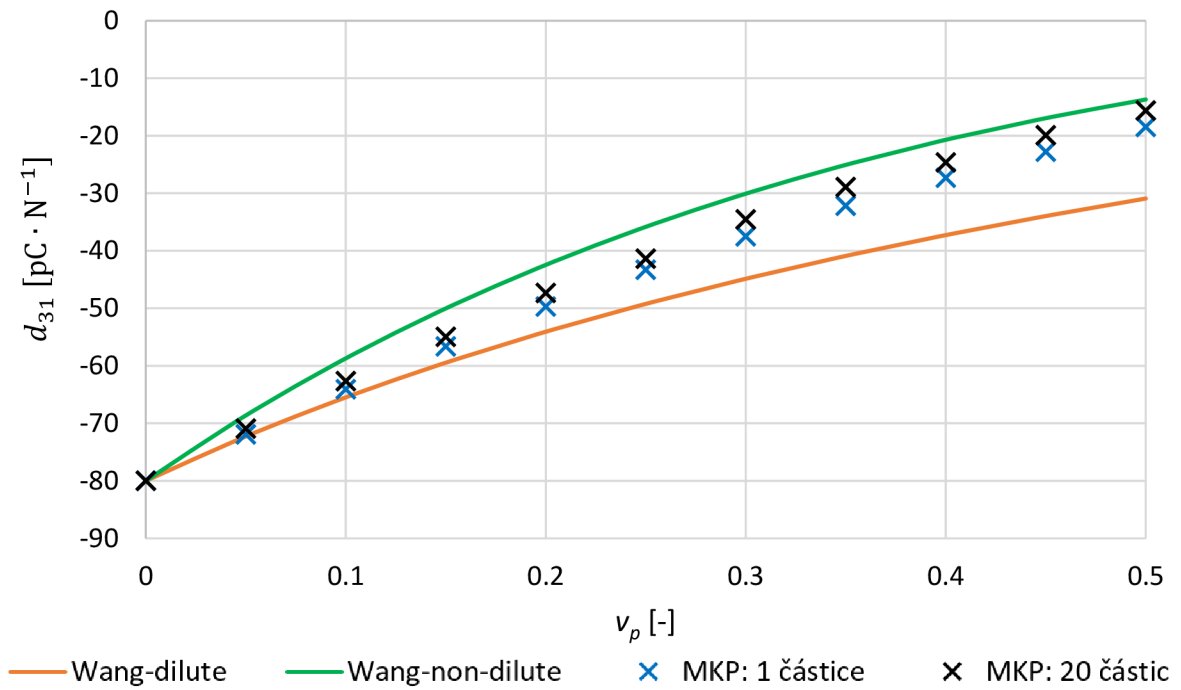
Na obr. 21 jsou znázorněny výsledky permitivity. Model Jayasundere (viz kap. 4.1.1) se ukázal jako použitelný pouze při malých objemových podílech částic – při překročení  $v_p = 0,1$  se výsledky začínají od zbývajících modelů výrazněji odchylovat a při  $v_p = 0,4$  se dokonce směr závislosti otáčí. Vzhledem k výrazně nižší relativní permitivitě částic  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ( $\epsilon_r = 10$ ) oproti matici  $\text{BaTiO}_3$  ( $\epsilon_r^T = 3300$ ) však lze jednoznačně očekávat monotónní průběh této závislosti a zmíněný jev je tedy pravděpodobně způsoben nepřesností tohoto modelu, který byl odvozen pro opačný případ částicového kompozitu, kdy permitivita částic převyšuje permitivitu matrice. Tvar závislosti predikovaný ostatními modely je totožný, k nejrychlejšímu poklesu permitivity dochází v případě MKP modelu 20 částic. Výsledky permitivity stanovené modelem Wang-dilute zde nejsou prezentovány, jelikož se z neznámých příčin řádově odchylovaly od zbývajících modelů.



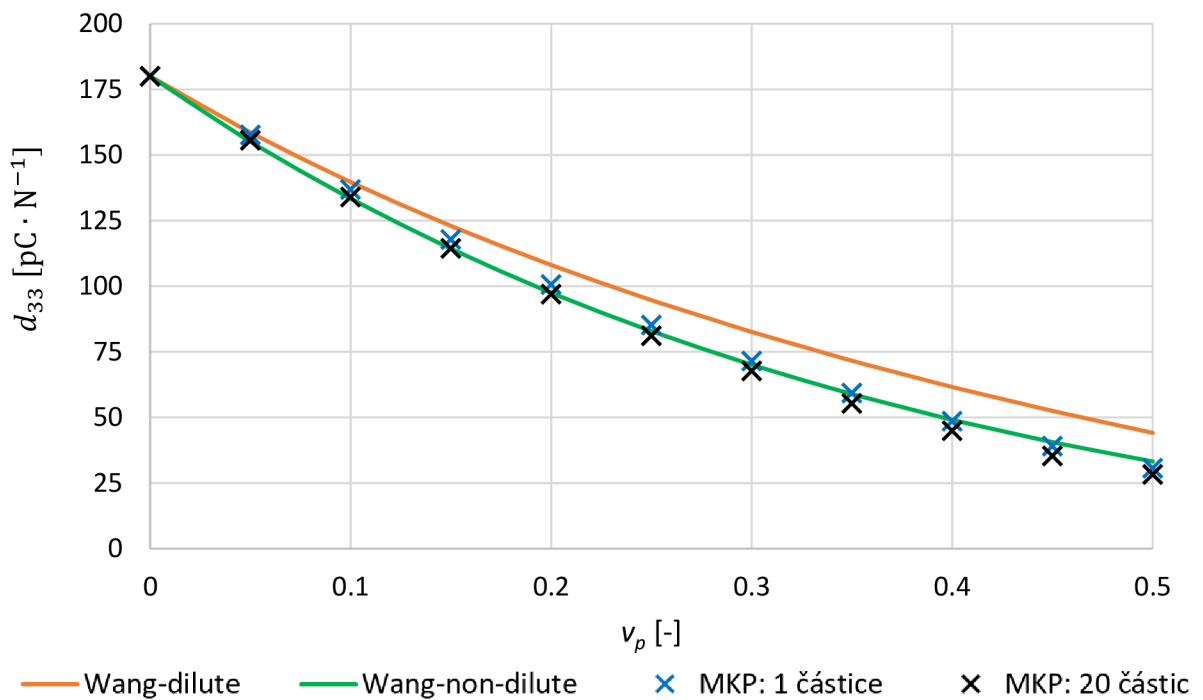
Obr. 21: Závislost relativní permitivity na objemovém podílu částic predikovaná jednotlivými modely.

Průběh závislosti koeficientů  $d_{31}$  a  $d_{33}$  na objemovém podílu částic znázorňuje obr. 22, resp. obr. 23. Rozdíl hodnot  $d_{31}$  v rámci obou variant analytického modelu Wang je poměrně výrazný, hodnoty predikované MKP modely se nacházejí mezi nimi, přičemž s rostoucím objemovým podílem se dle očekávání přibližují k variantě Wang-*non-dilute*. Co se týče koeficientu  $d_{33}$ , zde panuje poměrně velká shoda napříč všemi použitými modely v rámci celého intervalu uvažovaných objemových podílů částic.





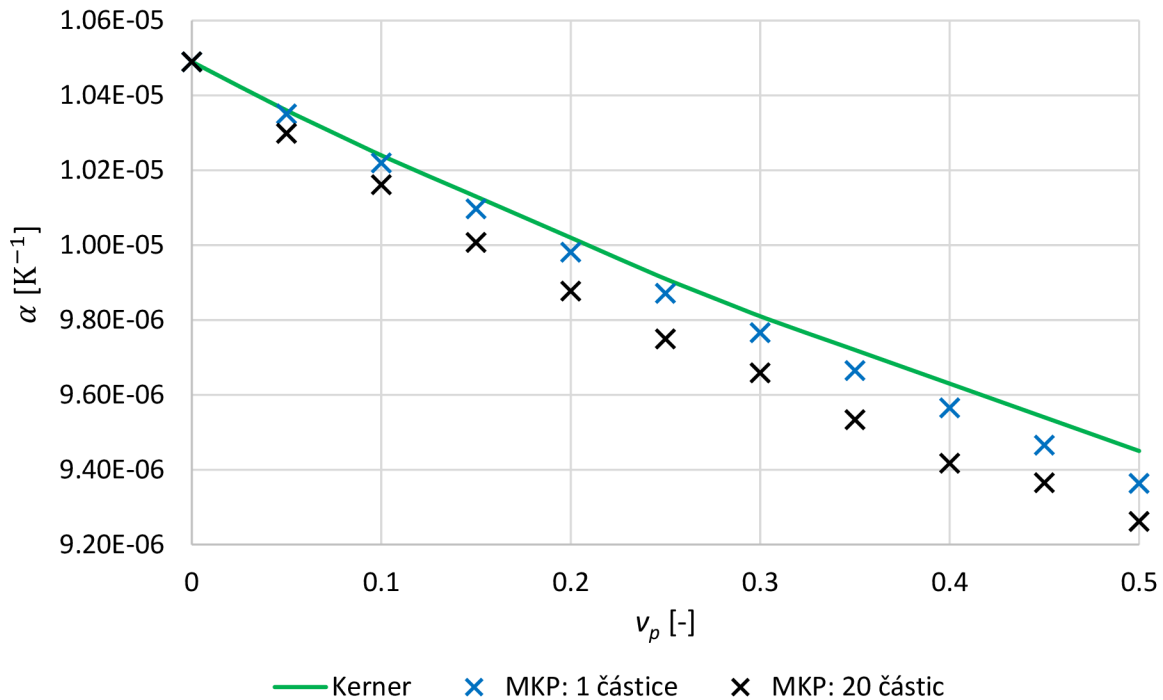
Obr. 22: Závislost koeficientu  $d_{31}$  na objemovém podílu částic predikovaná jednotlivými modely.



Obr. 23: Závislost koeficientu  $d_{33}$  na objemovém podílu částic predikovaná jednotlivými modely.

Na obr. 24 je vykreslen průběh koeficientu teplotní roztažnosti kompozitu stanovený třemi různými modely. Analytický model Kerner (viz kap. 4.1.4) predikuje na zvoleném intervalu nejpo-  
 malejší pokles tohoto koeficientu. Při objemovém podílu částic  $v_p = 0,50$  poklesne hodnota  
 koeficientu teplotní roztažnosti stanovená modelem MKP: 20 částic v porovnání s čistým

BaTiO<sub>3</sub> přibližně o  $0,71(\alpha_m - \alpha_p)$ , přičemž  $\alpha_m$ ,  $\alpha_p$  jsou koeficienty teplotní roztažnosti matrice (BaTiO<sub>3</sub>), resp. částic (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). V případě modelu Kerner je tento pokles přibližně  $0,60(\alpha_m - \alpha_p)$ .



Obr. 24: Závislost koeficientu teplotní roztažnosti  $\alpha$  na objemovém podílu částic predikovaná jednotlivými modely.

Celkově je možné konstatovat, že navzdory komplexnosti piezoelektrického chování materiálů jsou predikční schopnosti vybraných analytických modelů až na výjimky velmi dobré v porovnání s modelováním MKP. Byl také potvrzen účinek vzájemného ovlivnění částic na výsledné efektivní vlastnosti kompozitu. Pokud analytický model *Wang-non-dilute* predikoval snížení (resp. zvýšení) hodnoty dané veličiny oproti modelu *Wang-dilute*, nastalo toto snížení (resp. zvýšení) analogicky také v rámci MKP modelování, tedy model 20 částic predikoval snížení (resp. zvýšení) v porovnání s modelem jedné částice, byť zpravidla ne tak výrazné.

## 5 ANALÝZA PARAMETRŮ OVLIVŇUJÍCÍCH VLASTNOSTI ČÁSTICOVÉHO KOMPOZITU

V rámci výpočtového modelování bylo také analyzováno, jakým způsobem různé modifikace kompozitu a změny vstupních parametrů ovlivňují výsledné elektro-mechanické chování kompozitu. Posouzen byl vliv tvaru částic, hodnoty Youngova modulu pružnosti a permitivity částic, anizotropie permitivity matrice a nakonec ovlivnění vlastností přítomností reakční vrstvy na rozhraní částic a matrice.

Následující kapitoly popisují způsob simulace uvedených jevů a dosažené výsledky. Vyjma posouzení vlivu nekulového tvaru částic byly všechny analýzy provedeny na voxelovém modelu 20 částic a příslušná hodnota dané veličiny byla vždy stanovena jako průměr z 10 provedených simulací s totožným nastavením vstupních parametrů.

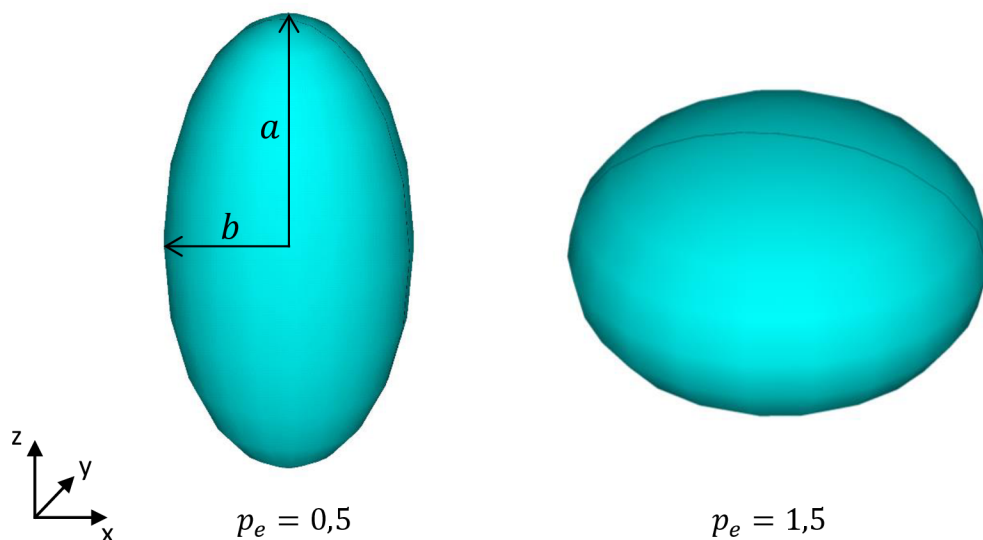
### 5.1 Vliv tvaru částic

Při výrobě zkušebních vzorků kompozitu  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  ve tvaru disku bylo zjištěno, že vlivem lisování vzorků je rozměr částic ve směru osy těchto disků (a tedy i ve směru polarizace) zpravidla menší oproti rozměrům v kolmých směrech. Z tohoto důvodu bylo otestováno, jakým způsobem může tato skutečnost ovlivňovat výsledné efektivní vlastnosti kompozitu.

K tomuto účelu byl modifikován model jedné částice, který dle srovnání v kap. 4.3 prokázal dostatečnou přesnost pro tuto analýzu, kdy je cílem pouze posouzení vlivu tvaru částic na efektivní charakteristiky. Kulový objem reprezentující částici byl pomocí příkazu *VLSCALE* modifikován do tvaru elipsoidu, jehož poloosy kolmé na směr polarizace byly totožné a jejich délka byla definována poměrem k poloose ležící ve směru polarizace dle vztahu

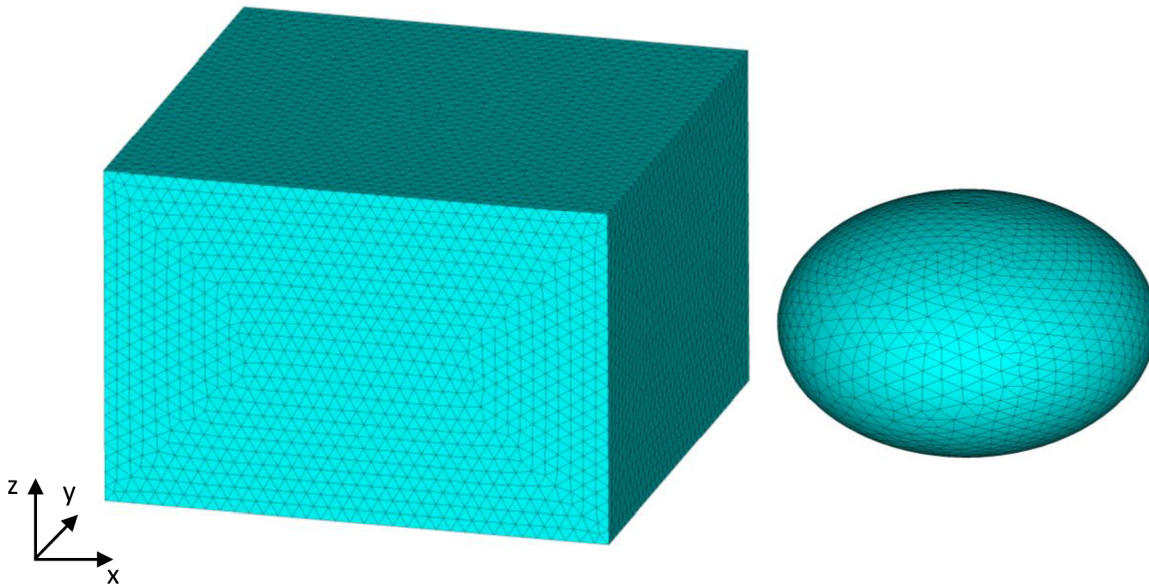
$$p_e = \frac{b}{a} \quad (48)$$

kde  $a$  označuje délku poloosy rovnoběžné s osou  $z$  (směr polarizace),  $b$  délky kolmých poloos. Hodnoty tohoto poměru byly zvoleny v intervalu  $(0,5; 1,5)$ , tvar částice při mezních hodnotách je znázorněn na obr. 25.



Obr. 25: Tvar částice při zvolených mezních hodnotách poměru hlavní a vedlejších poloos  $p_e$ .

Velikost prvku byla nastavena na 1/30 délky hrany elementární buňky, síť tedy byla jemnější v porovnání s modelem obsahující kulovou částici z důvodu pokrytí menších poloměrů zaoblení částic způsobených eliptickým tvarem. Rozměry elementární buňky byly upraveny tak, aby vzájemný poměr jednotlivých hran byl totožný s poměrem příslušných os elipsy. Okrajové podmínky byly aplikovány totožně, jako je popsáno v kap. 4.2.1, síť konečných prvků je pro konkrétní konfiguraci kompozitu zobrazena na obr. 26. Získané závislosti efektivních vlastností kompozitu na tvaru částic jsou vykresleny na obr. 27 a obr. 28.

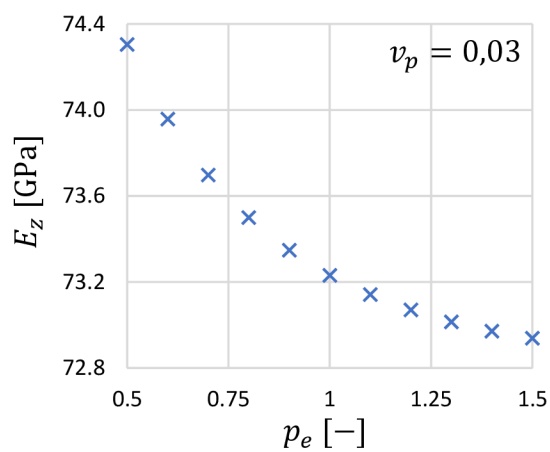


Obr. 26: Síť konečných prvků při objemovém podílu  $v_p = 0,20$  a poměru poloos  $p_e = 1,5$ .

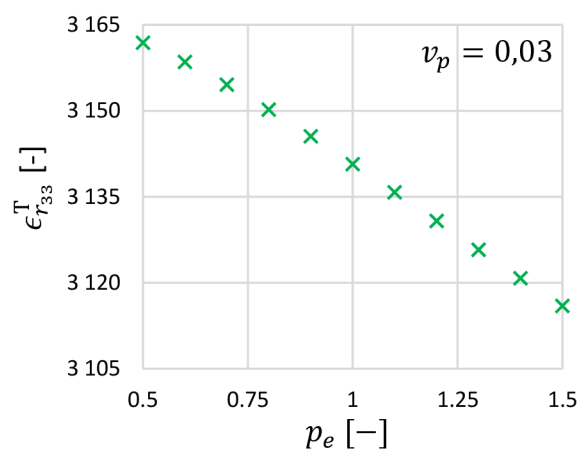
Youngův modul pružnosti ve směru osy  $z$  je dle očekávání vyšší, pokud jsou částice protažené v tomto směru. Rozdíl mezi variantou, kdy je rozměr částic ve směru osy  $z$  největší ( $p_e = 0,5$ ) a variantou, kdy je tento rozměr nejmenší ( $p_e = 1,5$ ), činí při objemovém podílu částic  $v_p = 0,50$  zhruba 7 %.

Závislost relativní permitivity kompozitu na tvaru částic je na zkoumaném intervalu rovněž monotónní – čím je rozměr částic ve směru osy  $z$  menší oproti rozměrům v kolmých směrech, tím menší je také permitivita v odpovídajícím směru. V tomto případě je při objemovém podílu částic  $v_p = 0,50$  rozdíl mezi variantami  $p_e = 0,5$  a  $p_e = 1,5$  přibližně 8 %. Vysvětlení této závislosti může spočívat v tom, že při plochém tvaru částice zabírá tato částice v řezu kolmo na osu  $z$  větší plochu příčného průřezu vzorku a ovlivňuje tak více elektrické pole směřující rovnoběžně s osou  $z$ . Jelikož mají částice výrazně nižší permitivitu než matrice, lze tedy předpokládat, že ploché částice sníží permitivitu materiálu ve směru osy  $z$  více v porovnání s kulovými částicemi či částicemi, které jsou ve směru osy  $z$  protažené.

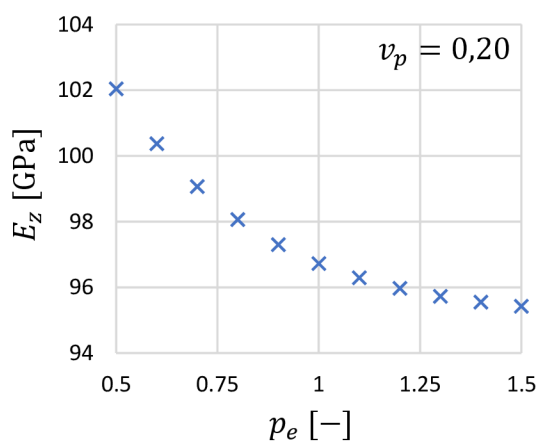
U piezoelektrických nábojových koeficientů  $d_{31}$ ,  $d_{33}$  již není příslušná závislost monotónní, nýbrž má přibližně tvar paraboly. Maximum absolutní hodnoty obou koeficientů nastává zpravidla v intervalu  $p_e \in (0,75; 1)$ , avšak na analyzovaném rozsahu parametru  $p_e$  se hodnoty  $d_{31}$ ,  $d_{33}$  mění pouze v řádu desetin  $\text{pC} \cdot \text{N}^{-1}$ . Z praktického hlediska tak na základě této analýzy má tvar částic zanedbatelný vliv na piezoelektrické chování kompozitu a v rámci stanovení efektivních hodnot  $d_{31}$ ,  $d_{33}$  není proto nutné tento parametr uvažovat.



