

Modélisation énergétique du comportement des céramiques ferroélectriques autour de la polarisation rémanente

Chaimae Babori^{1,2}, Mahmoud Barati^{1,2,3}, Laurent Daniel^{1,2},

¹Université Paris-Saclay, CentraleSupélec, CNRS, Laboratoire de Génie Electrique et Electronique de Paris, 91192 Gif-sur-Yvette, France.

²Sorbonne Université, CNRS, Laboratoire de Génie Electrique et Electronique de Paris, 75252, Paris, France

³Institut Polytechnique des Sciences Avancées, IPSA, 63 Boulevard de Brandebourg, 94200, Ivry-sur-Seine, France

E-mail address: chaimae.babori@centralesupelec.fr

Les matériaux ferroélectriques sont utilisés comme actionneurs et capteurs dans une large gamme d'applications, offrant un temps de réponse court, des forces d'actionnement élevées et un positionnement précis. Les matériaux ferroélectriques présentent une réponse irréversible lorsqu'ils sont soumis à un chargement électromécanique au-delà du champ coercitif ou de la contrainte coercitive. Le mécanisme à l'origine de ce phénomène est appelé réorientation des domaines.

Le processus de réorientation est régi par des principes énergétiques. Dans ce travail, un modèle énergétique est développé pour décrire le comportement hystérétique non linéaire des céramiques ferroélectriques. La nouveauté de ce modèle réside dans sa capacité à générer des cycles d'hystérésis ferroélectrique pour des amplitudes faibles du champ électrique autour de la polarisation rémanente.

Mots-clés : Cycles mineurs, Ferroélectricité, Modélisation.

1. INTRODUCTION

Les céramiques ferroélectriques présentent un changement macroscopique de polarisation et de déformation lorsqu'elles sont soumises à un chargement externe. Dans la plupart des applications, un fonctionnement en régime linéaire autour du point de polarisation rémanente (P_r sur la figure 1) est visé. Cependant, ce régime présente en réalité une non-linéarité non négligeable, principalement due à la réorientation des domaines, ce qui explique le besoin de modèles d'hystérésis.

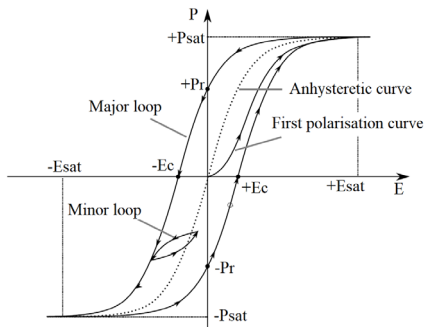


Fig. 1. Boucle d'hysteresis ferroelectrique

L'objectif principal de cette étude est de développer un modèle capable de prédire l'évolution de la polarisation et de la déformation sous chargement unipolaire.

La nouveauté de ce modèle réside dans sa capacité à décrire le comportement non linéaire des matériaux ferroélectriques sous faible champ électrique autour de la polarisation rémanente.

Contrairement aux modèles énergétiques proposés précédemment, où l'énergie libre est définie de manière purement phénoménologique, la définition de l'énergie libre est ici basée sur une approche multi-échelle décrivant la fraction volumique des domaines ferroélectriques [1].

2. ETUDE EXPERIMENTALE

Le matériau étudié est un matériau piézoélectrique doux, de désignation commerciale PIC 153 de PI ceramics. Les dimensions des éprouvettes sont $4 \times 4 \times 4 \text{ mm}^3$. Des électrodes en argent sont déposées sur deux surfaces opposées perpendiculaires à la direction de polarisation.

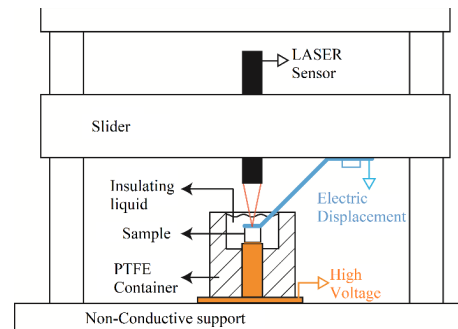


Fig. 2. Schéma du banc de mesure

Le banc d'essai utilisé pour les mesures de déformation et de déplacement diélectrique est décrit à la Fig. 2 [2].

L'échantillon est placé entre deux fixations, isolé électriquement et immergé dans un fluide isolant (Fluorinert™ FC-770, 3 M) pour éviter le risque d'arc électrique. Le champ électrique E est produit par un amplificateur haute tension (Trek 20/20C-HS) et contrôlé par un module Dspace en temps réel.

Le déplacement diélectrique D est mesuré à partir de l'électrode supérieure de l'échantillon à l'aide d'un circuit intégrateur de charges de capacité 2057nF [3] et enregistré à l'aide du module Dspace.

3. MODELISATION

3.1. Equations constitutives

Le modèle d'hystérésis proposé est basé sur le principe de conservation d'énergie. La première et la deuxième loi de la thermodynamique peuvent être exprimées par l'inégalité de Clausius-Duhem :

$$\Delta = \mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{P}} - \dot{\psi} \geq 0 \quad (1)$$

Δ est la dissipation, ψ est l'énergie libre et $\mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{P}}$ est le travail du chargement électrique appliqué sur le matériau.

Pour des raisons de simplification, nous considérons que l'énergie libre dépend uniquement de la polarisation.

Dans le cas d'un comportement réversible, la dissipation est nulle. Par conséquent, la variation de l'énergie libre peut être exprimé comme suit :

$$\dot{\psi} = \mathbf{E}_{\text{rev}} \cdot \dot{\mathbf{P}}, \quad \mathbf{E}_{\text{rev}} = \frac{\partial \psi}{\partial \mathbf{P}} \quad (2)$$

Dans les matériaux ferroélectriques, la réponse dissipative non linéaire résulte du mouvement des parois de domaine caractérisé par une dynamique d'accrochage-décrochage.

En suivant une analogie mécanique, le champ électrique est associé à la force appliquée et la polarisation correspond donc au déplacement. Le champ électrique appliqué est décomposé en un champ électrique réversible \mathbf{E}_{rev} et irréversible \mathbf{E}_{irr