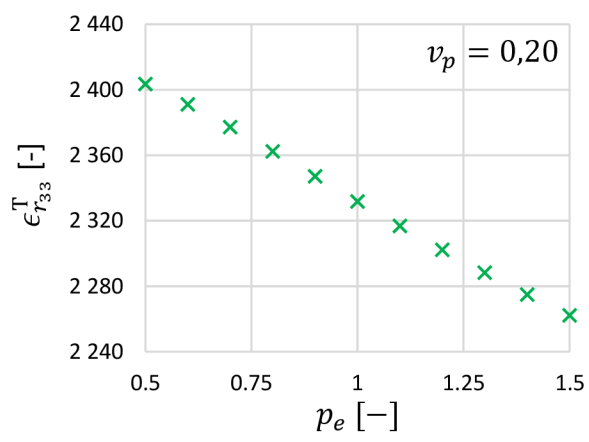
a)



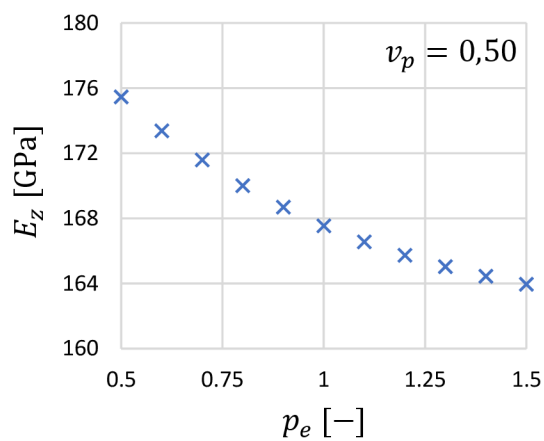
d)



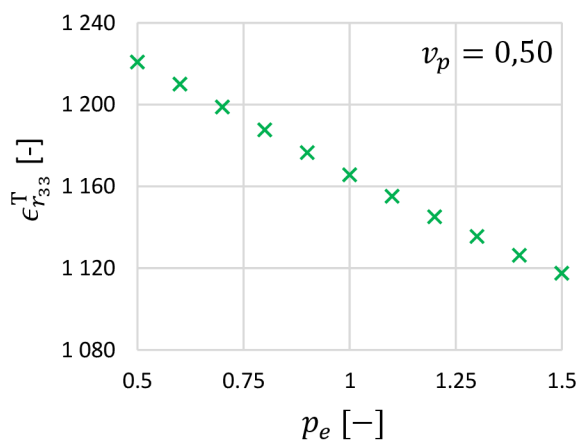
b)



e)

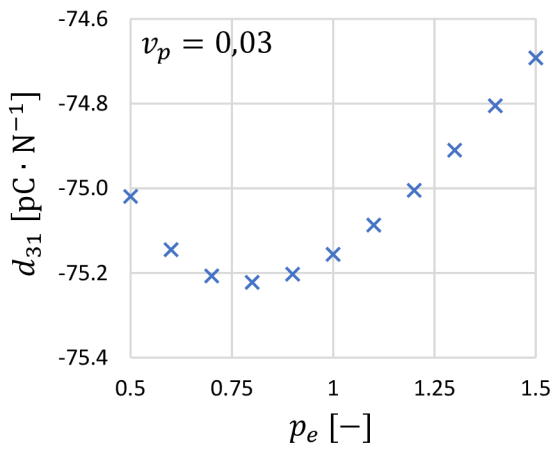


c)

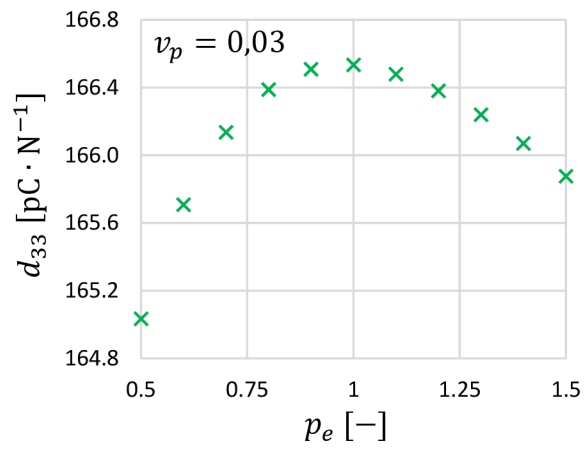


f)

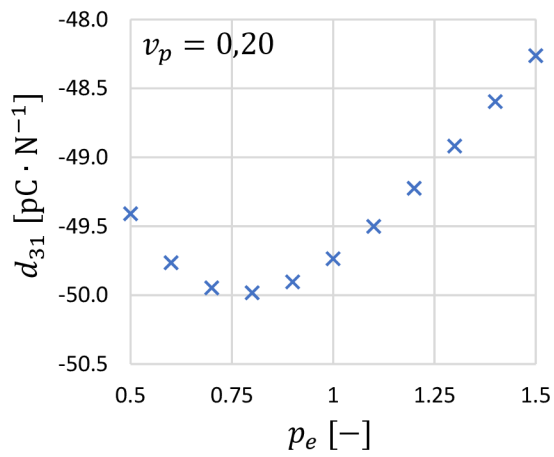
Obr. 27: Závislost efektivních vlastností na poměru poloos elipsoidu  $p_e$  a objemovém podílu částic  $v_p$ : a), b), c): Youngův modul pružnosti  $E_z$ ; d), e), f): relativní permitivita  $\epsilon_{r33}^T$ .



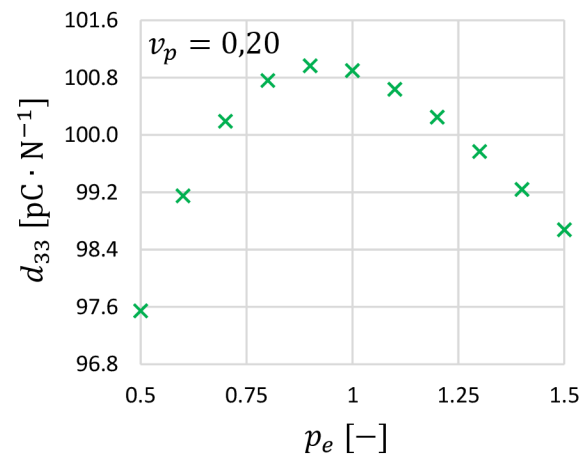
a)



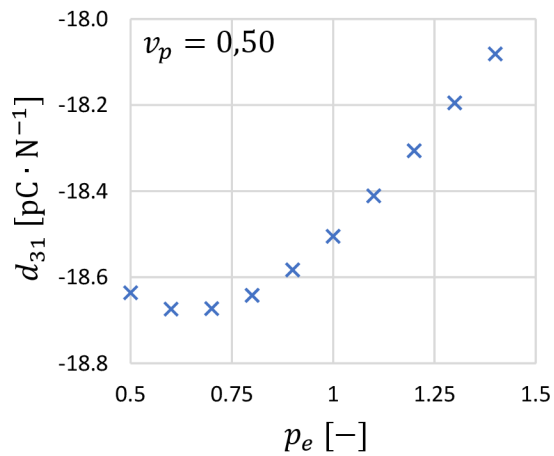
d)



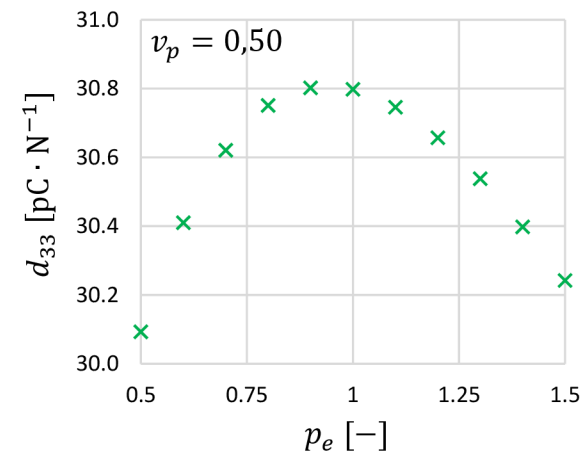
b)



e)



c)



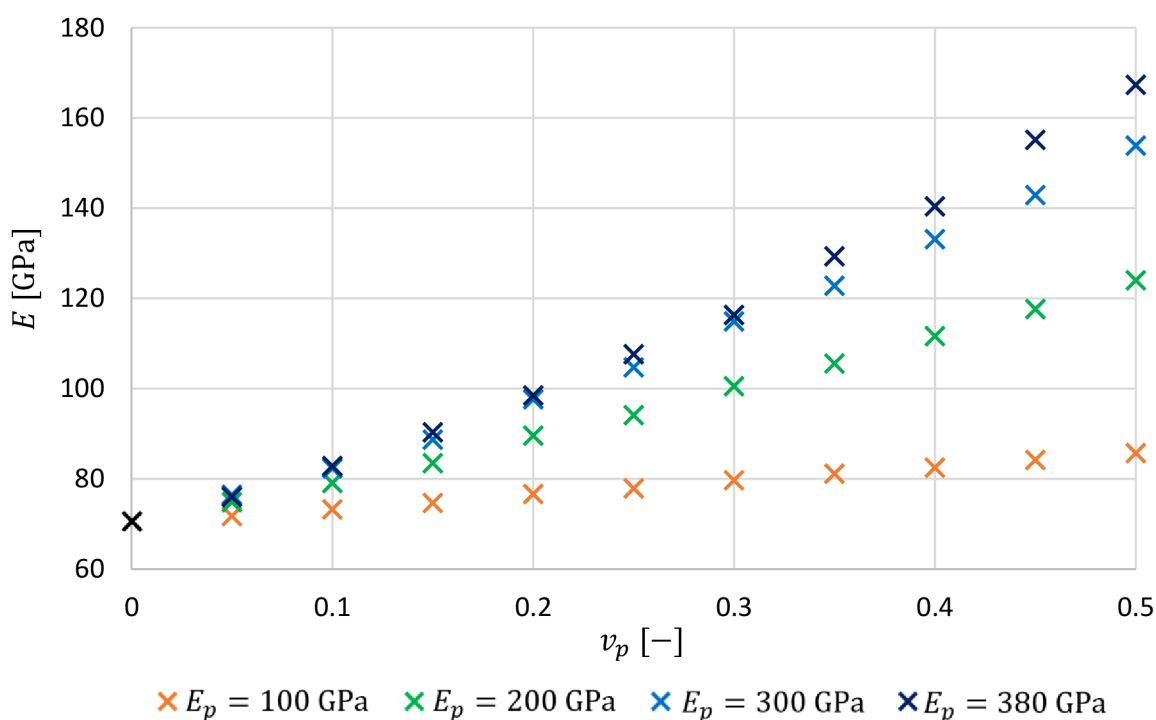
f)

Obr. 28: Závislost efektivních vlastností na poměru poloos elipsoidu  $p_e$  a objemovém podílu částic  $v_p$ : a), b), c): koeficient  $d_{31}$ ; d), e), f): koeficient  $d_{33}$ .

## 5.2 Vliv Youngova modulu pružnosti částic

Smyslem výroby částicových kompozitů je obvykle zvýšení pevnosti a tuhosti výchozího materiálu, je tedy žádoucí, aby byl Youngův modul pružnosti částic co nejvyšší. Z toho důvodu bylo analyzováno, jakým způsobem různá tuhost dielektrických částic ovlivňuje výsledné elektro-mechanické chování kompozitu. Uvažováno bylo celkem 5 různých hodnot Youngova modulu pružnosti částic  $E_p$  od 70 GPa (experimentálně určená hodnota BaTiO<sub>3</sub>) do 380 GPa (experimentálně určená hodnota Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>).

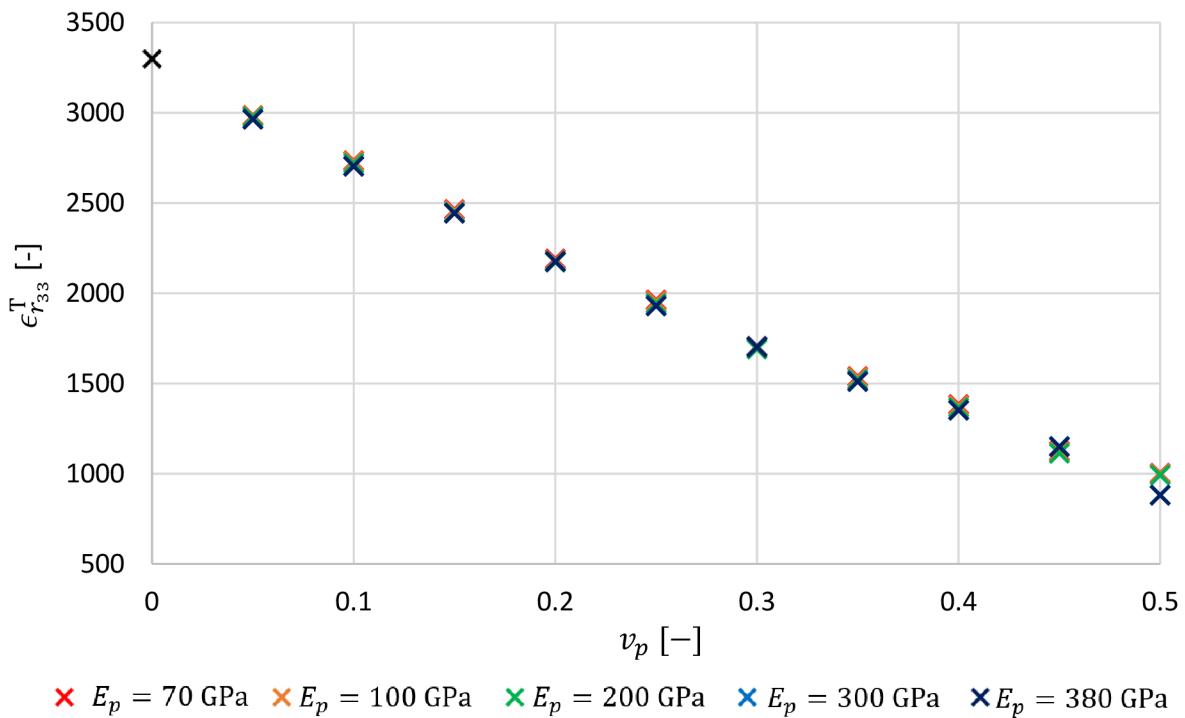
Ovlivnění Youngova modulu pružnosti kompozitu tuhostí částic je zobrazeno na obr. 29. Zcela dle očekávání dochází k nárůstu tuhosti kompozitu se zvyšujícím se objemovým podílem částic a jejich Youngovým modulem pružnosti. Z grafu je také patrné, že zvýšením tuhosti částic nelze při jejich daném objemovém podílu zvyšovat neomezeně tuhost celého kompozitu – zde při modulu pružnosti matrice  $E_m = 70$  GPa dochází ke zdatelnému zpomalení růstu tuhosti kompozitu při překročení modulu pružnosti částic  $E_p = 300$  GPa.



Obr. 29: Vliv Youngova modulu pružnosti částic na hodnotu Youngova modulu pružnosti kompozitu.

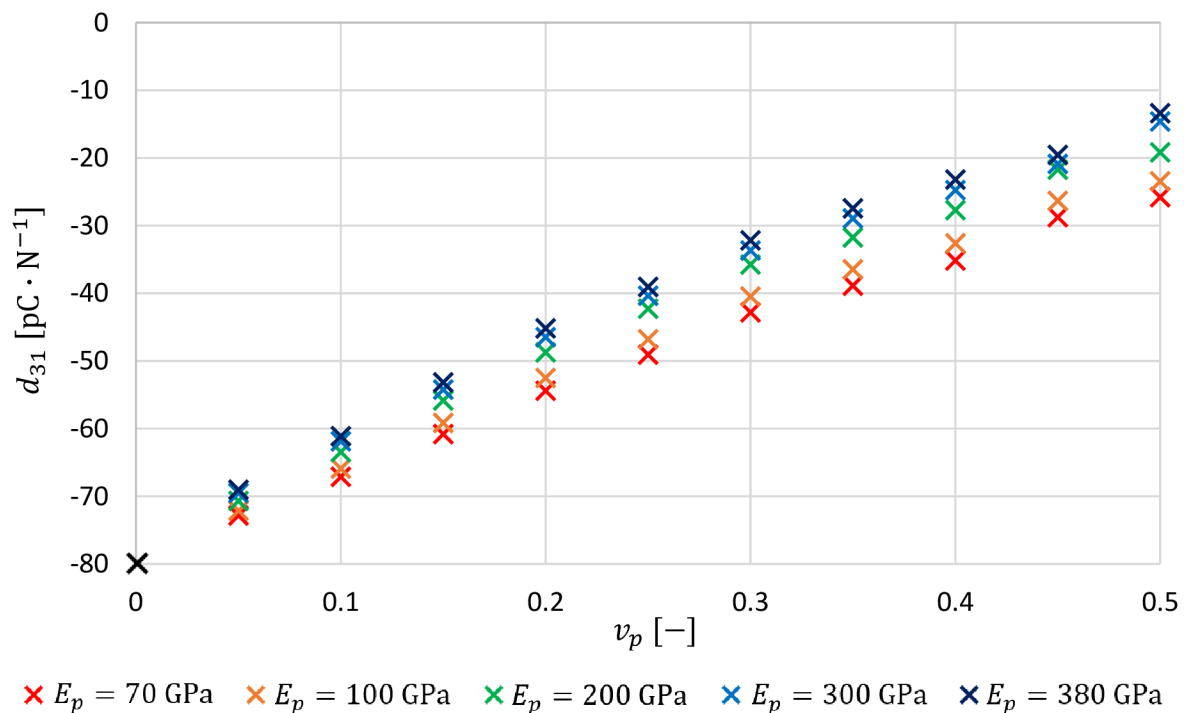
Graf na následujícím obr. 30 potom indikuje, že tuhost částic má na relativní permitivitu kompozitu pouze minimální vliv. Při detailnějším pohledu na získané závislosti si lze povšimnout, že s rostoucím modulem pružnosti částic se permitivita spíše snižuje, tento rozdíl je však z praktického hlediska zcela zanedbatelný.





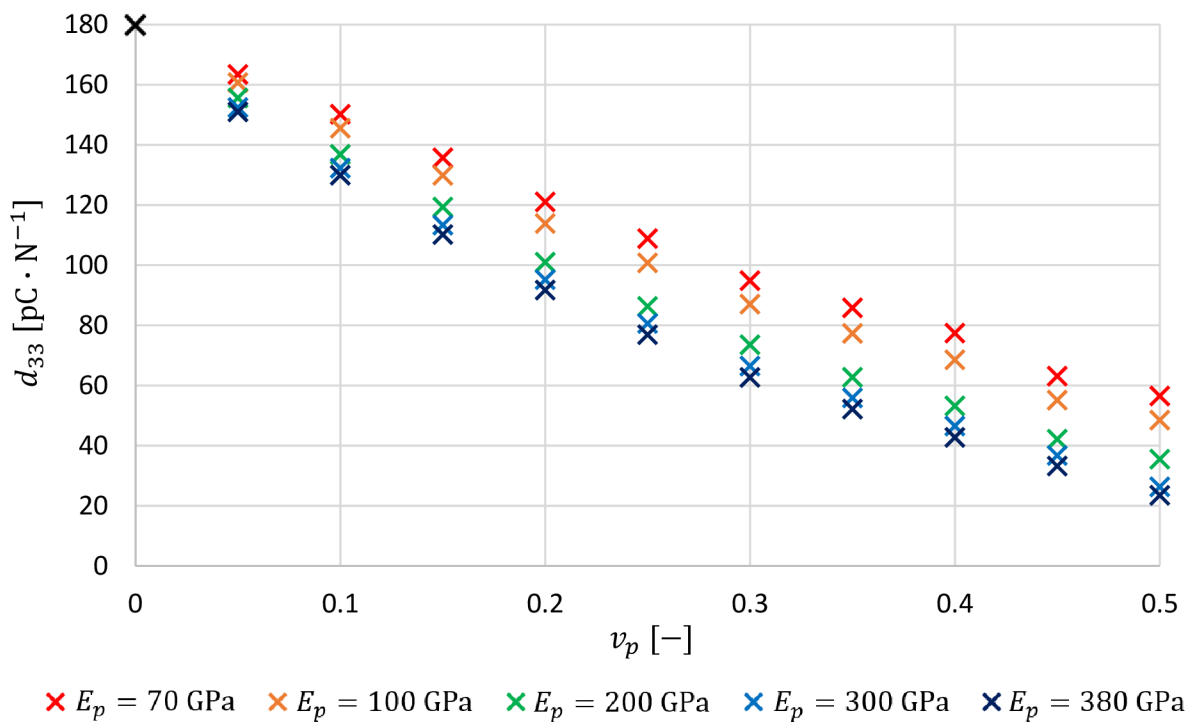
Obr. 30: Vliv Youngova modulu pružnosti částic na hodnotu relativní permitivity kompozitu.

Piezelektrické koeficienty  $d_{31}$ ,  $d_{33}$  jsou tuhostí částic ovlivněny ztelně více (obr. 31, obr. 32). Vysoký Youngův modul pružnosti částic má zejména při jejich vyšších koncentracích za následek relativně významný pokles piezelektrické aktivity. Důvodem je omezení deformace piezelektrické matrice vlivem vysoké tuhosti částic – při působení elektrického pole je přetvoření materiálu menší a tím pádem dosahují uvedené koeficienty nižších absolutních hodnot.



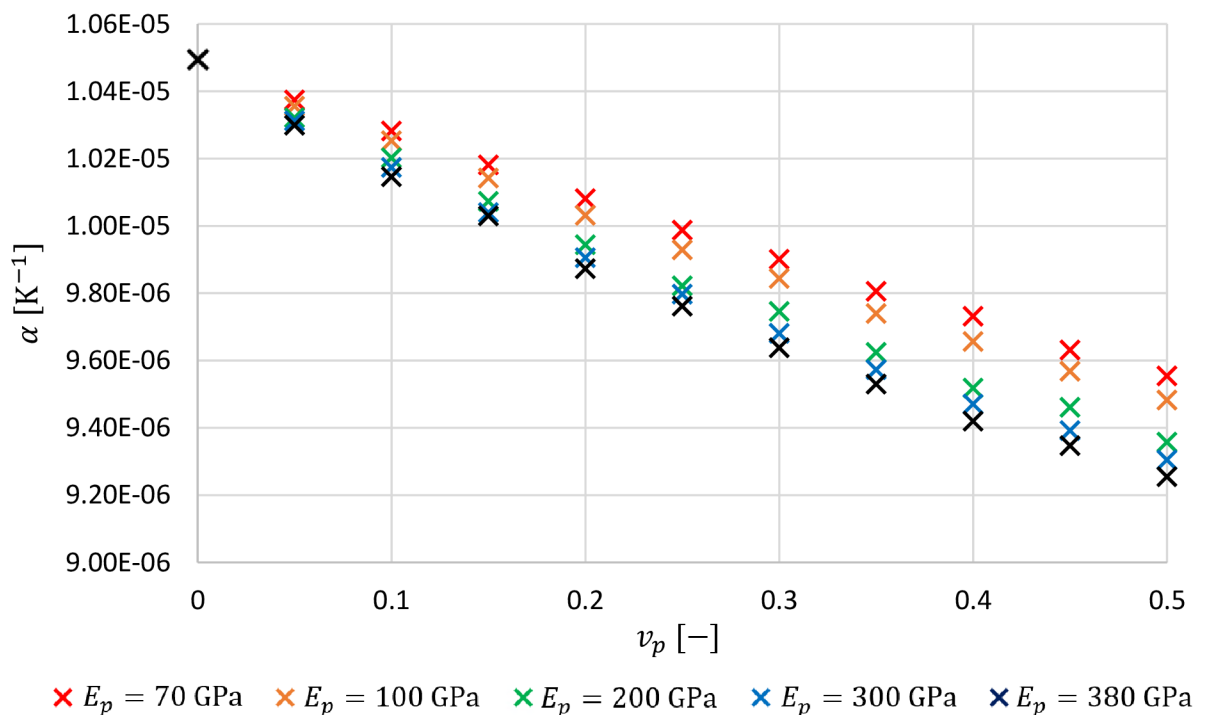
Obr. 31: Vliv Youngova modulu pružnosti částic na hodnotu koeficientu  $d_{31}$  kompozitu.





Obr. 32: Vliv Youngova modulu pružnosti částic na hodnotu koeficientu  $d_{33}$  kompozitu.

Koeficient teplotní roztažnosti (obr. 33) je tuhostí částic ovlivněn podobně jako piezoelektrické koeficienty. Podoba závislosti odpovídá očekávání – jelikož koeficient teplotní roztažnosti částic je nižší než v případě matrice, zvýšením Youngova modulu pružnosti částic je deformace kompozitu při změně teploty více omezena a koeficient teplotní roztažnosti tak dosahuje nižších hodnot.

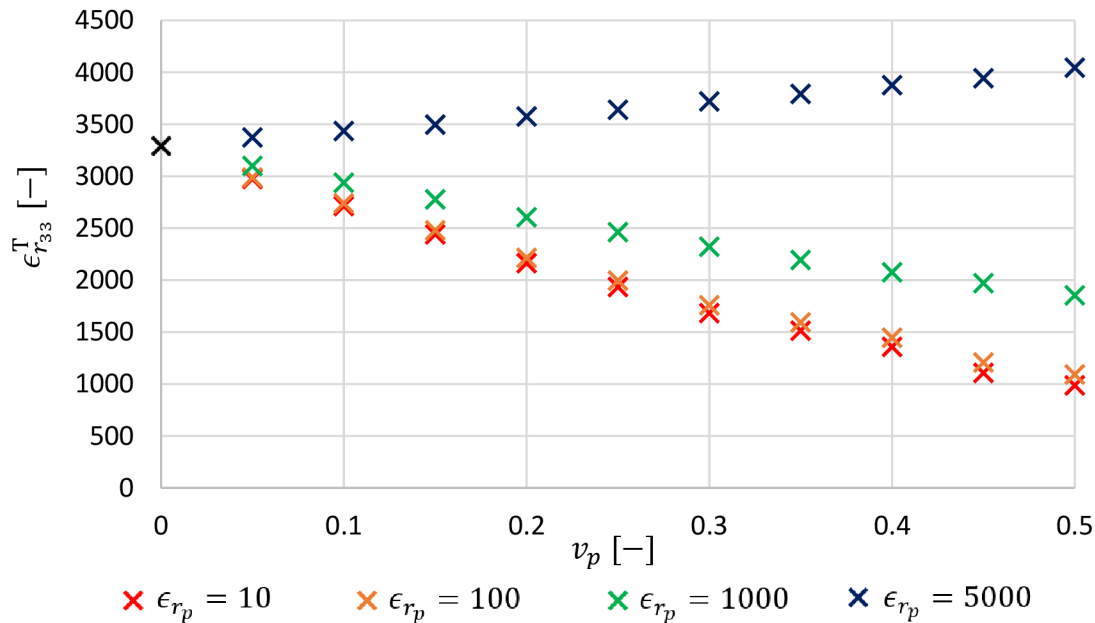


Obr. 33: Vliv Youngova modulu pružnosti částic na hodnotu koeficientu teplotní roztažnosti kompozitu.

### 5.3 Vliv permitivity částic

Běžné konstrukční keramiky ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$ ) mají zpravidla řádově nižší relativní permitivitu v porovnání s piezoelektrickými keramikami typu PZT či BTO. Je proto důležité posoudit, jak tento výrazný rozdíl v permitivitě jednotlivých komponent může ovlivnit piezoelektrické charakteristiky kompozitu. Posuzováno bylo 5 hodnot relativní permitivity částic v rozmezí od  $\epsilon_{r_p} = 10$  do  $\epsilon_{r_p} = 5000$ , přičemž relativní permitivita matrice byla ponechána na hodnotě  $\epsilon_{r_m}^T = 3300$ .

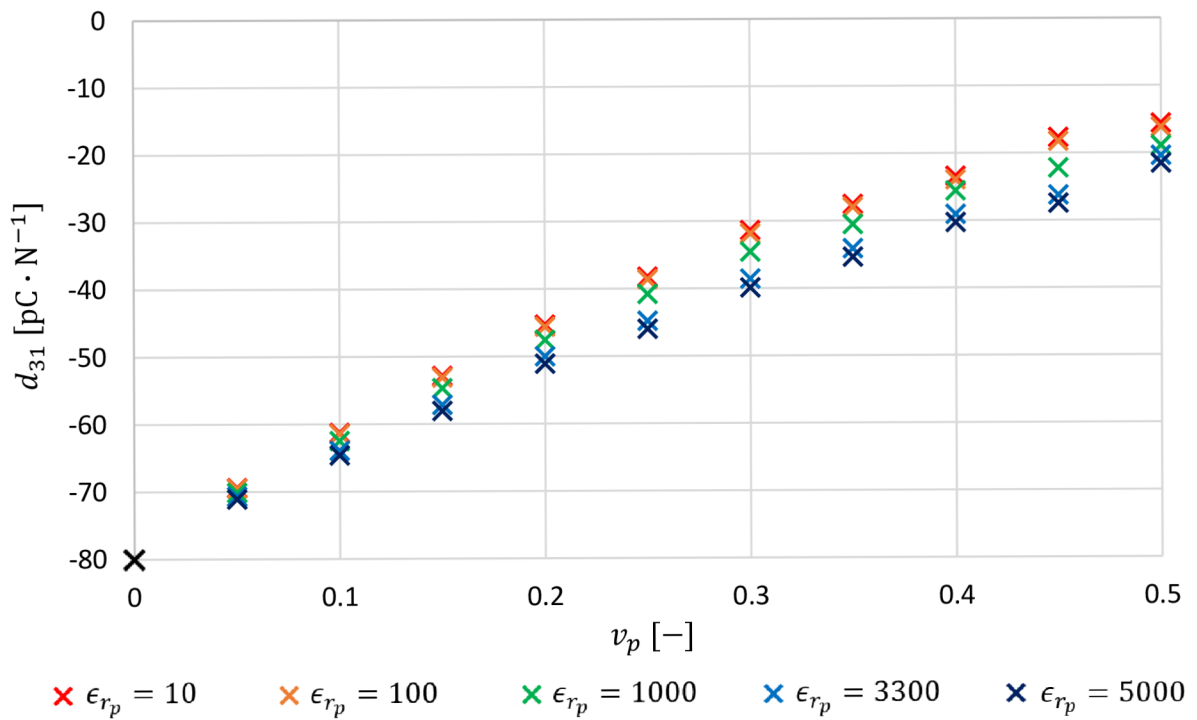
Výsledná permitivita kompozitu je velikostí permitivity částic dle očekávání výrazně ovlivněna (obr. 34). Pokud je permitivita částic nižší než je tomu v případě matrice, celková permitivita kompozitu s rostoucí koncentrací částic klesá a naopak, čímž bylo ověřeno správné chování modelu.



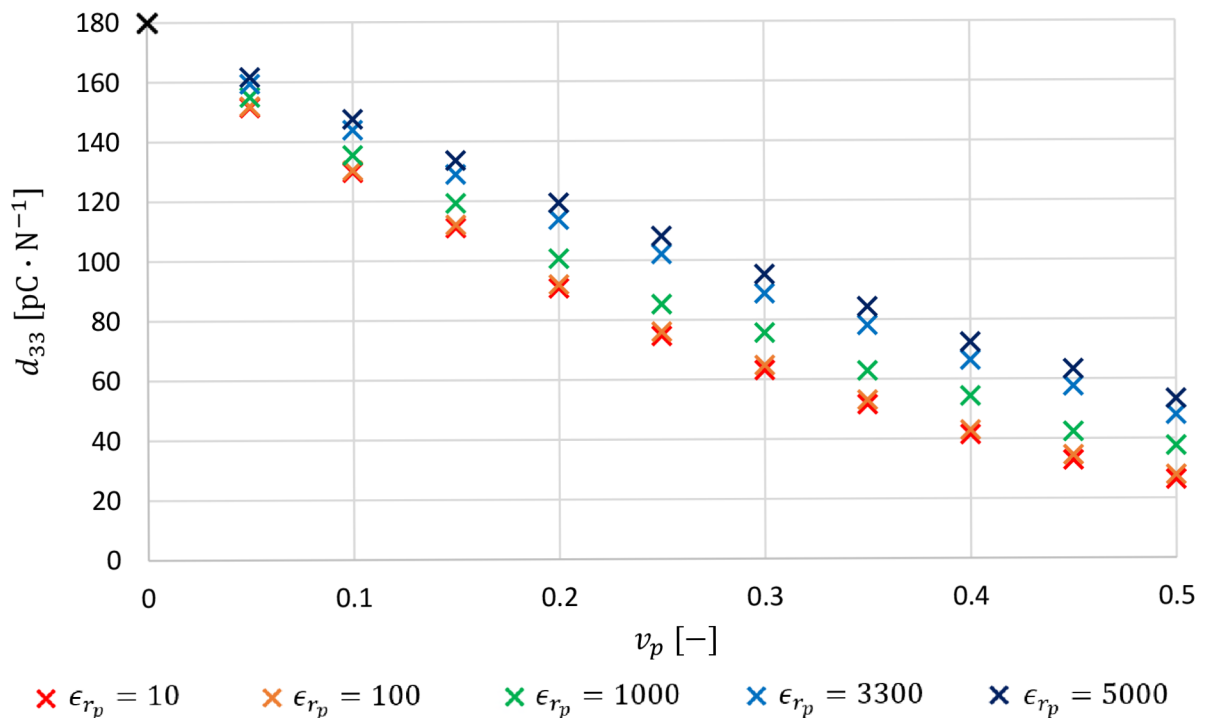
Obr. 34: Vliv relativní permitivity částic na hodnotu relativní permitivity kompozitu.

Permitivita částic má na piezoelektrické nábojové koeficienty opačný účinek, než je tomu u Youngova modulu pružnosti, tj. s její rostoucí velikostí se tyto koeficienty zvyšují. Z pohledu praktického použití lze zjištěné závislosti využít při návrhu senzorů (využívají přímý piezoelektrický jev), u kterých jsou zpravidla žádoucí co nejvyšší hodnoty piezoelektrických napěťových koeficientů  $g_{ij}$ , které jsou dle rovnice (6) přímo úměrné velikosti piezoelektrického nábojového koeficientu  $d_{ij}$  v příslušném směru a nepřímo úměrné velikosti permitivity. Částice by dle zjištěných závislostí měly mít při požadavku maximální hodnoty koeficientu  $g_{ij}$  kompozitu obecně minimální Youngův modul pružnosti (pro co nejvyšší koeficient  $d_{ij}$  kompozitu), permitivita částic má však dvojitý efekt. Pokud je její hodnota nízká, sníží se koeficient  $d_{ij}$  kompozitu (negativní vliv na  $g_{ij}$ ), dojde však také k poklesu permitivity celého kompozitu (pozitivní vliv na  $g_{ij}$ ). Bylo proto otestováno, jakým způsobem ovlivňuje permitivita částic hodnotu koeficientu  $g_{33}$  zde analyzovaného kompozitu  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  s materiálovými vlastnostmi dle tab. 4. Vypočteny byly hodnoty  $g_{33}$  kompozitu s objemovým podílem částic  $v_p = 0,05$  a  $v_p = 0,10$  v závislosti na velikosti permitivity částic (obr. 37). Z uvedeného grafu vyplývá, že v tomto případě přidání částic  $\text{Al}_2\text{O}_3$  snižuje hodnotu  $g_{33}$  v porovnání s čistým  $\text{BaTiO}_3$  – pokles koeficientu  $d_{33}$

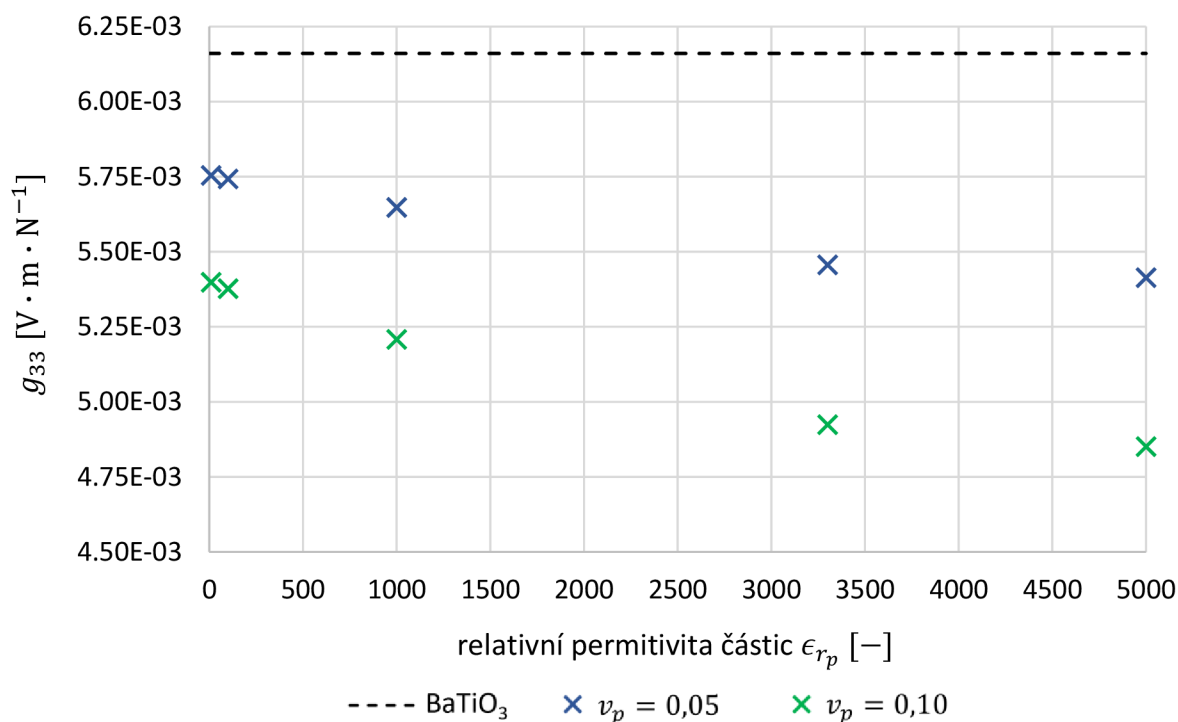
vlivem přítomnosti dielektrických částic je totiž větší než pokles permitivity. Zároveň je patrné, že zvyšování permitivity částic koeficient  $g_{33}$  dále snižuje. Uvedené závěry však nemusí platit obecně a je nutné stanovit příslušné závislosti pro konkrétní druh kompozitu a materiálové vlastnosti jeho komponent.



Obr. 35: Vliv relativní permitivity částic na hodnotu koeficientu  $d_{31}$  kompozitu.



Obr. 36: Vliv relativní permitivity částic na hodnotu koeficientu  $d_{33}$  kompozitu.

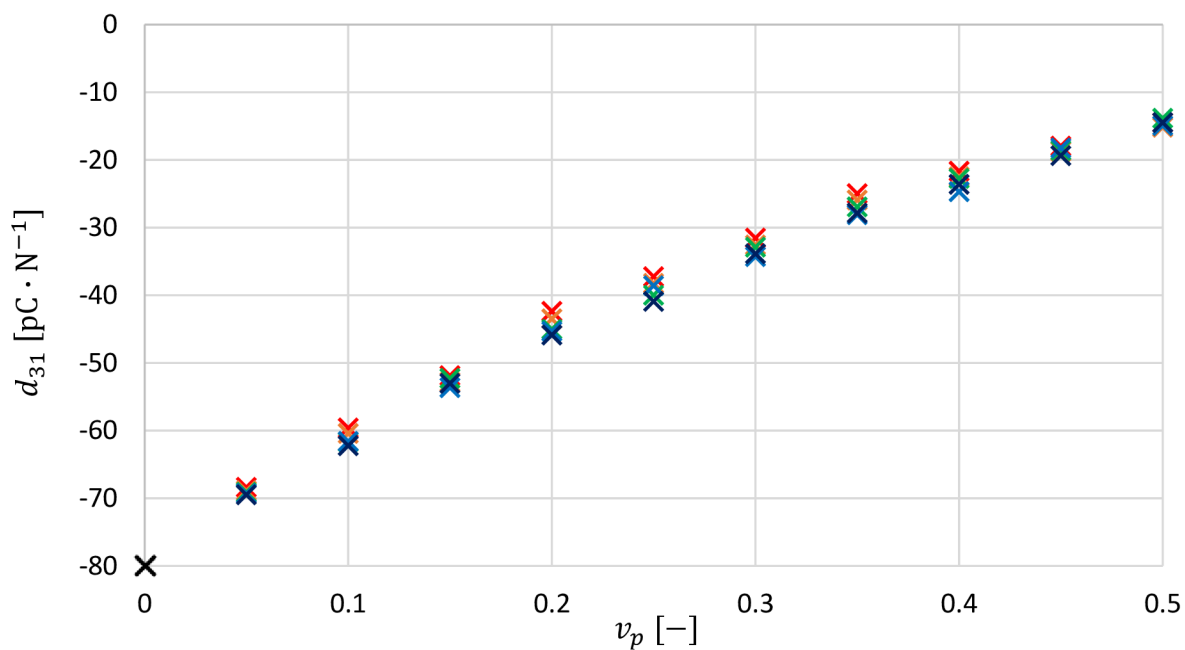


Obr. 37: Závislost piezoelektrického napětíového koeficientu  $g_{33}$  na permitivitě částic a jejich objemovém podílu.

#### 5.4 Vliv ortotropie permitivity matrice

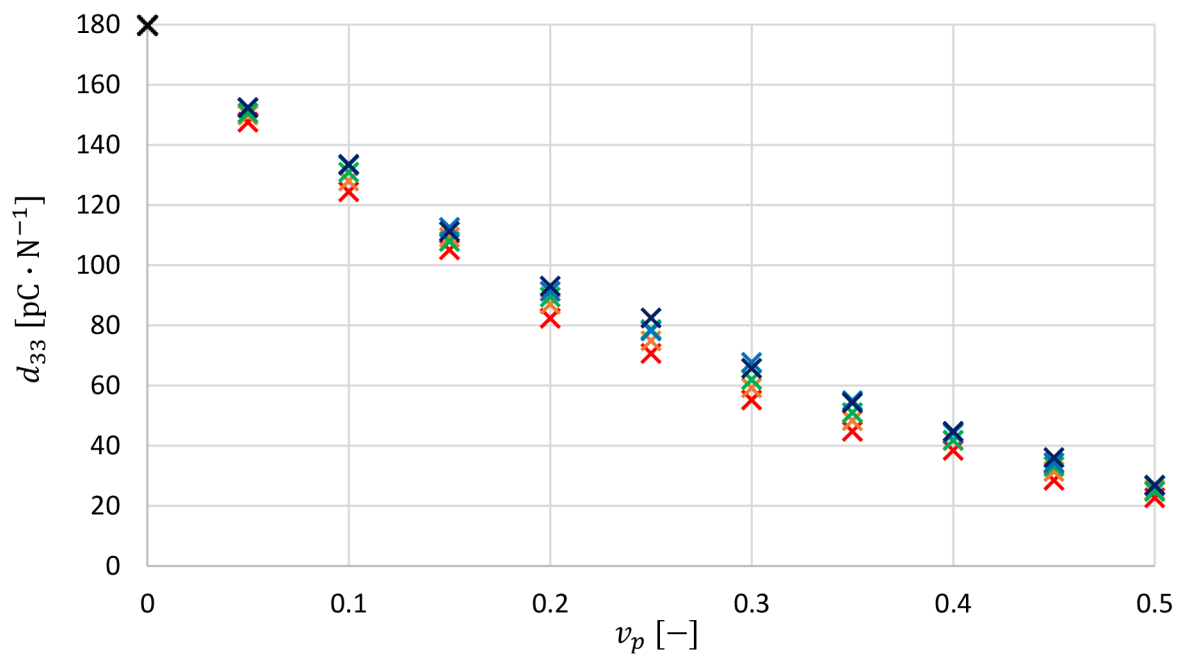
V článku, který publikoval Marutake [52], byly naměřeny různé hodnoty relativní permitivity  $\text{BaTiO}_3$  ve směru polarizace a kolmo na tento směr, přičemž nebyla zjištěna konkrétní závislost mezi hodnotami v jednotlivých směrech. V modelu byla proto ve směru polarizace ponechána relativní permitivita matrice  $\epsilon_{r_{m,33}}^T = 3300$ , v kolmých směrech byly postupně zadány hodnoty relativní permitivity v intervalu  $(0,5 \div 1,5)\epsilon_{r_{m,33}}^T$ , tedy od 1650 do 4950.

Získané výsledky hodnot koeficientů  $d_{31}$ ,  $d_{33}$  jsou na obr. 38 a obr. 39. I zde bylo pozorováno zvýšení uvedených koeficientů s nárůstem permitivity kolmo na směr polarizace, nicméně v praxi není tento rozdíl příliš významný.



$\times \epsilon_{r_{m,11}}^T = 1650$ 
 $\times \epsilon_{r_{m,11}}^T = 2475$ 
 $\times \epsilon_{r_{m,11}}^T = 3300$ 
 $\times \epsilon_{r_{m,11}}^T = 4125$ 
 $\times \epsilon_{r_{m,11}}^T = 4950$

Obr. 38: Vliv relativní permitivity matrice kolmo na směr polarizace na hodnotu koeficientu  $d_{31}$  kompozitu.

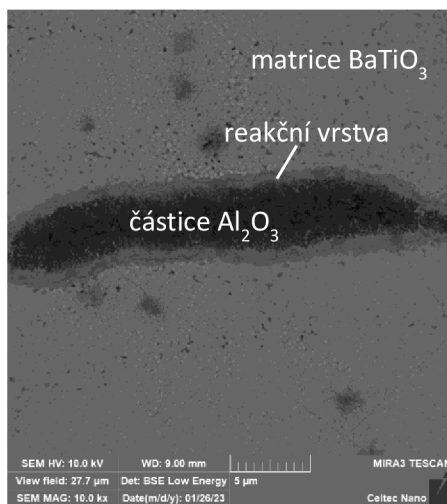


$\times \epsilon_{r_{m,11}}^T = 1650$ 
 $\times \epsilon_{r_{m,11}}^T = 2475$ 
 $\times \epsilon_{r_{m,11}}^T = 3300$ 
 $\times \epsilon_{r_{m,11}}^T = 4125$ 
 $\times \epsilon_{r_{m,11}}^T = 4950$

Obr. 39: Vliv relativní permitivity matrice kolmo na směr polarizace na hodnotu koeficientu  $d_{33}$  kompozitu.

## 5.5 Vliv přítomnosti reakční vrstvy mezi částicemi a maticí

Ve vzorcích kompozitu  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  vyrobených v rámci zmíněného projektu GAČR byla zjištěna vrstva na rozhraní částic a matrice vzniklá reakcí  $\text{BaTiO}_3$  a  $\text{Al}_2\text{O}_3$  během sinterování (obr. 40). Byly proto provedeny simulace za účelem zjistit, jaký vliv může tato vrstva mít na efektivní piezoelektrické vlastnosti kompozitu.



Obr. 40: Snímek kompozitu  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  pořízený elektronovým mikroskopem [53].

Kompozit obsahující reakční vrstvu na rozhraní částic a matrice byl modelován voxelovým modelem s 20 částicemi. Bylo posuzováno, jakým způsobem dojde k ovlivnění efektivních vlastností kompozitu v závislosti na objemovém podílu částic, který se přemění na reakční vrstvu. Konkrétně byly analyzovány případy, kdy zreaguje 0, 25, 50, 75 a 100 % objemu částic přítomných v kompozitu. Pro určení velikosti reakční fáze v jednotlivých případech byla využita data získaná z měření. V rámci řešeného projektu na CEITEC byly připraveny částicové kompozity  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  obsahující před sinterováním 3, 5, resp. 10 % obj.  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Z rentgenové difrakční analýzy (XRD) po sinterování byly zjištěny objemové podíly jednotlivých složek uvedené v tab. 12.

Tab. 12: Objemové podíly jednotlivých složek kompozitu zjištěné difrakční analýzou [53].

Č. vzorku	Složka	Materiál	Obj. podíl před sintrováním [%]	Obj. podíl po sintrování [%]	
1	matrice	BaTiO <sub>3</sub>	97	92,9	
	částice	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3	0	
	reakční vrstva	BaAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	0	5,1	7,1
Ba <sub>4</sub> Al <sub>2</sub> Ti <sub>10</sub> O <sub>27</sub>		2,0			
2	matrice	BaTiO <sub>3</sub>	95	89,2	
	částice	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5	0	
	reakční vrstva	BaAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	0	5,8	10,8
Ba <sub>4</sub> Al <sub>2</sub> Ti <sub>10</sub> O <sub>27</sub>		5,0			
3	matrice	BaTiO <sub>3</sub>	90	77,4	
	částice	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10	0	
	reakční vrstva	BaAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	0	9,9	22,6
Ba <sub>4</sub> Al <sub>2</sub> Ti <sub>10</sub> O <sub>27</sub>		12,7			

Z výše uvedené tabulky je možné určit poměr, jakým se na vzniku reakční vrstvy podílejí matrice (BaTiO<sub>3</sub>) a částice (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Tento poměr je vyjádřen vztahem

$$\theta_i = \frac{V_B}{V_A} \quad (49)$$

kde  $V_B$ ,  $V_A$  označují objem BaTiO<sub>3</sub>, resp. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> přeměněný na novou fázi (BaAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> + Ba<sub>4</sub>Al<sub>2</sub>Ti<sub>10</sub>O<sub>27</sub>), přičemž index  $i$  udává číslo vzorku. Po dosažení naměřených hodnot vychází  $\theta_1 = 1,37$ ,  $\theta_2 = 1,16$ ,  $\theta_3 = 1,26$ . Zprůměrováním těchto dílčích výsledků je získána hodnota  $\theta = 1,25$  použitá v dalších výpočtech. Jinak řečeno, dle měření se na vzniku nové fáze podílí přibližně z 56 % BaTiO<sub>3</sub> a ze 44 % Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. V následujícím odstavci je popsáno, jakým způsobem byla tato skutečnost zohledněna při tvorbě modelu.

V modelu bylo nejprve náhodně rozmístěno 20 částic Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> o průměru  $d_{p_0}$  vypočteném dle vztahu (37). Následně byl tento průměr iteračně upraven na hodnotu  $d_{p_f}$  tak, aby bylo dosaženo odpovídajícího objemového podílu částic (viz kap 4.2.2). Se znalostí poměru  $\theta$ , jakým se na vzniku reakční vrstvy podílejí jednotlivé složky kompozitu, byl poté určen vnitřní a vnější průměr reakční vrstvy  $d_{r_{in,0}}$ , resp.  $d_{r_{out,0}}$  dle rovnic

$$d_{r_{in,0}} = 2 \cdot \sqrt[3]{(1 - p_r) \cdot \left(\frac{d_{p_f}}{2}\right)^3} \quad (50)$$

$$d_{r_{out,0}} = \sqrt[3]{\theta \cdot (d_{p_f}^3 - d_{r_{in,0}}^3) + d_{p_f}^3} \quad (51)$$

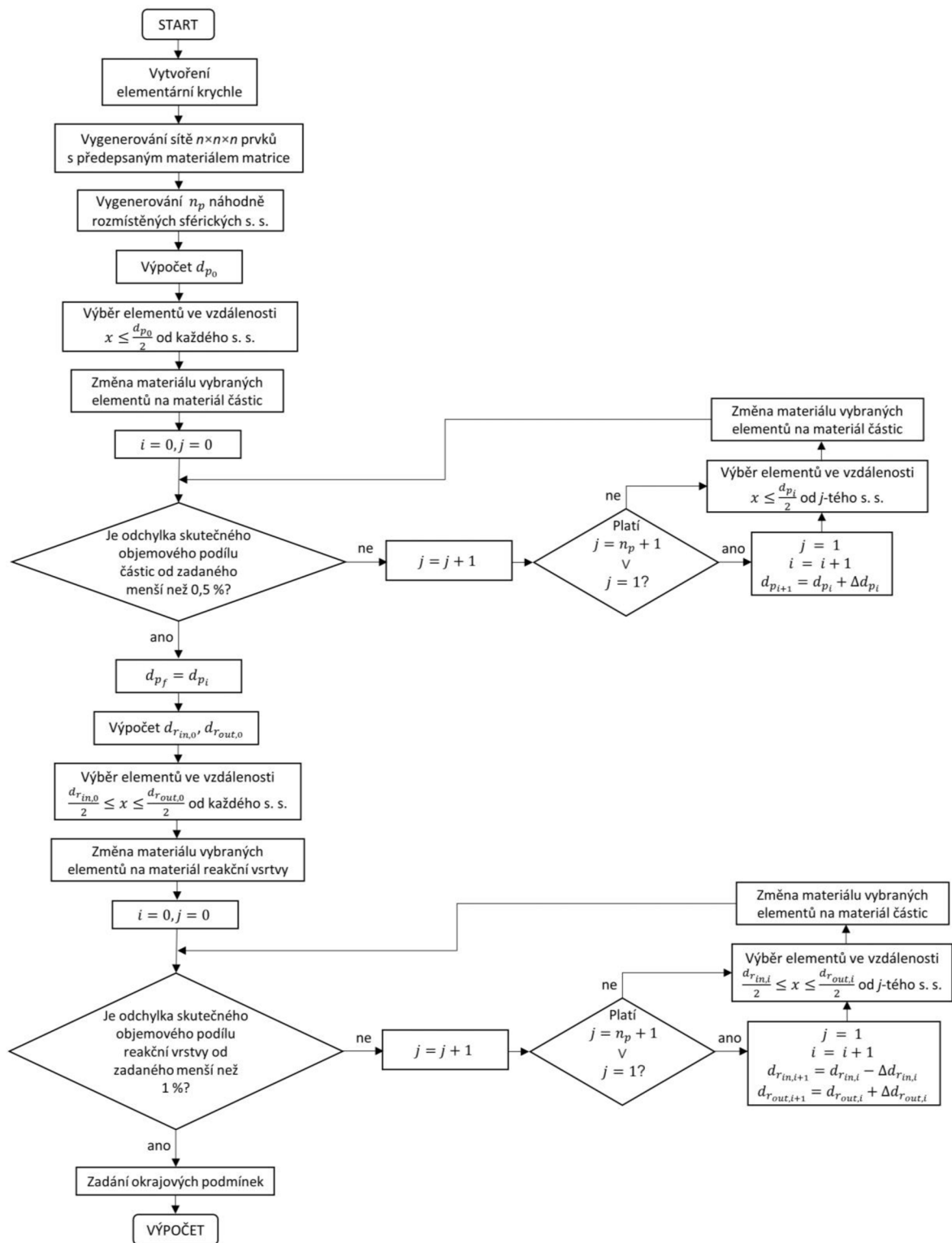
kde  $p_r$  označuje zvolenou část objemu částic, která se přemění na reakční vrstvu (0, 25, 50, 75 či 100 %). Dále pak byly v jednotlivých lokálních sférických souřadných systémech ležících

vždy uprostřed částice vybrány prvky s radiální souřadnicí těžiště v rozmezí od  $d_{r_{in,0}}/2$  do  $d_{r_{out,0}}/2$ . Posledním krokem byla opět kontrola skutečného objemového podílu reakční vrstvy v rámci kompozitu, přičemž teoretická hodnota tohoto podílu je dána vztahem

$$v_r = v_p \cdot p_r \cdot (1 + \theta) \quad (52)$$

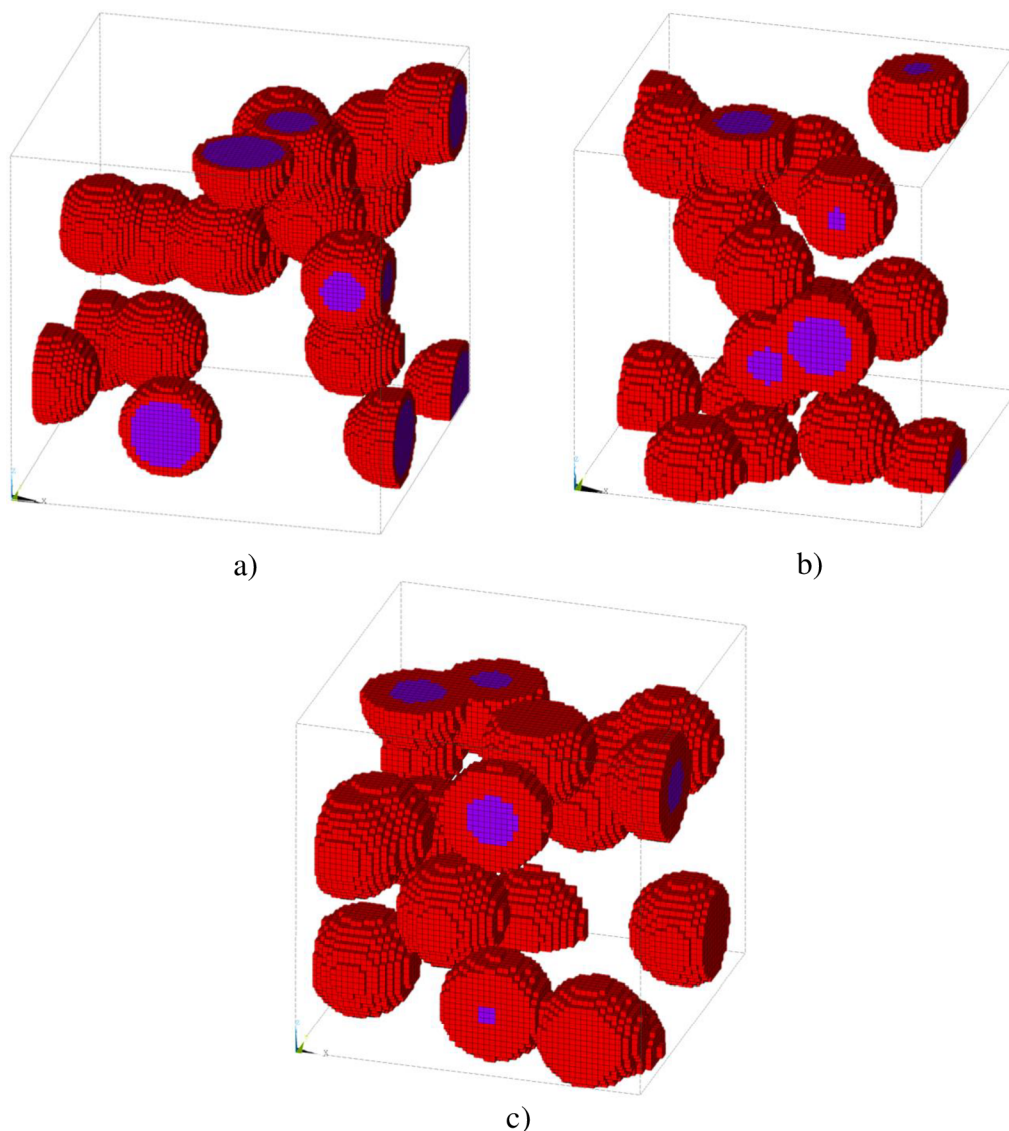
Hodnoty průměrů  $d_{r_{in,i}}$ ,  $d_{r_{out,i}}$  byly i v tomto případě iteračně měněny, dokud nebyla odchylka skutečného objemového podílu reakční vrstvy od teoreticky stanovené hodnoty menší než 1 %. Celý algoritmus tvorby modelu je znázorněn na obr. 41.





Obr. 41: Algoritmus tvorby voxelového modelu obsahujícího reakční vrstvu.

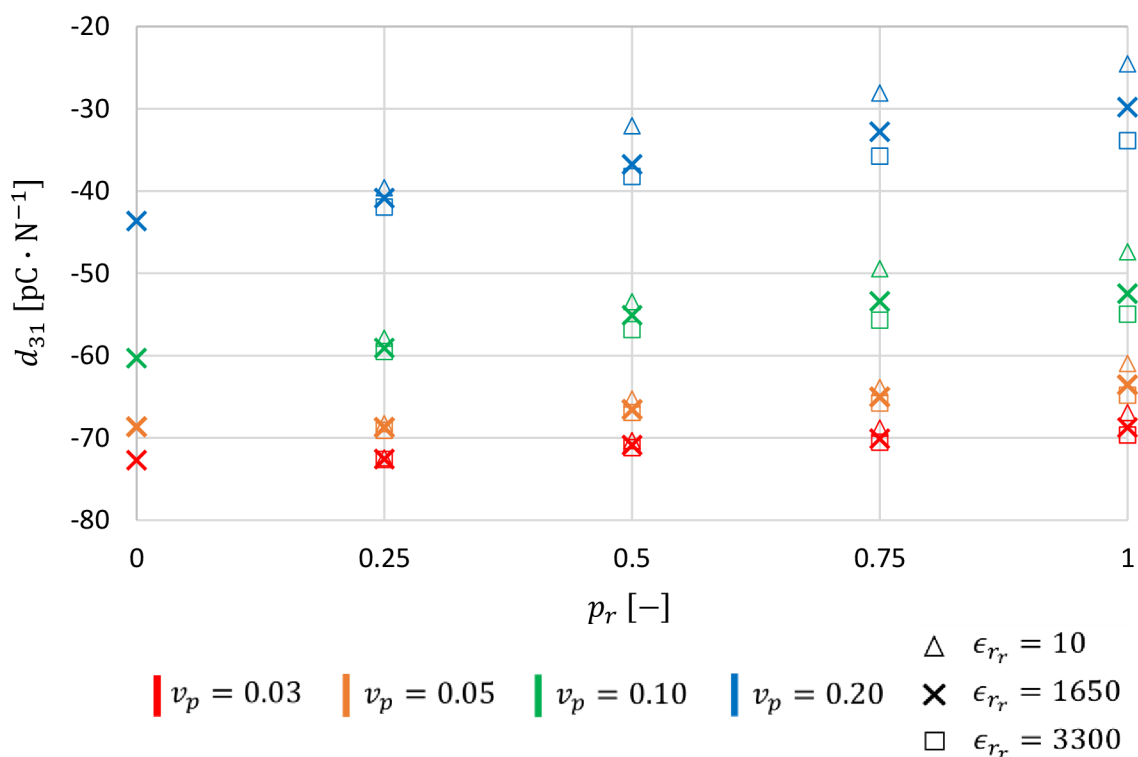
S přítomností reakční vrstvy souvisí také nutnost zjemnění sítě konečných prvků. Podmínkou bylo, že tato vrstva musí být po tloušťce tvořena nejméně dvěma prvky. Pro případ minimálního uvažovaného objemového podílu částic (zde  $v_p = 0,03$ ) a zároveň minimální nenulové části jejich objemu přeměněné na reakční vrstvu ( $p_r = 0,25$ ) tak bylo nutné použít pro výpočty sítě s  $80 \times 80 \times 80$  prvky. Obr. 42 znázorňuje síť konečných prvků při objemovém podílu částic  $v_p = 0,10$  a různé velikosti reakční vrstvy.



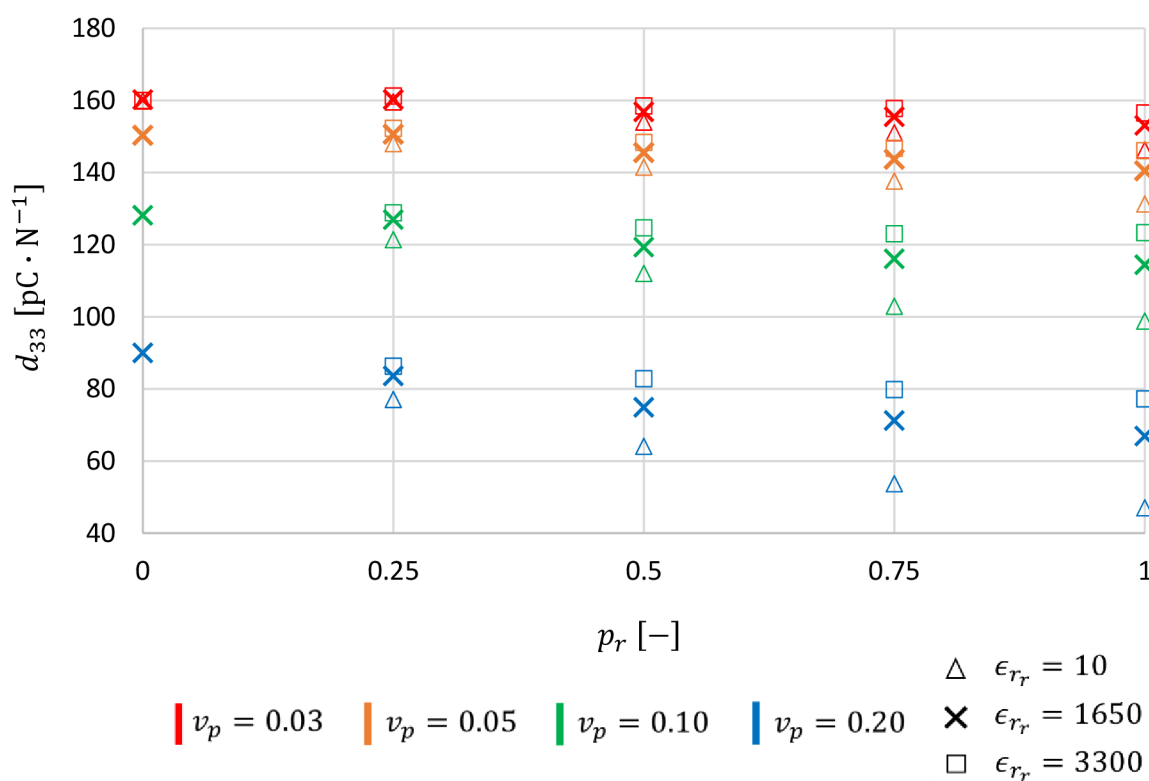
Obr. 42: Částice a reakční vrstva při objemovém podílu  $v_p = 0,10$ : a)  $p_r = 0,25$ ;  
 b)  $p_r = 0,50$ ; c)  $p_r = 0,75$ .

Reakční vrstvě byl v modelu předepsán Youngův modul pružnosti  $E_r = 179$  GPa, což odpovídá hodnotě naměřené na  $\text{Ba}_4\text{Al}_2\text{Ti}_{10}\text{O}_{27}$  dynamickou metodou na ÚFM AVČR Brno v rámci řešeného projektu. Vzhledem k neznámé relativní permitivitě reakční vrstvy byly uvažovány 3 různé hodnoty:  $\epsilon_{r_r} = 10$  (relativní permitivita  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ),  $\epsilon_{r_r} = 3300$  (rel. permitivita  $\text{BaTiO}_3$ ),  $\epsilon_{r_r} = 1650$  (průměr rel. permitivit  $\text{Al}_2\text{O}_3$  a  $\text{BaTiO}_3$ ). Materiálové vlastnosti částic a matrice byly zvoleny dle tab. 4. Každá konfigurace kompozitu byla opět simulována 10krát vždy s různým rozložením částic a požadovaná hodnota dané výstupní veličiny stanovena jako průměr jednotlivých výsledků.

Výpočty byl určen vliv reakční vrstvy na piezoelektrické nábojové koeficienty  $d_{31}$ ,  $d_{33}$ , jelikož stanovení této závislosti bylo zásadní v rámci prováděného výzkumu. Výsledné hodnoty těchto veličin jsou vykresleny na obr. 43 a obr. 44. Vodorovná osa udává objemový podíl částic přeměněný na reakční vrstvu  $p_r$  ( $p_r = 0$  tedy znamená absenci reakční vrstvy, při  $p_r = 1$  je přeměněn veškerý objem částic na novou fázi), jednotlivé barvy pak znázorňují různé výchozí objemové podíly částic  $v_p$  před uskutečněním reakce.



Obr. 43: Vliv objemového podílu částic přeměňného na reakční vrstvu  $p_r$  na hodnotu koeficientu  $d_{31}$  při různém výchozím objemovém podílu částic  $v_p$  a relativní permitivitě reakční vrstvy  $\epsilon_{r_r}$ .



Obr. 44: Vliv objemového podílu částic přeměňného na reakční vrstvu  $p_r$  na hodnotu koeficientu  $d_{33}$  při různém výchozím objemovém podílu částic  $v_p$  a relativní permitivitě reakční vrstvy  $\epsilon_{r_r}$ .

Uvedené výsledky potvrzují, že přítomnost reakční vrstvy má na piezoelektrické vlastnosti kompozitu negativní efekt, jelikož snižuje objemový podíl piezoelektricky aktivního BaTiO<sub>3</sub>. Z praktického hlediska se však na základě provedených výpočtů nejvíe vliv této reakční vrstvy jako zásadní. Objemový podíl částic v kompozitech BaTiO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> se zpravidla pohybuje v jednotkách procent, zde je tedy možné zaměřit se na kompozit, kde  $v_p = 0,05$ . Pokud v tomto případě zreaguje celý objem částic, sniží se koeficient  $d_{31}$  oproti odpovídající variantě bez přítomnosti reakční vrstvy přibližně o 5%, koeficient  $d_{33}$  o 4 %. Za předpokladu, že Youngův modul pružnosti reakční vrstvy je nižší v porovnání s Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> a permitivita naopak vyšší, jedná se v obou případech o jevy s pozitivním dopadem na piezoelektrické vlastnosti kompozitu viz kap. 5.2 a 5.3. Jediným negativním dopadem přítomnosti reakční vrstvy na piezoelektrickou aktivitu kompozitu je tak dle provedeného výpočtového modelování pouze zmíněné zmenšení objemového podílu BaTiO<sub>3</sub>.

## 5.6 Shrnutí získaných poznatků

Z citlivostních analýz vypočtených v kap. 5.1-5.5 lze učinit několik závěrů uplatnitelných při výrobě částicových feroelektrických/dielektrických kompozitů.

Pokud mají částice tvar zploštělého elipsoidu s kratším rozměrem ve směru polarizace v důsledku lisování vzorků, lze očekávat mírné snížení tuhosti a permitivity výsledného kompozitu v tomto směru, piezoelektrické nábojové koeficienty jsou ovlivněny zcela zanedbatelně.

Piezoelektrická aktivita kompozitu klesá s rostoucí tuhostí částic, s jejich rostoucí permitivitou se naopak zvyšuje. Permitivita matrice ve směru kolmo na polarizaci má na piezoelektrické chování minimální vliv a není nutné ji pro tento účel vyhodnocovat.

Přítomnost reakční vrstvy snižuje piezoelektrické nábojové koeficienty kompozitu, při malých objemových podílech (cca do 10 %) však není její vliv příliš významný.

Z výše uvedených poznatků vyplývá, že pro dosažení maximální piezoelektrické aktivity feroelektrického/dielektrického kompozitu je při daném objemovém podílu částic žádoucí, aby jejich Youngův modul pružnosti byl co nejmenší, permitivita naopak co největší a během sintrování byl potlačen vznik reakční vrstvy na rozhraní částic a matrice.

## 6 KONFRONTACE S EXPERIMENTY

Jedním z hlavních cílů diplomové práce bylo objasnit vliv přidání dielektrických částic  $\text{Al}_2\text{O}_3$  do feroelektrické keramiky  $\text{BaTiO}_3$  na výsledné piezoelektrické vlastnosti. V rámci řešení projektu GAČR byly vyrobeny vzorky kompozitu  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  s různým objemovým podílem  $\text{Al}_2\text{O}_3$  a změřen jejich piezoelektrický nábojový koeficient  $d_{33}$  (CEITEC, výzkumná skupina Pokročilých multifunkčních keramik). Měření piezoelektrických vlastností proběhlo na vzorcích tvaru disku o tloušťce necelých 2 mm a průměru přibližně 24 mm obsahujících před sintrováním 0, 3, 5, resp. 10 % obj.  $\text{Al}_2\text{O}_3$  viz obr. 45. Piezoelektrický nábojový koeficient  $d_{33}$  byl vyhodnocen na přístroji firmy aixACCT Systems nepřímou metodou, která je součástí know-how této firmy a zjištěný koeficient  $d_{33}$  by měl odpovídat hodnotě stanovené přímou metodou Berlincourt [54].



Obr. 45: Vzorky pro měření piezoelektrických vlastností; A:  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , B:  $\text{BaTiO}_3$  [53].

Dle rentgenové difrakční analýzy (XRD) provedené po sintrování došlo u všech vzorků k přeměně veškerého objemového podílu  $\text{Al}_2\text{O}_3$  na reakční fázi viz tab. 12 v kap. 5.5. Tab. 13 udává objemové poměry jednotlivých složek po sintrování v závislosti na označení měřených vzorků.

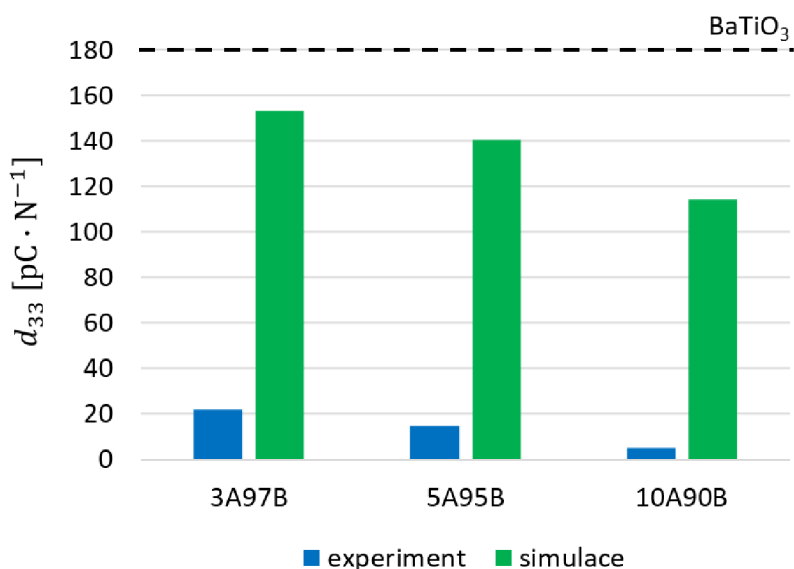
Tab. 13: Naměřené objemové podíly složek kompozitu po sintrování.

označení vzorku	objemový podíl dané složky [%]		
	$\text{BaTiO}_3$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	reakční fáze
B	100,0	0,0	0,0
3A97B	92,9	0,0	7,1
5A95B	89,2	0,0	10,8
10A95B	77,4	0,0	22,6

Ke konfrontaci výsledků zjištěných experimentálně a pomocí MKP byl použit voxelový model 20 částic viz kap. 5.5. Objemové podíly složek kompozitu byly nastaveny dle tab. 13, materiálové vlastnosti  $\text{BaTiO}_3$  dle tab. 4. Youngův modul pružnosti reakční fáze byl předepsán na hodnotu  $E_r = 179$  GPa, relativní permitivita zvolena  $\epsilon_{rr} = 1650$  viz kap. 5.5.

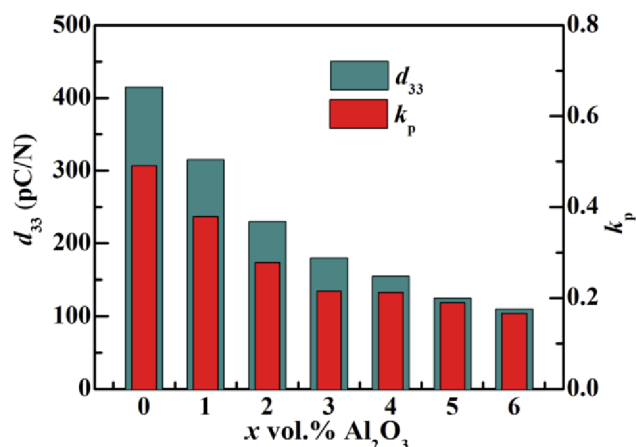
Porovnání hodnot koeficientu  $d_{33}$  dosažených experimentálně a pomocí simulací je znázorněno na obr. 46. Je patrný výrazný rozdíl výsledků získaných oběma metodami. Zatímco přidáním 3 % obj.  $\text{Al}_2\text{O}_3$  poklesla naměřená hodnota  $d_{33}$  ze  $180 \text{ pC} \cdot \text{N}^{-1}$  na  $22 \text{ pC} \cdot \text{N}^{-1}$ , v simulaci byl zaznamenán pokles pouze na  $153 \text{ pC} \cdot \text{N}^{-1}$ . Při výchozím objemovém podílu 10 % obj.  $\text{Al}_2\text{O}_3$

je již naměřené piezoelektrické chování téměř zanedbatelné, simulace však stále udává nadpoloviční hodnotu v porovnání s čistým BaTiO<sub>3</sub>.



Obr. 46: Porovnání výsledků experimentu a simulace vzorků BaTiO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Závislost koeficientu  $d_{33}$  na objemovém podílu Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> byla změřena také v [35] (obr. 47). Zde byl pokles hodnoty  $d_{33}$  při zvyšování objemového podílu Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pomalejší v porovnání s výsledky poskytnutými od CEITEC, nicméně stále výrazně strmější oproti výsledkům simulací.



Obr. 47: Závislost piezoelektrického koeficientu  $d_{33}$  a coupling koeficientu  $k_p$  na objemovém podílu částic Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> v kompozitu BaTiO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [35].

Určitý vliv na odchylku mezi výsledky experimentů a simulací může být způsoben nepřesností materiálových parametrů vstupujících do výpočtů. Jak ale bylo prokázáno citlivostními analýzami v kap. 5, změna tvaru částic, hodnot Youngova modulu pružnosti či relativní permitivity má zejména při malých objemových podílech částic poměrně malý vliv na efektivní piezoelektrické vlastnosti kompozitu.

Významný pokles piezoelektrické aktivity u vyrobených vzorků kompozitu může být způsoben zejména ovlivněním struktury BaTiO<sub>3</sub> přidáním částic Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Zásadní podmínkou pro piezoelektrické chování BaTiO<sub>3</sub> je tetragonální struktura [55]. V [56] bylo pozorováno snížení tetragonality BaTiO<sub>3</sub> přidáním částic Cr, Co či Fe, je tedy pravděpodobné, že tetragonalita může být snížena také přidáním Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Velikost zrn a porozita jsou dalšími parametry, které mají výrazný dopad na piezoelektrické vlastnosti BaTiO<sub>3</sub> [28; 29], přičemž přítomnost Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> během

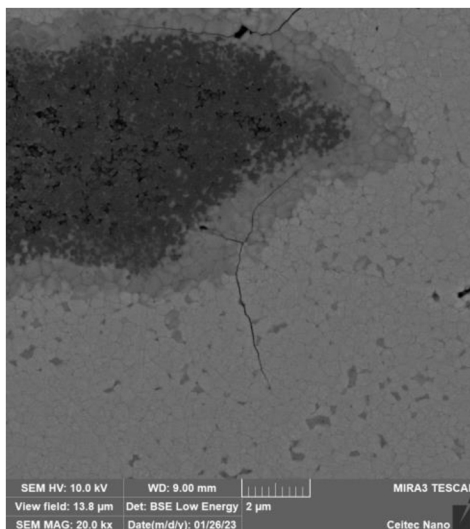
sintrování může tyto parametry významně měnit [34]. Kvůli velmi malým částicím ve výrobných

a následně měřených vzorcích kompozitu došlo k přeměně veškerého  $\text{Al}_2\text{O}_3$  na novou fázi, což je nežádoucí jev. Dalším krokem tedy bylo vyrobit kompozit s většími částicemi, kde již došlo k reakci pouze v tenké vrstvě částice (viz obr. 40) – výsledky měření by tak teoreticky mohly více odpovídat těm ze simulací. Měření na těchto vzorcích však bohužel neproběhlo před odevzdáním této práce.

Důležitým poznatkem této práce je zjištění, že z pohledu mechaniky by měla přítomnost částic  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ovlivnit piezoelektrické vlastnosti  $\text{BaTiO}_3$  výrazně méně, než naznačují experimenty. V dalším výzkumu je proto nutné zaměřit se zejména na to, jaké změny ve struktuře  $\text{BaTiO}_3$  přidání  $\text{Al}_2\text{O}_3$  způsobuje.

## 7 ANALÝZA ZBYTKOVÝCH NAPĚTÍ V ČÁSTICOVÉM KOMPOZITU

Při výrobě keramických kompozitů často dochází ke vzniku trhlin, ať již na rozhraní jednotlivých fází nebo v jeho blízkém okolí, způsobených vlivem rozdílné teplotní roztažnosti jednotlivých komponent a obecně nízké lomové houževnatosti keramik. Tento jev byl pozorován také na zhotovených zkušebních vzorcích kompozitu  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  analyzovaných na CEITEC viz obr. 48. V této kapitole bylo proto pomocí výpočtového modelování predikováno rozložení a velikost zbytkových napětí v tomto kompozitu s cílem objasnit příčinu výskytu trhlin a uvést doporučení, jak jejich vzniku při výrobě kompozitu předcházet.



Obr. 48: Trhliny způsobené výrobou v kompozitu  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  [53].

### 7.1 Stanovení potřebných materiálových vlastností

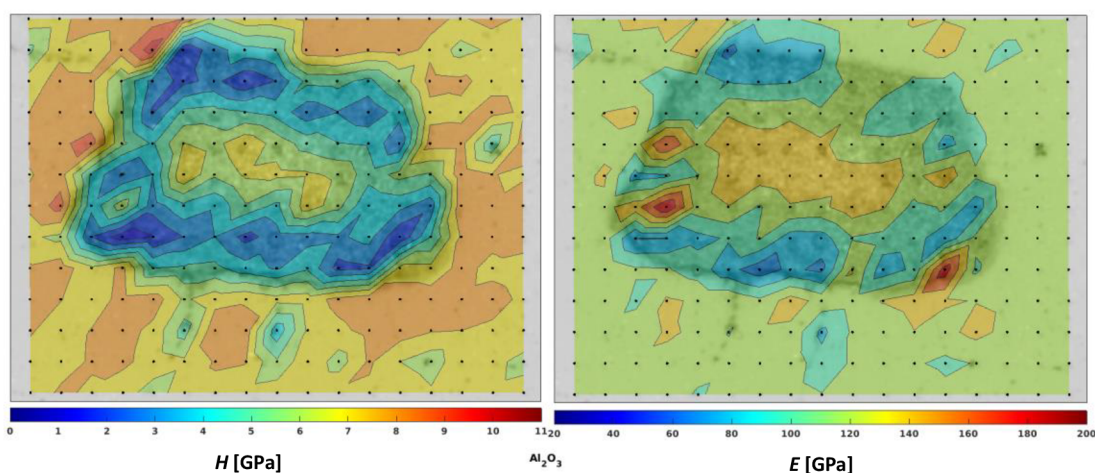
Pro výpočtovou analýzu zbytkových napětí je nezbytné znát součinitele teplotní roztažnosti všech komponent vyskytujících se v kompozitu. Tyto součinitele byly určeny pomocí dilatometrie. Keramiky  $\text{BaTiO}_3$  a  $\text{Al}_2\text{O}_3$  byly shodně sintrovány při teplotě  $1500\text{ }^\circ\text{C}$  a následně byla měřena změna rozměrů vzorků během ochlazování, měření teplotní roztažnosti  $\text{Ba}_4\text{Al}_2\text{Ti}_{10}\text{O}_{27}$  proběhlo na již vyrobeném vzorku, u něhož byla změna rozměrů zaznamenávána při zahřívání na teplotu  $1400\text{ }^\circ\text{C}$ . Ze získaných dat byly poté u všech 3 uvedených materiálů vyhodnoceny sekantní součinitele teplotní roztažnosti pro ochlazení z referenční teploty  $1150\text{ }^\circ\text{C}$ , která odpovídá teplotě sintrování vzorků  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$  na pokojovou teplotu. Hodnoty těchto součinitelů jsou uvedeny v tab. 14.

Tab. 14: Naměřené hodnoty sekantních součinitelů teplotní roztažnosti při ochlazení materiálu z referenční teploty  $1150\text{ }^\circ\text{C}$  na pokojovou teplotu [53].

Materiál	$\alpha$ [ $\text{K}^{-1}$ ]
$\text{BaTiO}_3$	$10,49 \cdot 10^{-6}$
$\text{Al}_2\text{O}_3$	$8,77 \cdot 10^{-6}$
$\text{Ba}_4\text{Al}_2\text{Ti}_{10}\text{O}_{27}$	$7,31 \cdot 10^{-6}$



Druhým zásadním parametrem této analýzy jsou hodnoty Youngova modulu pružnosti všech komponent. Aby se vypočtené hodnoty zbytkových napětí co nejvíce blížily reálnému kompozitu, nebyly pro výpočet použity moduly pružnosti naměřené na dynamickou metodou na objemu materiálu (tab. 4), ale vycházelo se z nanoindentační zkoušky vyrobeného kompozitu provedené na ÚFM AVČR Brno v rámci výše uvedeného projektu GAČR, jejíž výsledky jsou zobrazeny na obr. 49. Jak je z uvedeného obrázku patrné, naměřené hodnoty jsou ovlivněny porozitou materiálu, která se navíc zejména v rámci objemu částice výrazně mění. Z toho důvodu byly simulace provedeny pro různé hodnoty modulů pružnosti komponent, konkrétně pro částice v rozmezí  $E_p = 100 \div 200$  GPa a pro matici v rozmezí  $E_m = 90 \div 150$  GPa. Youngův modul pružnosti reakční vrstvy není z výsledků nanoindentační zkoušky patrný kvůli velmi malé tloušťce této vrstvy, byl proto zaveden předpoklad, že hodnota tohoto modulu je vždy průměrem aktuálních hodnot  $E_p$  a  $E_m$ , což přibližně odpovídá výsledkům naměřeným v [39] a zobrazeným na obr. 14.

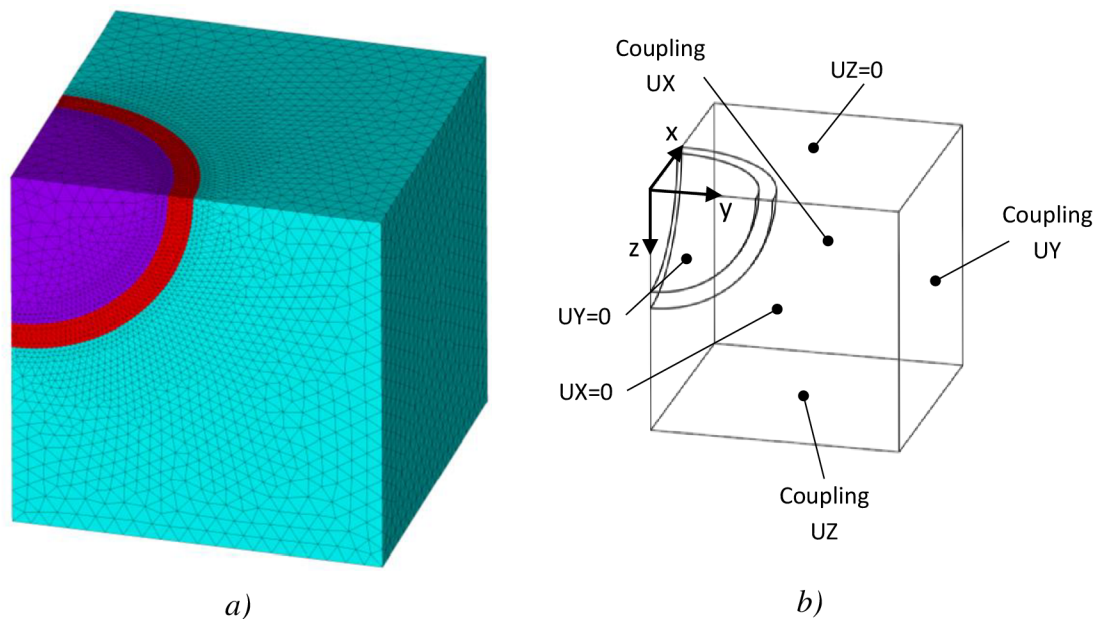


Obr. 49: Naměřené hodnoty tvrdosti a Youngova modulu pružnosti kompozitu  $BaTiO_3-Al_2O_3$  z nanoindentační zkoušky [53].

## 7.2 Konečnoprvkový model pro určení zbytkových napětí

Model použitý pro výpočet zbytkových napětí je tvořen částicí, jež je obklopena reakční vrstvou a maticí, přičemž velikost jednotlivých oblastí je dána výchozím objemovým podílem částic  $v_p$  a objemovým podílem částic přeměněným na reakční vrstvu  $p_r$ . Využita byla symetrie, díky níž bylo možné modelovat pouze osminu částice spolu s předepsáním odpovídajících okrajových podmínek viz obr. 50. Základní elementární buňka kompozitu byla opět reprezentována jednotkovou krychlí, její osmina má proto poloviční délky hran. Všechny rozměrové hodnoty uváděné v prezentaci výsledků této analýzy jsou proto vztaženy k těmto rozměrům modelu a při aplikaci na reálnou geometrii je nutné korigovat příslušné délky odpovídajícím poměrem.

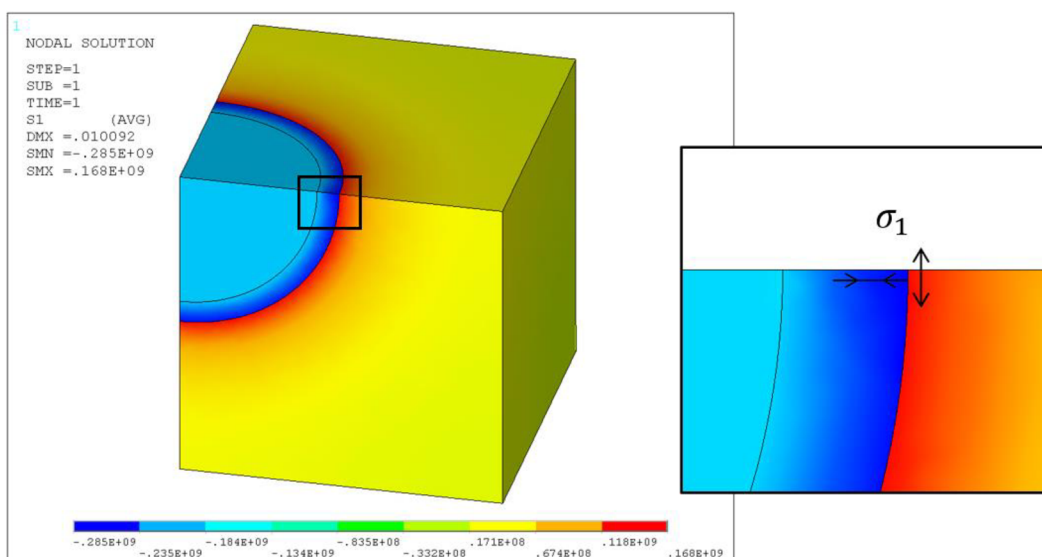
Síť konečných prvků (obr. 50a) tvořily kvadratické prvky typu SOLID187 a jejich velikost byla nastavena tak, aby reakční vrstva obsahovala po tloušťce vždy nejméně 5 prvků a byl tak dostatečně přesně vystihnout průběh napětí při přijatelném výpočtovém čase.



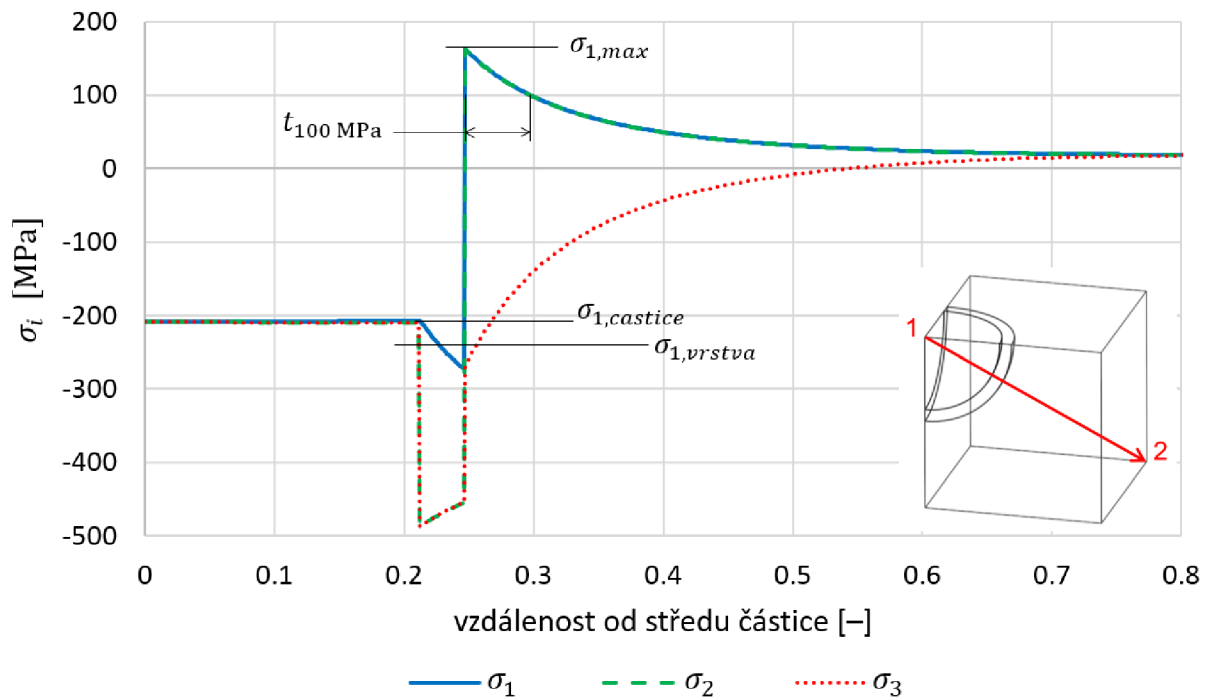
Obr. 50: Model pro výpočet zbytkových napětí: a) síť konečných prvků; b) okrajové podmínky.

### 7.3 Prezentace výsledků zbytkových napětí

V simulaci byla nastavena výchozí teplota 1150 °C (odpovídá teplotě sinterování) a celý model byl následně ochlazen na 20 °C (pokojová teplota). Rozložení prvního hlavního napětí pro konkrétní hodnoty  $\nu_p, p_r, E_m, E_p$  je zobrazeno na obr. 51. Napětí byla vyhodnocena po cestě tvořící tělesovou úhlopříčku začínající ve středu částice, získané průběhy hlavních napětí jsou vykresleny na obr. 52. Pro další posouzení bylo vyhodnocováno pouze první hlavní napětí  $\sigma_1$  odpovídající v matici obvodovému napětí, které je kolmé na směr šíření potenciální trhliny. Z každého průběhu napětí odpovídajícího daným parametrům kompozitu byly získány 4 charakteristické hodnoty: průměrné napětí v částici ( $\sigma_{1,castice}$ ), průměrné napětí v reakční vrstvě ( $\sigma_{1,vrstva}$ ), maximální napětí ( $\sigma_{1,max}$ ) a tloušťka oblasti, v níž platí  $\sigma_1 > 100$  MPa ( $t_{100\text{ MPa}}$ ) – tato hodnota odpovídá zhruba mezi pevnosti BaTiO<sub>3</sub> naměřené v [57].



Obr. 51: První hlavní napětí a jeho orientace v kompozitu s parametry  $\nu_p = 0,05, p_r = 0,20, E_m = 120$  GPa,  $E_p = 150$  GPa; pozn: napětí vykresleno v [Pa]



Obr. 52: Ukázka průběhu hlavních napětí po znázorněné cestě pro kompozit s parametry  $v_p = 0,05$ ,  $p_r = 0,20$ ,  $E_m = 120$  GPa,  $E_p = 150$  GPa.

Nejprve byl analyzován vliv objemového podílu částic na vypočtené napětí. Tloušťka reakční vrstvy byla řízena konstantní hodnotou parametru  $p_r = 0,2$ , která udává, že 20 % výchozího objemu částic bylo přeměněno na reakční vrstvu. Pro každou geometrickou konfiguraci modelu tak byl zajištěn totožný poměr objemu částice a objemu reakční vrstvy.

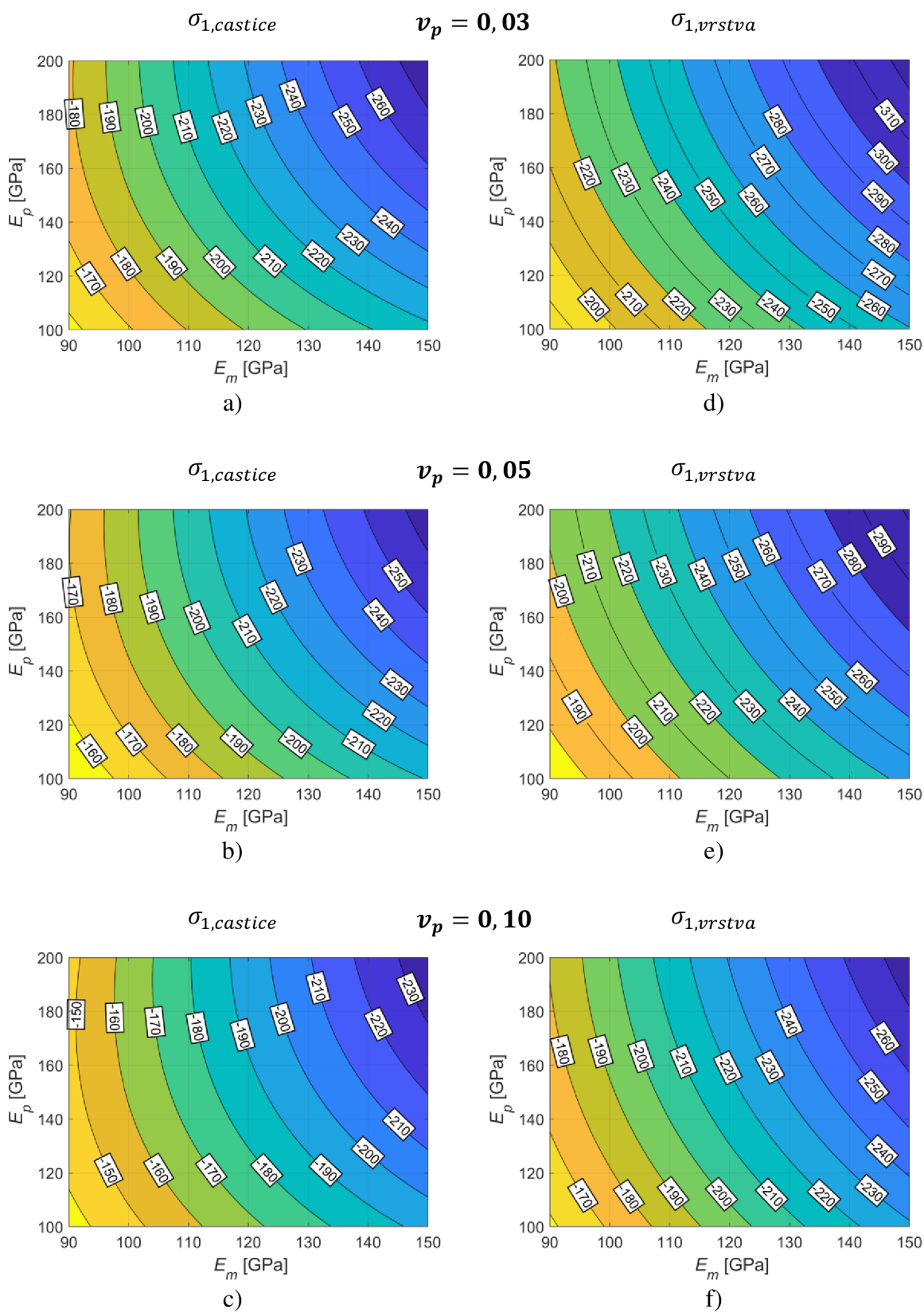
Obr. 53 a obr. 54 vykreslují zvolené charakteristické hodnoty napětí pro objemové podíly částic 0,03, 0,05 a 0,10. Z uvedených výsledků lze vyvodit několik závěrů. Bylo prokázáno, že pro celé pásmo zkoumaných hodnot modulů pružnosti  $E_m, E_p$  je první hlavní napětí v matici kladné, zatímco v částici a reakční vrstvě záporné. To je dáno skutečností, že součinitel teplotní roztažnosti dosahuje nejvyšší hodnoty v matici, při ochlazení se tak matrice smršťuje nejvíce a vyvolává tím v částicích a reakční vrstvě tlaková napětí.

Zvyšování objemového podílu částic má za následek snížení velikosti záporného prvního hlavního napětí v částici a v reakční vrstvě. Rozdíl mezi objemovým podílem  $v_p = 0,03$  a  $v_p = 0,10$  při  $E_m = 150$  GPa,  $E_p = 200$  GPa činí u obou hodnot  $\sigma_{1,castice}$ ,  $\sigma_{1,vrstva}$  asi 15 %. Velikosti  $\sigma_{1,castice}$ ,  $\sigma_{1,vrstva}$  naopak rostou při zvýšení jak modulu pružnosti částice  $E_p$ , tak i modulu pružnosti matrice  $E_m$ .

Závislost velikosti  $\sigma_{1,max}$  na objemovém podílu částic je přesně opačná, tedy čím vyšší objemový podíl částic je, tím větší je také velikost  $\sigma_{1,max}$  – rozdíl mezi  $v_p = 0,03$  a  $v_p = 0,10$  při  $E_m = 150$  GPa,  $E_p = 200$  GPa činí asi 17 %. Efekt velikosti modulů  $E_m, E_p$  je v tomto případě totožný, tedy s jejich nárůstem se hodnota  $\sigma_{1,max}$  zvyšuje. Pro tloušťku  $t_{100 \text{ MPa}}$  platí stejné závislosti jako pro  $\sigma_{1,max}$ , rozdíl mezi  $v_p = 0,03$  a  $v_p = 0,10$  při  $E_m = 150$  GPa,  $E_p = 200$  GPa je zde největší a přesahuje 100 %.

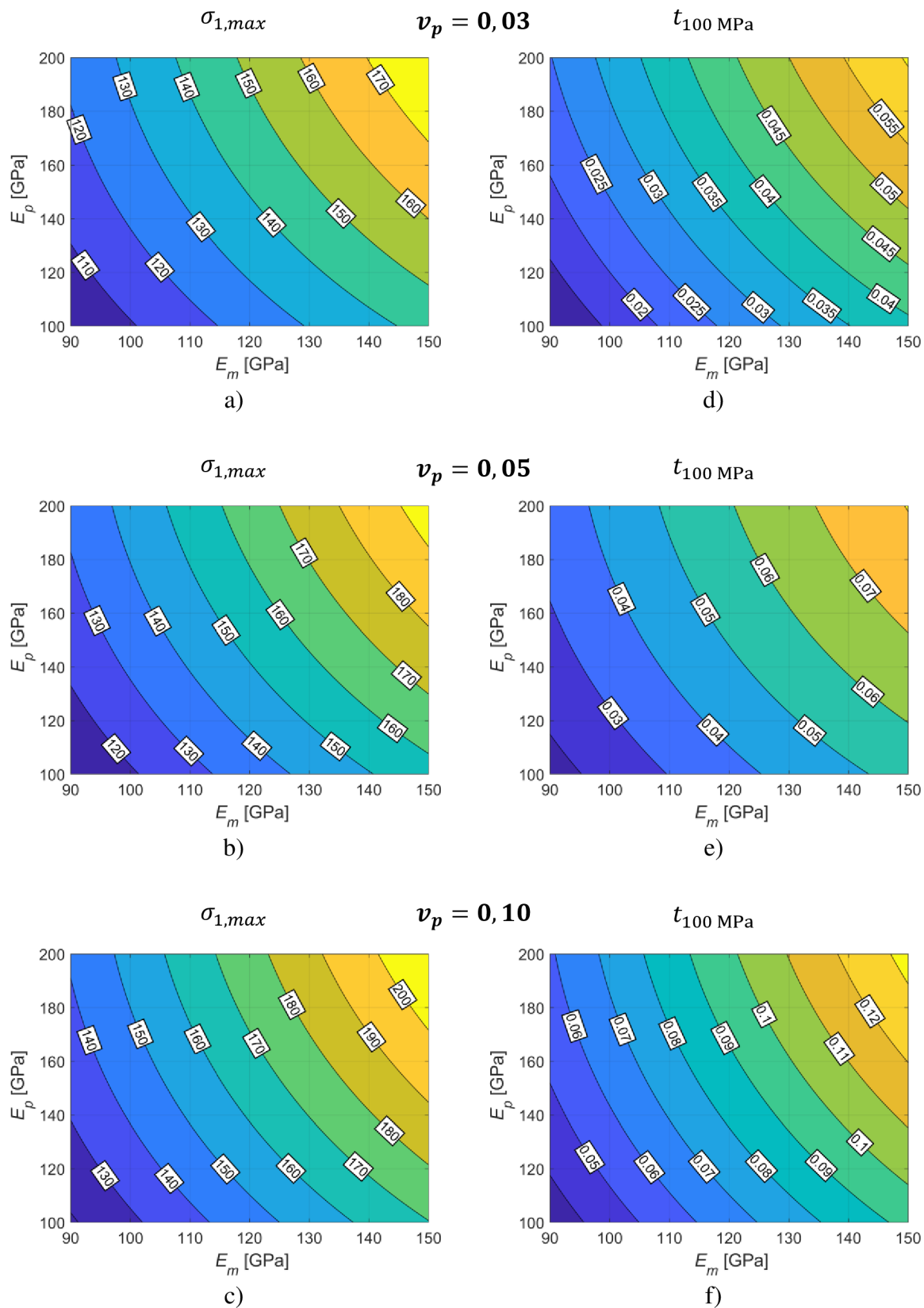
Na obr. 55 je porovnání průběhů napětí  $\sigma_1$  pro různé objemové podíly částic  $v_p$  při totožných materiálových parametrech. Z tohoto srovnání vyplývá, že zvýšení  $v_p$  má za následek posuv

průběhu napětí směrem ke kladným hodnotám, což vysvětluje zmenšení velikosti  $\sigma_{1,castice}$ ,  $\sigma_{1,vrstva}$  a naopak nárůst  $\sigma_{1,max}$  a  $t_{100}$  MPa.

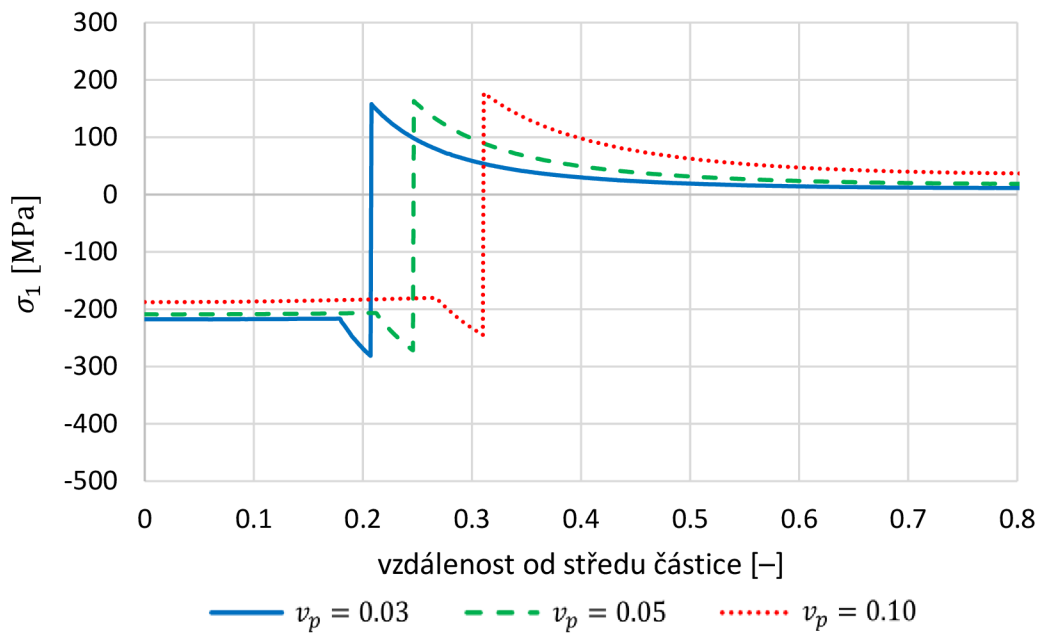


Obr. 53: Vliv objemového podílu částic  $v_p$  na zbytková napětí: a), b), c): průměrná hodnota  $\sigma_1$  v částici; d), e), f): průměrná hodnota  $\sigma_1$  v reakční vrstvě.





Obr. 54: Vliv objemového podílu částic  $v_p$  na zbytková napětí: a), b), c): maximální hodnota  $\sigma_1$  v matici; d), e), f): tloušťka oblasti v matici, kde  $\sigma_1 > 100$  MPa.



Obr. 55: Průběh napětí v kompozitu při  $E_m = 120$  GPa,  $E_p = 150$  GPa,  $p_r = 0,20$  v závislosti na objemovém podílu částic.

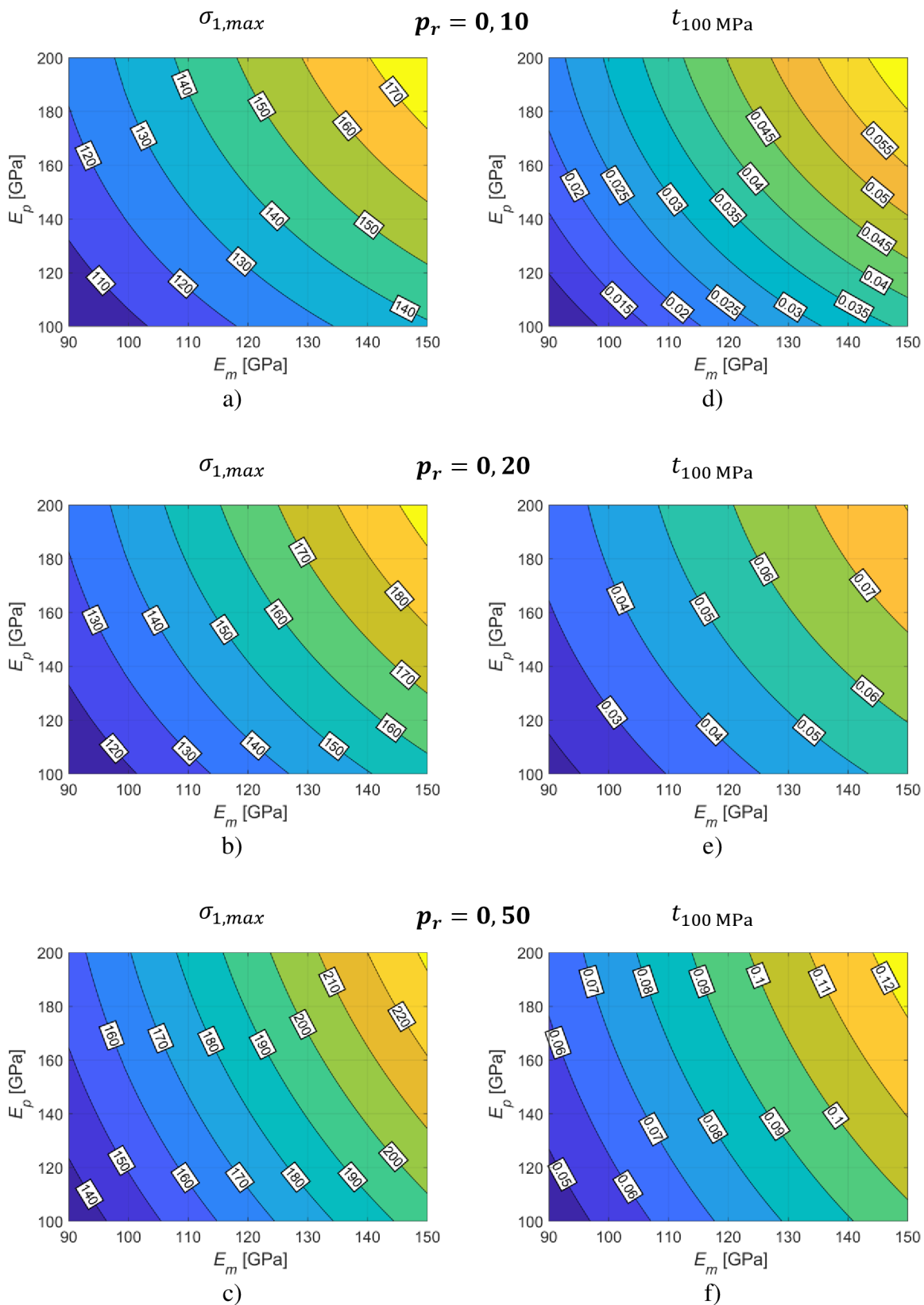
Vyšetřen byl rovněž vliv velikosti reakční vrstvy na zbytková napětí v kompozitu. V rámci této analýzy byl výchozí objemový podíl částic ponechán na konstantní hodnotě  $v_p = 0,05$ , proměnným parametrem byl objemový podíl částic přeměněný na reakční vrstvu  $p_r$ . Analyzovány byly případy, kdy je na reakční vrstvu přeměněno 10, 20 a 50 % objemu částic.

Výsledky této analýzy jsou vykresleny na obr. 56 a obr. 57. Velikost napětí  $\sigma_{1,castice}$  klesá s rostoucí tloušťkou reakční vrstvy, u napětí  $\sigma_{1,vrstva}$  je tomu právě naopak. Při maximálních hodnotách modulů pružnosti  $E_m = 150$  GPa,  $E_p = 200$  GPa je mezi  $p_r = 0,10$  a  $p_r = 0,50$  rozdíl v hodnotě  $\sigma_{1,castice}$  přibližně 11 %, v hodnotě  $\sigma_{1,vrstva}$  pak 13 %. Navíc při zreagovaném objemovém podílu částic  $p_r = 0,50$  již není ve zvoleném pásmu hodnot modulů pružnosti  $E_m, E_p$  závislost napětí  $\sigma_{1,castice}$  na velikosti těchto modulů monotónní, nýbrž při překročení určité hodnoty  $E_p$  dochází při dalším zvyšování tuhosti částic naopak ke snižování velikosti  $\sigma_{1,castice}$ .

Stejně jako zvětšení objemového podílu částic způsobuje i nárůst objemu reakční vrstvy zvýšení hodnot  $\sigma_{1,max}$  a  $t_{100}$  MPa. Konkrétně je při  $E_m = 150$  GPa,  $E_p = 200$  GPa mezi  $p_r = 0,10$  a  $p_r = 0,50$  rozdíl ve velikosti  $\sigma_{1,max}$  zhruba 30 %, tloušťka  $t_{100}$  MPa se liší téměř o 100 %.

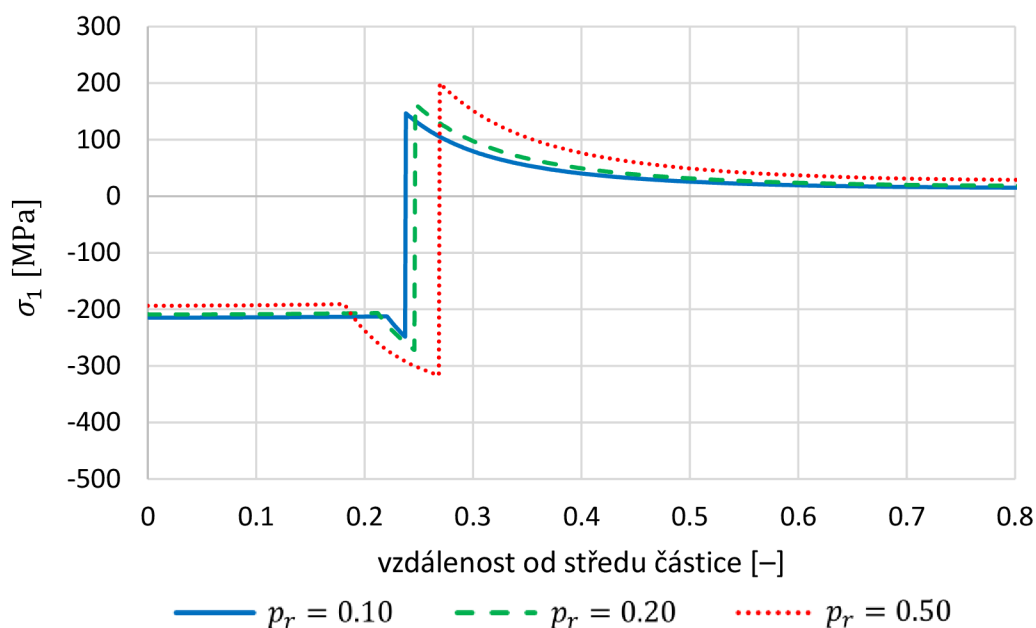
Obr. 58 znázorňuje průběh prvního hlavního napětí při různých hodnotách  $p_r$  a totožných materiálových parametrech všech složek kompozitu. Na rozdíl od zvyšování objemového podílu částic, jehož důsledkem je posuv celého průběhu napětí směrem ke kladným hodnotám, způsobuje zvětšení reakční vrstvy snížení velikosti tlakových napětí v částici, naopak jejich zvýšení v reakční vrstvě a taktéž nárůst napětí v matici.





Obr. 57: Vliv objemového podílu částic přeměněného na reakční vrstvu  $p_r$  na zbytková napětí při  $v_p = 0,05$ : a), b), c): maximální hodnota  $\sigma_1$  v matrici; d), e), f): tloušťka oblasti v matrici, kde  $\sigma_1 > 100$  MPa.





Obr. 58: Průběh napětí v kompozitu při  $E_m = 120$  GPa,  $E_p = 150$  GPa,  $\nu_p = 0,05$  v závislosti na objemovém podílu částic přeměněném na reakční vrstvu  $p_r$ .

Celkově lze při pohledu na výsledky analýzy zbytkových napětí konstatovat, že v rámci kompozitu existují velmi významné rozdíly v napjatosti. V částicích nastává prakticky rovnoměrná trojosá tlaková napjatost, která je způsobena tím, že součinitel teplotní roztažnosti  $\text{Al}_2\text{O}_3$  je menší v porovnání s  $\text{BaTiO}_3$ . Také v reakční vrstvě jsou všechna hlavní napětí tlaková a jejich velikost se od částice směrem k matici zvětšuje. První dvě hlavní napětí v matici jsou naopak kladná (tahová) a stejně velká, což je dáno kulovým tvarem částice, třetí hlavní napětí je záporné (tlakové) a velikost všech těchto napětí se snižuje směrem od částice.

Zvyšování objemového podílu částic ve všech ohledech zvyšuje riziko vzniku a šíření trhlin v kompozitu. Má totiž za následek jak pokles tlakových napětí v částici a v reakční vrstvě, tak nárůst tahového napětí v matici a zároveň velikost oblasti, kde toto napětí přesahuje 100 MPa.

Velikost reakční vrstvy má dvojitý účinek. Její nárůst způsobuje navýšení tlakových napětí v částicích a reakční vrstvě, na druhé straně ovšem, stejně jako v případě nárůstu objemového podílu částic, zvyšuje tahová napětí v matici a velikost oblasti, kde  $\sigma_1 > 100$  MPa.

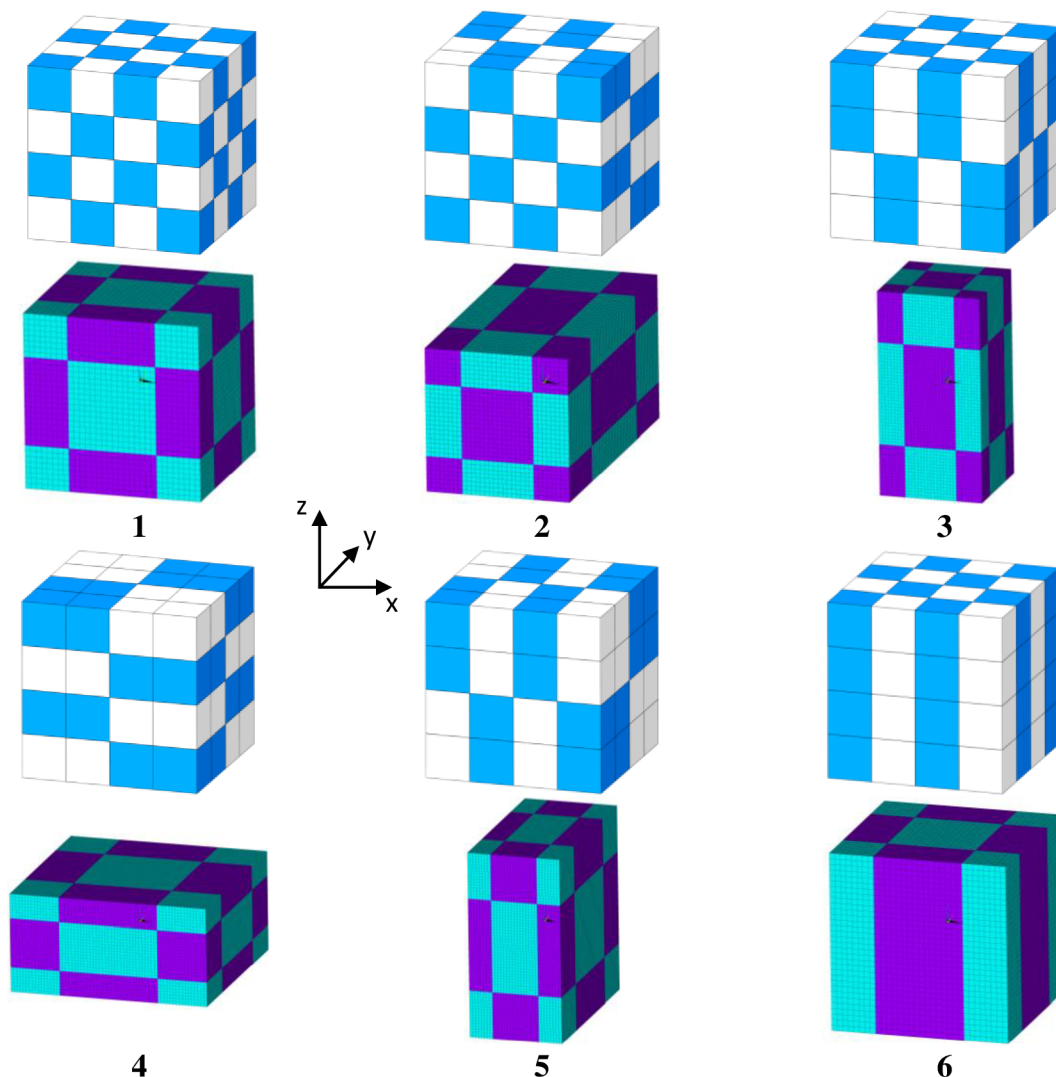
Všechny charakteristické hodnoty zjišťované z průběhu prvního hlavního napětí rostou (v absolutní hodnotě) spolu s velikostí Youngova modulu pružnosti částic i matrice. Ze sklonu vrstevnic jednotlivých grafů vyplývá, že významnější dopad na průběh napětí v kompozitu má Youngův modul matrice  $E_m$ .

Je důležité zde zmínit, že uvedená analýza vystihuje případ kulových částic rovnoměrně rozmístěných v matici. V reálném kompozitu mohou nastat výrazně vyšší napětí vlivem tvaru částic, jejich vzájemné blízkosti či různé velikosti. Cílem zde však bylo posoudit vliv jednotlivých parametrů kompozitu na velikosti zbytkových napětí a s tím související náchylnost ke vzniku trhlin, aby zjištěné závěry mohly být zohledněny při výrobě částicových kompozitů  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ .

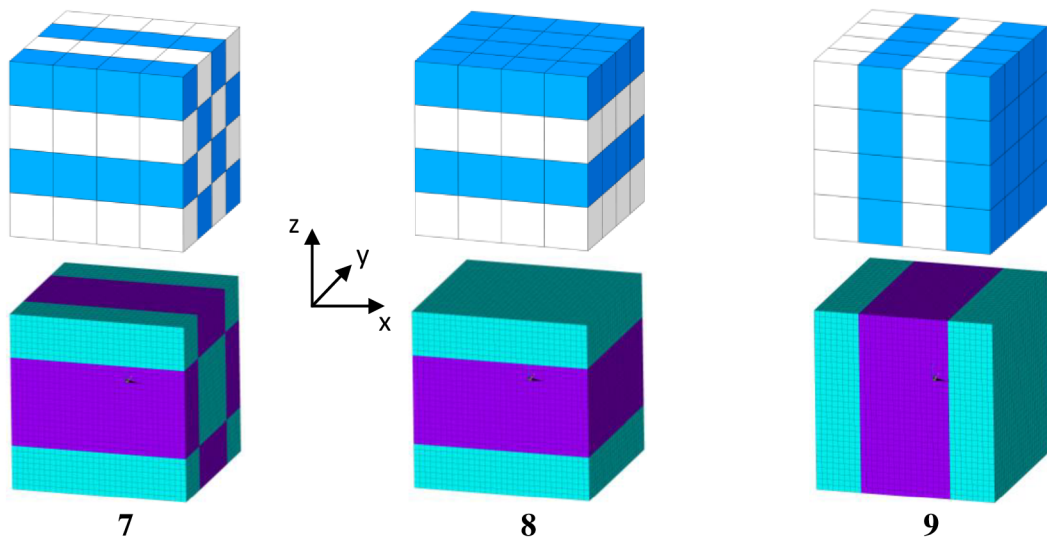
## 8 ANALÝZA PIEZOELEKTRICKÝCH KOMPOZITŮ S RŮZNOU 3D KONEKTIVITOU KOMPONENT

Rozvoj aditivních technologií zejména v posledních letech umožňuje také 3D tisk pokročilých keramických materiálů [58]. Tato část práce slouží jako základ pro budoucí výzkum feroelektrických/dielektrických kompozitů vyrobitelných právě technologií 3D tisku, u které je možné přímo řídit rozmístění jednotlivých komponent v rámci zhotovené součásti.

Navrženo bylo celkem 5 různých designů kompozitu, ve kterých je objemové zastoupení feroelektrické i dielektrické komponenty 50 %. Z těchto typů kompozitu byly 4 analyzovány ve dvou různých orientacích, dohromady tedy bylo testováno 9 různých variant, které jsou zobrazeny na obr. 59 a obr. 60 ve formě základní buňky, jejímž opakováním v prostoru by byl vytvořen daný kompozit. Pod každým z těchto designů je umístěna odpovídající elementární buňka, na níž byly předepsány periodické okrajové podmínky (viz kap. 4.2.1), dále okrajové podmínky v závislosti na vyhodnocované veličině (viz kap. 4.2.3) a následně byly spočteny efektivní vlastnosti stejným způsobem jako v kap. 4. Materiálové vlastnosti komponent byly zvoleny dle tab. 4.



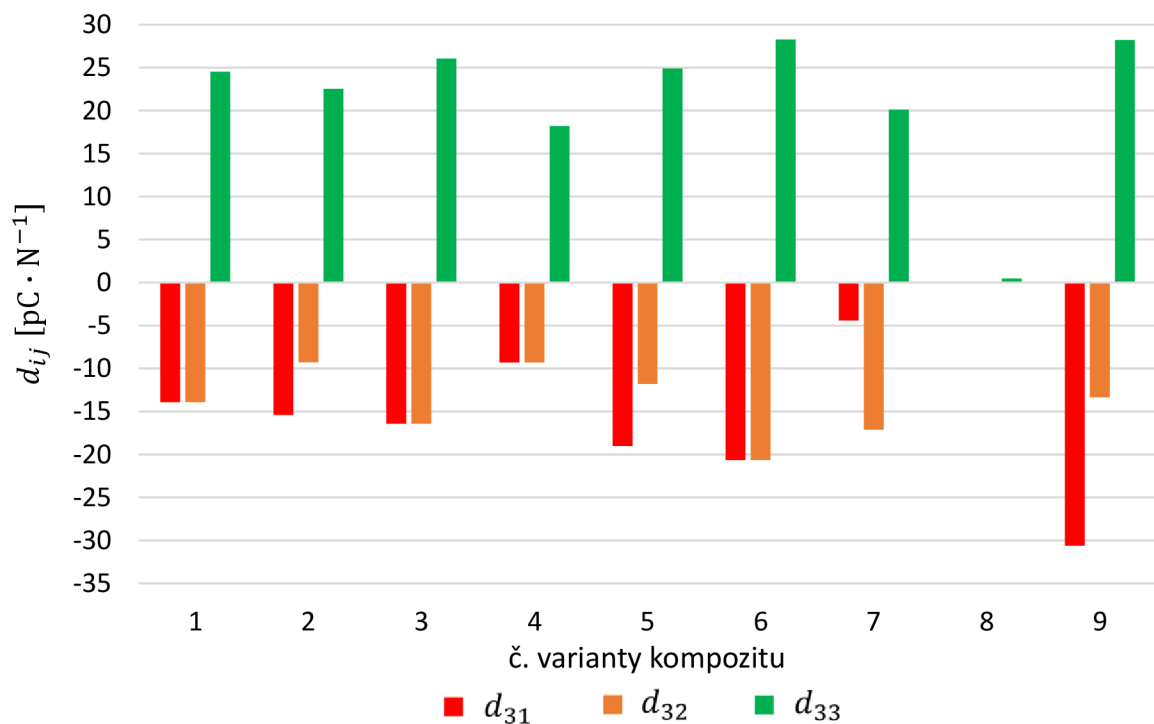
Obr. 59: Analyzované varianty kompozitů 1-6 a odpovídající elementární buňky použité v simulaci.



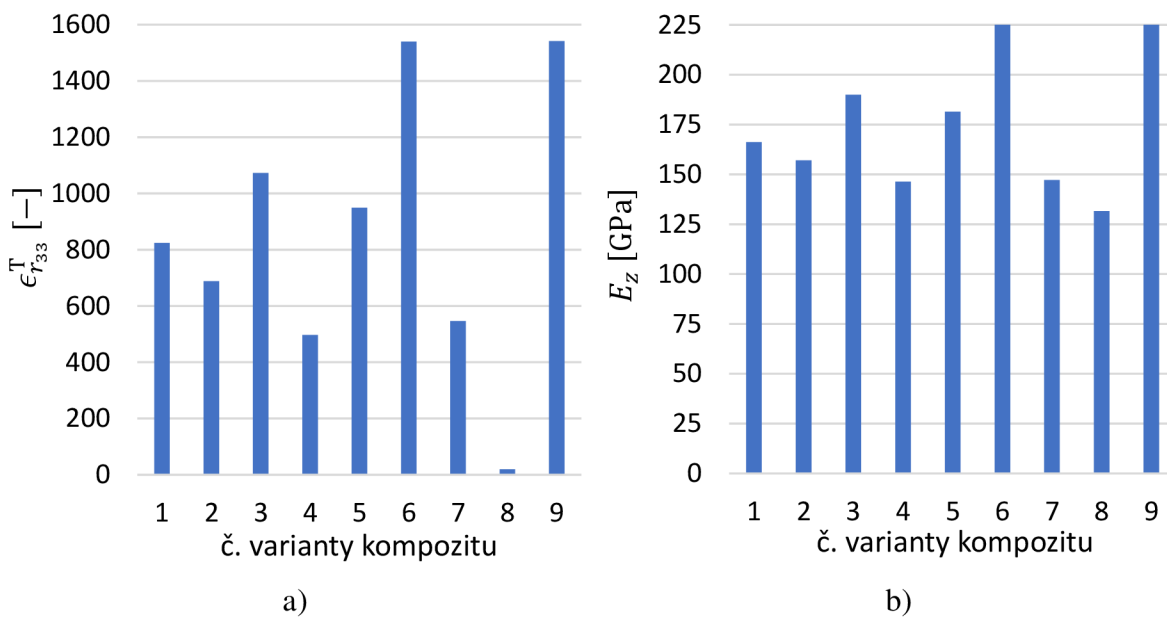
Obr. 60: Analyzované varianty kompozitů 7-9 a odpovídající elementární buňky použité v simulaci.

Také zde byly použity lineární prvky SOLID225, síť konečných prvků všech variant kompozitu je na obrázcích výše.

Vzorky byly polarizovány ve směru osy  $z$ , vypočteny byly efektivní piezoelektrické nábojové koeficienty  $d_{31}$  (odpovídá směřům  $z, x$ ),  $d_{32}$  (odpovídá směřům  $z, y$ ),  $d_{33}$  (odpovídá směru  $z$ ), dále pak ve směru  $z$  relativní permitivita  $\epsilon_{r33}^T$  a Youngův modul pružnosti  $E_z$ . Výsledky těchto efektivních vlastností jsou znázorněny na obr. 61 a obr. 62.



Obr. 61: Hodnoty piezoelektrických nábojových koeficientů jednotlivých variant kompozitu.



Obr. 62: Hodnoty efektivních vlastností jednotlivých variant kompozitu:  
 a) relativní permitivita  $\epsilon_{r33}^T$ ; b) Youngův modul pružnosti  $E_z$ .

Dosažené výsledky jednoznačně ukazují, že pro maximální piezoelektrické vlastnosti, permitivitu i tuhost ve směru polarizace je výhodné, aby byly jednotlivé materiálové oblasti orientovány do tohoto směru co nejvíce. Nejvyšší hodnoty efektivních vlastností byly zjištěny u vláknového, resp. vrstevnatého kompozitu, jejichž vlákna, resp. vrstvy jsou rovnoběžné se směrem polarizace (varianty 6, 9). Toto chování je patrné také u variant 2 a 3 lišících se pouze orientací vzhledem k uvažovanému souřadnému systému – varianta 3, kde delší rozměr jednotlivých materiálových oblastí odpovídá směru osy  $z$ , dosahuje lepších efektivních vlastností.

Nejnižší hodnoty efektivních charakteristik vykazuje vrstevnatý kompozit, jehož vrstvy jsou kladeny ve směru polarizace (varianta 8), což se může jevit v rozporu se skutečností, že tato konfigurace je běžně využívána pro konstrukci tzv. *energy harvesterů* (obr. 8). Je však důležité zmínit, že provedená analýza popisuje případ teoreticky nekonečného objemu materiálu, jenž je rovnoměrně zatížen a není uvažován vliv volných povrchů. Energy harvestery jsou oproti tomu zatěžovány zpravidla ohybem tak, aby byla deformace piezoelektrických vrstev co nejvyšší v porovnání se substrátem a tyto vrstvy navíc nejsou po celém svém povrchu vázány na okolní materiál.

## 9 ZÁVĚR

Primárním cílem diplomové práce bylo vytvoření parametrických konečnoprvkových modelů částicového kompozitu tvořeného feroelektrickou maticí a dielektrickými částicemi a s využitím těchto modelů určit efektivní elektro-mechanické vlastnosti takového kompozitu v závislosti na objemovém podílu jednotlivých komponent a jejich materiálových vlastnostech. Dalším cílem bylo u popsaného kompozitu popsat rozložení a velikost zbytkových napětí způsobených výrobou sintrováním při vysoké teplotě a na základě získaných výsledků uvést doporučení, jak daný kompozit navrhnout a vyrobit, aby byla minimalizována tahová zbytková napětí způsobující vznik trhlin. Výpočty byly zaměřeny zejména na částicový kompozit  $\text{BaTiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ , jehož materiálové vlastnosti byly změřeny a poskytnuty v rámci projektu GAČR od výzkumné skupiny Pokročilých multifunkčních keramik CEITEC VUT Brno a Skupiny křehkého lomu ÚFM AVČR Brno.

Pro výpočtové modelování byl použit program Ansys Mechanical APDL, ve kterém byly pomocí programovacího jazyka APDL vytvořeny skripty umožňující snadnou parametrizaci vstupních veličin a automatizaci výpočtů. Za účelem homogenizace kompozitu byly vytvořeny dva různé konečnoprvkové modely. V prvním z nich byla uvažována pouze jediná částice obklopená maticí, druhý model byl tvořen voxelově, obsahoval větší množství náhodně rozmístěných částic a zohledňoval tak i jejich vzájemné interakce potenciálně ovlivňující výsledné efektivní vlastnosti kompozitu. Popsán byl podrobně algoritmus tvorby těchto modelů stejně jako postup výpočtu příslušných efektivních vlastností kompozitu z vypočtených hodnot posuvů a elektrického potenciálu v uzlech modelu. Konkrétně byl vyhodnocován Youngův modul pružnosti  $E$ , relativní permitivita  $\epsilon_{r_{33}}^T$ , piezoelektrické nábojové koeficienty  $d_{31}, d_{33}$  a koeficient teplotní roztažnosti  $\alpha$  kompozitu. Oba uvedené modely byly následně odladěny tak, aby poskytovaly dostatečně přesné výsledky. V modelu jedné částice byl testován pouze vliv hustoty sítě konečných prvků, v modelu více částic byl navíc posouzen také vliv typu použitých prvků a počtu částic v modelu.

Výsledky získané metodou konečných prvků byly porovnány s hodnotami vypočtenými z dostupných analytických modelů. U většiny analytických modelů byla zjištěna velmi dobrá shoda s výsledky z konečnoprvkových modelů i při vyšších objemových podílech částic, což činí tyto modely použitelnými minimálně pro prvotní návrh částicového kompozitu.

Dále bylo posouzeno, jak jsou efektivní elektro-mechanické vlastnosti kompozitu ovlivněny jeho geometrickými a materiálovými parametry. Jmenovitě byl vyšetřen vliv tvaru částic, jejich Youngova modulu pružnosti a relativní permitivity, následně také vliv ortotropie permitivity piezoelektrické matrice a přítomnosti reakční vrstvy na rozhraní částic a matrice. Bylo zjištěno, že tvar částic má na efektivní vlastnosti kompozitu pouze velmi malý dopad stejně jako hodnota permitivity matrice ve směru kolmo na polarizaci. Zvýšení Youngova modulu pružnosti částic zkoumané piezoelektrické vlastnosti snižuje, zvýšení jejich permitivity má přesně opačný efekt. Dle provedených simulací však při běžně uvažovaných objemových podílech částic v tomto typu kompozitu (do 10 %) jsou hodnoty koeficientů  $d_{31}, d_{33}$  změnou Youngova modulu pružnosti či permitivity částic ovlivněny pouze v řádu jednotek procent. Pro posouzení vlivu reakční vrstvy byl do voxelového modelu více částic implementován algoritmus vytvářející tuto vrstvu v okolí částic a umožňující nastavit její různou tloušťku. Byly zjištěny obdobné závěry jako u modulu pružnosti a permitivity částic, tedy že při nízkých objemových podílech částic jsou koeficienty  $d_{31}, d_{33}$  přítomností reakční vrstvy ovlivněny pouze v malé míře.

Výsledky dosažené výpočtovým modelováním byly konfrontovány s výsledky experimentů provedených na CEITEC. Mezi hodnotami zjištěnými těmito metodami panuje významný rozdíl. Zatímco pomocí metody konečných prvků byl predikován relativně pomalý pokles piezoelektrických vlastností při zvyšování objemového podílu částic  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , v experimentu byl po přidání pouhých 3 % obj.  $\text{Al}_2\text{O}_3$  pozorován pokles koeficientu  $d_{33}$  téměř na desetinu oproti hodnotě naměřené na čistém  $\text{BaTiO}_3$ . Vzhledem ke shodě analytických a numerických modelů tento nesoulad s experimentem poukazuje na skutečnost, že vlivem přidání částic  $\text{Al}_2\text{O}_3$  došlo pravděpodobně ke změně struktury části  $\text{BaTiO}_3$ , která tak již nevykazovala tak výrazné piezoelektrické chování jako bez přítomnosti  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Dalšími možnými faktory by mohly být změny porozity kompozitu či velikosti zrn  $\text{BaTiO}_3$ . Závěry prezentované v této práci tak poukazují na nutnost detailnějšího výzkumu v této oblasti.

Analýza zbytkových napětí byla provedena na osminovém modelu kulové částice včetně přilehlé reakční vrstvy a matrice, předepsáno bylo teplotní zatížení odpovídající ochlazení kompozitu ze sintrovací teploty 1150 °C na pokojovou teplotu. Posuzován byl průběh prvního hlavního napětí u kompozitů s různým objemovým podílem a Youngovým modulem pružnosti jednotlivých fází. Z uskutečněných výpočtů vyplynulo, že pro dané hodnoty koeficientů teplotní roztažnosti částic, matrice a reakční fáze poskytnuté taktéž z měření na CEITEC VUT Brno dochází při ochlazení ke vzniku tlakových napětí v částici a v reakční vrstvě, naopak v matrici jsou první dvě hlavní napětí tahová a dosahují maxima na rozhraní s reakční vrstvou. Zvyšování objemového podílu částic má za následek snížení velikosti tlakových napětí v částici a v reakční vrstvě, naopak v matrici dochází v takovém případě k nárůstu tlakových napětí. Všechny uvedené jevy zvyšují riziko vzniku a šíření trhlin v kompozitu. Při zvětšení tloušťky reakční vrstvy se sice v částici a v reakční vrstvě velikost tlakových napětí zvýší, ale i zde nastává zvýšení rovněž tahových napětí v matrici. Velikosti všech vyhodnocovaných hodnot prvního hlavního napětí jsou tím větší, čím větší jsou hodnoty Youngova modulu pružnosti částic a matrice. Z uvedených poznatků je zřejmé, že pro snížení rizika vzniku trhlin v kompozitu je žádoucí minimální tuhost jednotlivých složek a stejně tak minimální objemový podíl částic a tloušťka reakční vrstvy.

Na závěr byly také navrženy různé designy feroelektrického/dielektrického kompozitu vyrobitelné 3D tiskem s cílem poskytnout základ pro budoucí výzkum v této oblasti. Výpočtovou analýzou jednotlivých designů bylo například zjištěno, že pro dosažení maximální tuhosti, permittivity i piezoelektrických vlastností kompozitu tohoto typu je zapotřebí, aby jednotlivé materiálové oblasti měly protažený tvar a jejich delší rozměr byl orientován v souladu se směrem polarizace.

# SEZNAM POUŽITÝCH ZDROJŮ

- [1] Piezoelectric Bending Transducer. In: *Piezo.com* [online]. [cit. 2023-05-21]. Dostupné z: <https://piezo.com/collections/piezoelectric-energy-harvesters/products/piezoelectric-bending-transducer-s128-h5fr-1107yb>
- [2] PALANI VELAYUDA SHANMUGASUNDRAM, Hari, Elammaran JAYAMANI a Kok SOON. A comprehensive review on dielectric composites: Classification of dielectric composites. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* [online]. 2022, **157** [cit. 2023-03-13]. ISSN 13640321. Dostupné z: doi:10.1016/j.rser.2022.112075
- [3] *Lead-free piezoelectric materials* [online]. 1. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag, 2020 [cit. 2023-03-13]. ISBN 978-3-527-81705-4. Dostupné z: <https://www.wiley.com/en-us/Lead+Free+Piezoelectric+Materials-p-9783527817054>
- [4] DAHIYA, Ravinder a Maurizio VALLE. *Robotic Tactile Sensing* [online]. Dordrecht: Springer Netherlands, 2013 [cit. 2023-03-12]. ISBN 978-94-007-0578-4. Dostupné z: doi:10.1007/978-94-007-0579-1
- [5] KIM, Tae, Sung KIM a Sang-Woo KIM. Application of ferroelectric materials for improving output power of energy harvesters. *Nano Convergence* [online]. 2018, **5**(1) [cit. 2023-03-13]. ISSN 2196-5404. Dostupné z: doi:10.1186/s40580-018-0163-0
- [6] KHOLKIN, A., N. PERTSEV a A. GOLTSEV. Piezoelectricity and Crystal Symmetry. In: SAFARI, Ahmad a E. Koray AKDOĞAN, ed., Ahmad SAFARI, E. AKDOĞAN. *Piezoelectric and Acoustic Materials for Transducer Applications* [online]. Boston, MA: Springer US, 2008, s. 17-38 [cit. 2023-03-13]. ISBN 978-0-387-76538-9. Dostupné z: doi:10.1007/978-0-387-76540-2\_2
- [7] KADOTA, Y., H. HOSAKA a T. MORITA. Shape Memory Piezoelectric Actuator by Control of the Imprint Electrical Field. *Ferroelectrics* [online]. 2010, **368**(1), 185-193 [cit. 2023-03-14]. ISSN 0015-0193. Dostupné z: doi:10.1080/00150190802368479
- [8] How does hysteresis affect piezo actuator performance?. In: *Linear Motion Tips* [online]. 2021 [cit. 2023-03-14]. Dostupné z: <https://www.linearmotiontips.com/how-does-hysteresis-affect-piezo-actuator-performance/>
- [9] PRADEESH, E., S. UDHAYAKUMAR, M. VASUNDHARA a G. KALAVATHI. A review on piezoelectric energy harvesting. *Microsystem Technologies* [online]. 2022, **28**(8), 1797-1830 [cit. 2023-03-16]. ISSN 0946-7076. Dostupné z: doi:10.1007/s00542-022-05334-4



- [10] LOVINGER, Andrew, D. DAVIS, R. CAIS a J. KOMETANI. On the Curie temperature of poly(vinylidene fluoride). *Macromolecules* [online]. 1986, **19**(5), 1491-1494 [cit. 2023-03-26]. ISSN 0024-9297. Dostupné z: doi:10.1021/ma00159a036
- [11] HUANG, Siyu, Jiangtao ZENG, Liaoying ZHENG, Zhenyong MAN, Xuezheng RUAN, Xue SHI a Guorong LI. A novel piezoelectric ceramic with high Curie temperature and high piezoelectric coefficient. *Ceramics International* [online]. 2020, **46**(5), 6212-6216 [cit. 2023-03-26]. ISSN 02728842. Dostupné z: doi:10.1016/j.ceramint.2019.11.089
- [12] Piezoelectric Constants. In: *APC International* [online]. [cit. 2023-03-16]. Dostupné z: <https://www.americanpiezo.com/knowledge-center/piezo-theory/piezoelectric-constants.html>
- [13] Piezo Basics. In: *CTS* [online]. [cit. 2023-03-16]. Dostupné z: <https://www.ctscorp.com/resource-center/tutorials/piezo-basics/>
- [14] XIE, Mengying, Yan ZHANG, Marcin KRAŚNY, Chris BOWEN, Hamideh KHANBAREH a Nicholas GATHERCOLE. Flexible and active self-powered pressure, shear sensors based on freeze casting ceramic–polymer composites. *Energy & Environmental Science* [online]. 2018, **11**(10), 2919-2927 [cit. 2023-03-26]. ISSN 1754-5692. Dostupné z: doi:10.1039/C8EE01551A
- [15] *Ansys® Mechanical APDL, Release 2022 R2, Help System, Theory Reference: Chapter 10.5. - Piezoelectrics, ANSYS, Inc.* [online]. [cit. 2023-03-19].
- [16] UCHINO, Kenji. *Advanced Piezoelectric Materials* [online]. 2. Woodhead Publishing, 2017 [cit. 2023-03-19]. ISBN 978-0-08-101255-0.
- [17] The Top Uses of Piezoelectricity in Everyday Applications. In: *APC International* [online]. [cit. 2023-03-19]. Dostupné z: <https://www.americanpiezo.com/blog/top-uses-of-piezoelectricity-in-everyday-applications/>
- [18] MAK, Kuok, Stewart MCWILLIAM a Atanas POPOV. Piezoelectric energy harvesting for tyre pressure measurement applications. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part D: Journal of Automobile Engineering* [online]. 2013, **227**(6), 842-852 [cit. 2023-03-20]. ISSN 0954-4070. Dostupné z: doi:10.1177/0954407012463849
- [19] BROWN, C., R. KELL, R. TAYLOR a L. THOMAS. Piezoelectric Materials, A Review of Progress. *IRE Transactions on Component Parts* [online]. 1962, **9**(4), 193-211 [cit. 2023-03-21]. ISSN 0096-2422. Dostupné z: doi:10.1109/TCP.1962.1136768
- [20] Quartz Watches: A Brief History, How They Work and More. In: *Nixon* [online]. [cit. 2023-03-21]. Dostupné z: <https://www.nixon.com/blogs/stories/how-quartz-watches-work>



- [21] Soft vs. Hard Ceramics. In: *APC International* [online]. [cit. 2023-03-19]. Dostupné z: <https://www.americanpiezo.com/piezo-theory/ceramics.html>
- [22] SAFARI, Ahmad a E. AKDOĞAN, ed. *Piezoelectric and Acoustic Materials for Transducer Applications* [online]. Boston, MA: Springer US, 2008 [cit. 2023-03-21]. ISBN 978-0-387-76538-9. Dostupné z: doi:10.1007/978-0-387-76540-2
- [23] KUMARI, Poonam, TIWARI, ASHUTOSH, Radheshyam RAI, Seema SHARMA, Mamta SHANDILYA a and ASHUTOSH TIWARI. State-of-the-art Of Lead Free Ferroelectrics: A Critical Review. *Advanced Materials Letters* [online]. 2015, **6**(6), 453-484 [cit. 2023-03-21]. ISSN 0976-397X. Dostupné z: doi:10.5185/amlett.2015.4086
- [24] SAITO, Yasuyoshi, Hisaaki TAKAO, Toshihiko TANI, Tatsuhiko NONOYAMA, Kazumasa TAKATORI, Takahiko HOMMA, Toshiatsu NAGAYA a Masaya NAKAMURA. Lead-free piezoceramics. *Nature* [online]. 2004, **432**(7013), 84-87 [cit. 2023-03-21]. ISSN 0028-0836. Dostupné z: doi:10.1038/nature03028
- [25] DENG, Anping a Jiagang WU. Enhanced strain and electrostrictive properties in lead-free BNT-based ceramics via rare earth doping. *Journal of Materiomics* [online]. 2022, **8**(2), 401-407 [cit. 2023-03-21]. ISSN 23528478. Dostupné z: doi:10.1016/j.jmat.2021.08.002
- [26] VIJATOVIC, M.M., J.D. BOBIC a B.D. STOJANOVIC. History and challenges of barium titanate: Part I. *Science of Sintering* [online]. 2008, **40**(2), 155-165 [cit. 2023-03-22]. ISSN 0350-820X. Dostupné z: doi:10.2298/SOS0802155V
- [27] KIM, Hyun a Young HAN. Sintering of nanocrystalline BaTiO<sub>3</sub>. *Ceramics International* [online]. 2004, **30**(7), 1719-1723 [cit. 2023-03-23]. ISSN 02728842. Dostupné z: doi:10.1016/j.ceramint.2003.12.141
- [28] SHIHUA, Ding, Song TIANXIU, Yang XIAOJING a Luo GUANGHUA. Effect of Grain Size of BaTiO<sub>3</sub> Ceramics on Dielectric Properties. *Ferroelectrics* [online]. 2010, **402**(1), 55-59 [cit. 2023-03-23]. ISSN 0015-0193. Dostupné z: doi:10.1080/00150191003697377
- [29] YONG-AN, HUANG, LU BIAO, ZOU YI-XUAN, LI DAN-DAN, YAO YING-BANG, TAO TAO, LIANG BO a LU SHENG-GUO. Grain Size Effect on Dielectric, Piezoelectric and Ferroelectric Property of BaTiO<sub>3</sub> Ceramics with Fine Grains. *Journal of Inorganic Materials* [online]. 2018, **33**(7) [cit. 2023-03-23]. ISSN 1000-324X. Dostupné z: doi:10.15541/jim20170289
- [30] TAN, Yongqiang, Jialiang ZHANG, Yanqing WU et al. Unfolding grain size effects in barium titanate ferroelectric ceramics. *Scientific Reports* [online]. 2015, **5**(1) [cit. 2023-03-23]. ISSN 2045-2322. Dostupné z: doi:10.1038/srep09953

- [31] BAUER, S. a F. BAUER. Piezoelectric Polymers and Their Applications. In: HEYWANG, Walter, Karl LUBITZ a Wolfram WERSING. *Piezoelectricity* [online]. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2008, s. 157-177 [cit. 2023-03-23]. Springer Series in Materials Science. ISBN 978-3-540-68680-4. Dostupné z: doi:10.1007/978-3-540-68683-5\_6
- [32] NEWNHAM, R.E., D.P. SKINNER a L.E. CROSS. Connectivity and piezoelectric-pyroelectric composites. *Materials Research Bulletin* [online]. 1978, **13**(5), 525-536 [cit. 2023-03-23]. ISSN 00255408. Dostupné z: doi:10.1016/0025-5408(78)90161-7
- [33] TAJIMA, K, H.J HWANG, M SANDO a K NIIHARA. PZT nanocomposites reinforced by small amount of oxides. *Journal of the European Ceramic Society* [online]. 1999, **19**(6-7), 1179-1182 [cit. 2023-03-25]. ISSN 09552219. Dostupné z: doi:10.1016/S0955-2219(98)00399-9
- [34] JIANSIRISOMBOON, S. a A. WATCHARAPASORN. Effects of alumina nanoparticles addition on mechanical and electrical properties of barium titanate ceramics. *Current Applied Physics* [online]. 2008, **8**(1), 48-52 [cit. 2023-03-25]. ISSN 15671739. Dostupné z: doi:10.1016/j.cap.2007.04.008
- [35] YAN, Xiaodong, Mupeng ZHENG, Mankang ZHU a Yudong HOU. Enhanced electrical resistivity and mechanical properties in BCTZ-based composite ceramic. *Journal of Advanced Dielectrics* [online]. 2019, **09**(05) [cit. 2023-04-16]. ISSN 2010-135X. Dostupné z: doi:10.1142/S2010135X1950036X
- [36] JIANSIRISOMBOON, S, A WATCHARAPASORN a T TUNKASIRI. Effects of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nano-particulates addition on barium titanate ceramics. *Chiang Mai J Sci* [online]. 2006, **33**(2), 175-182 [cit. 2023-04-16].
- [37] RATTANACHAN, Sirirat, Yukio MIYASHITA a Yoshiharu MUTOH. Fatigue behavior of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-based composite with BaTiO<sub>3</sub> piezoelectric phase. *International Journal of Fatigue* [online]. 2006, **28**(10), 1413-1419 [cit. 2023-04-16]. ISSN 01421123. Dostupné z: doi:10.1016/j.ijfatigue.2006.02.022
- [38] YE, Xinyu, Weidong ZHUANG, Chaoyong DENG, Wenxia YUAN a Zhiyu QIAO. Thermodynamic investigation on the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-BaO binary system. *Calphad* [online]. 2006, **30**(3), 349-353 [cit. 2023-04-16]. ISSN 03645916. Dostupné z: doi:10.1016/j.calphad.2005.12.004

- [39] CHLUP, Zdeněk, Daniel DRDLÍK, Martin FIDES, Alexandra KOVALČÍKOVÁ a Hynek HADRABA. Properties of BaTiO<sub>3</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Laminate Structure by Nanoindentation. *Procedia Structural Integrity* [online]. 2019, **23**, 499-504 [cit. 2023-05-06]. ISSN 24523216. Dostupné z: doi:10.1016/j.prostr.2020.01.135
- [40] ARMSTRONG, Timothy, Laurie MORGENS, Alena MAURICE a Relva BUCHANAN. Effects of Zirconia on Microstructure and Dielectric Properties of Barium Titanate Ceramics. *Journal of the American Ceramic Society* [online]. 1989, **72**(4), 605-611 [cit. 2023-05-06]. ISSN 0002-7820. Dostupné z: doi:10.1111/j.1151-2916.1989.tb06182.x
- [41] OKSUZ, K.E., S. SEN a U. SEN. Influence of ZrO<sub>2</sub> Addition on the Structure and Dielectric Properties of BaTiO<sub>3</sub> Ceramics. *Acta Physica Polonica A* [online]. 2017, **131**(1), 197-199 [cit. 2023-05-06]. ISSN 0587-4246. Dostupné z: doi:10.12693/APhysPolA.131.197
- [42] Zirconia - ZrO<sub>2</sub>. In: *AZoMaterials* [online]. [cit. 2023-05-06]. Dostupné z: <https://www.azom.com/properties.aspx?ArticleID=133>
- [43] Aluminium Oxide - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. In: *AZoMaterials* [online]. [cit. 2023-05-06]. Dostupné z: <https://www.azom.com/properties.aspx?ArticleID=52>
- [44] ADACHI, M., Y. AKISHIGE, T. ASAHI et al. BaTiO<sub>3</sub> (cubic) [F] Tables, 1A-10. In: SHIOZAKI, Y., E. NAKAMURA a T. MITSUI, ed., Y. SHIOZAKI, E. NAKAMURA, T. MITSUI. *Oxides* [online]. Berlin/Heidelberg: Springer-Verlag, 2002, s. 1-30 [cit. 2023-05-06]. Landolt-Börnstein - Group III Condensed Matter. ISBN 3-540-63274-3. Dostupné z: doi:10.1007/10426842\_10
- [45] JAYASUNDERE, N. a B. SMITH. Dielectric constant for binary piezoelectric 0-3 composites. *Journal of Applied Physics* [online]. 1993, **73**(5), 2462-2466 [cit. 2023-04-08]. ISSN 0021-8979. Dostupné z: doi:10.1063/1.354057
- [46] PAL, Rajinder. New models for effective Young's modulus of particulate composites. *Composites Part B: Engineering* [online]. 2005, **36**(6-7), 513-523 [cit. 2023-04-08]. ISSN 13598368. Dostupné z: doi:10.1016/j.compositesb.2005.02.003
- [47] WANG, Biao. Effective Behavior of Piezoelectric Composites. *Applied Mechanics Reviews* [online]. 1994, **47**(1), 112-121 [cit. 2023-04-08]. ISSN 0003-6900. Dostupné z: doi:10.1115/1.3122806
- [48] MORI, T a K TANAKA. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta Metallurgica* [online]. 1973, **21**(5), 571-574 [cit. 2023-04-08]. ISSN 00016160. Dostupné z: doi:10.1016/0001-6160(73)90064-3
- [49] KERNER, E H. The Elastic and Thermo-elastic Properties of Composite Media. *Proceedings of the Physical Society. Section B* [online]. 1956, **69**(8), 808-813 [cit. 2023-05-01]. ISSN 0370-1301. Dostupné z: doi:10.1088/0370-1301/69/8/305
- [50] *Ansys® Mechanical APDL, Release 2022 R2, Help System, Element Reference: Chapter 7. - Element Library, ANSYS, Inc.* [online]. [cit. 2023-04-08].

- [51] GODEC, Genevieve a Karen LIVESEY. Computing the effective permittivity of composite materials using a finite difference method. *American Journal of Physics* [online]. 2019, **87**(6), 465-470 [cit. 2023-04-14]. ISSN 0002-9505. Dostupné z: doi:10.1119/1.5102146
- [52] MARUTAKE, Masakazu a Takuro IKEDA. Anisotropy in Polarized Barium Titanate Ceramics. *Journal of the Physical Society of Japan* [online]. 1957, **12**(3), 233-240 [cit. 2023-05-09]. ISSN 0031-9015. Dostupné z: doi:10.1143/JPSJ.12.233
- [53] *Brno University of Technology, Central European Institute of Technology (CEITEC)*.
- [54] DRDLIK, Daniel, Dominik ZEMAN, Pavel TOFEL, Zdenek CHLUP, Hynek HADRABA a Katarina DRDLIKOVA. A comparative study of direct and indirect evaluation of piezoelectric properties of electrophoretically deposited (Ba, Ca) (Zr, Ti)O<sub>3</sub> lead-free piezoceramics. *Ceramics International* [online]. 2021, **47**(2), 2034-2042 [cit. 2023-05-20]. ISSN 02728842. Dostupné z: doi:10.1016/j.ceramint.2020.09.035
- [55] SMITH, Millicent, Katharine PAGE, Theo SIEGRIST, Peter REDMOND, Erich WALTER, Ram SESHADRI, Louis BRUS a Michael STEIGERWALD. Crystal Structure and the Paraelectric-to-Ferroelectric Phase Transition of Nanoscale BaTiO<sub>3</sub>. *Journal of the American Chemical Society* [online]. 2008, **130**(22), 6955-6963 [cit. 2023-05-20]. ISSN 0002-7863. Dostupné z: doi:10.1021/ja0758436
- [56] BUSCAGLIA, M.T., V. BUSCAGLIA, M. VIVIANI, P. NANNI a M. HANUSKOVA. Influence of foreign ions on the crystal structure of BaTiO<sub>3</sub>. *Journal of the European Ceramic Society* [online]. 2000, **20**(12), 1997-2007 [cit. 2023-05-20]. ISSN 09552219. Dostupné z: doi:10.1016/S0955-2219(00)00076-5
- [57] HWANG, H. a K NIIHARA. Perovskite-type BaTiO<sub>3</sub> ceramics containing particulate SiC: Part II Microstructure and mechanical properties. *Journal of Materials Science* [online]. 1998, **33**(2), 549-558 [cit. 2023-05-19]. ISSN 00222461. Dostupné z: doi:10.1023/A:1004365006839
- [58] CHEN, Zhangwei, Ziyong LI, Junjie LI et al. 3D printing of ceramics: A review. *Journal of the European Ceramic Society* [online]. 2019, **39**(4), 661-687 [cit. 2023-05-10]. ISSN 09552219. Dostupné z: doi:10.1016/j.jeurceramsoc.2018.11.013

# SEZNAM POUŽITÝCH ZKRATEK A SYMBOLŮ

<i>symbol</i>	<i>jednotka</i>	<i>popis</i>
$a$	[mm]	délka poloosy elipsoidu rovnoběžné se směrem polarizace
$b$	[mm]	délka poloosy elipsoidu kolmé na směr polarizace
$C$	[F]	elektrická kapacita
$c^D$	[Pa]	tuhost při zapojení typu „open-circuit“
$c^E$	[Pa]	tuhost při zapojení typu „shot-circuit“
$D$	$\left[\frac{C}{m^2}\right]$	elektrická indukce
$d_{ij}$	$\left[\frac{C}{N}\right]$	piezoelektrický nábojový koeficient
$d_{p_0}, d_{p_f}$	[mm]	počáteční, resp. konečný průměr částic
$d_{r_{in}}, d_{r_{out}}$	[mm]	vnitřní, resp. vnější průměr reakční vrstvy
$E$	[Pa]	efektivní Youngův modul pružnosti kompozitu
$E_m, E_p, E_r$	[Pa]	Youngův modul pružnosti matrice, částic, reakční vrstvy
$\mathcal{E}$	$\left[\frac{V}{m}\right]$	intenzita elektrického pole
$[e]$	$\left[\frac{C}{m^2}\right]$	piezoelektrická matice napětí
$g_{ij}$	$\left[\frac{Vm}{N}\right]$	piezoelektrický napěťový koeficient
$H$	[Pa]	tvrdost
$k_{ij}$	[–]	piezoelektrický coupling koeficient
$n_p$	[–]	počet částic v modelu
$p_e$	[–]	poměr poloos elipsoidu
$p_r$	[–]	objemový podíl částic přeměněný na reakční vrstvu
$Q$	[C]	elektrický náboj
$s^D$	$[Pa^{-1}]$	poddajnost při zapojení typu „open-circuit“
$s^E$	$[Pa^{-1}]$	poddajnost při zapojení typu „short-circuit“
$\{S\}$	[–]	tenzor přetvoření
$T_C$	[°C]	Curieova teplota
$\{T\}$	[Pa]	tenzor mechanického napětí
$t_{100\text{ MPa}}$	[–]	tloušťka oblasti, kde $\sigma_1 > 100\text{ MPa}$
$v_p$	[–]	objemový podíl částic
$\alpha$	$[K^{-1}]$	efektivní součinitel teplotní roztažnosti kompozitu
$\alpha_m, \alpha_p, \alpha_r$	$[K^{-1}]$	součinitel teplotní roztažnosti matrice, částic, reakční vrstvy
$\Delta T$	[°C]	změna teploty
$\varepsilon$	[–]	přetvoření
$\epsilon$	$\left[\frac{F}{m}\right]$	permitivita

$\epsilon^S$	$\left[\frac{F}{m}\right]$	permitivita při konstantním přetvoření
$\epsilon^T$	$\left[\frac{F}{m}\right]$	permitivita při konstantním mechanickém napětí
$\epsilon_0$	$\left[\frac{F}{m}\right]$	permitivita vakua
$\epsilon_r$	$[-]$	relativní permitivita kompozitu
$\epsilon_{r_m}, \epsilon_{r_p}, \epsilon_{r_r}$	$[-]$	relativní permitivita matrice, částic, reakční vrstvy
$\mu$	$[-]$	Poissonův poměr
$\nu$	$[-]$	variační koeficient
$\sigma$	[Pa]	mechanické napětí
$\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$	[Pa]	první, druhé, resp. třetí hlavní napětí
$\sigma_{1,castice}$	[Pa]	průměrné první hlavní napětí v částici
$\sigma_{1,max}$	[Pa]	maximální první hlavní napětí v kompozitu
$\sigma_{1,vrstva}$	[Pa]	průměrné první hlavní napětí v reakční vrstvě
$\theta$	$[-]$	poměr, jakým se na vzniku reakční vrstvy podílejí matrice a částice
$\varphi$	[V]	elektrický potenciál

*zkratka*

*význam*

---

APDL	Ansys Parametric Design Language
AVČR	Akademie věd České republiky
BNT	barium neodmium titanate
BTO	barium titanate
CEITEC	Central European Institute of Technology
CS	conventional sintering
GAČR	Grantová agentura České republiky
HW	hardware
KNN	potassium–sodium niobate
MKP	metoda konečných prvků
PVDF	polyvinildenfluorid
PZT	lead zirconate titanate
SAW	surface acoustic wave
SPS	spark plasma sintering
ÚFM	Ústav fyziky materiálů
XRD	rentgenová difrakční analýza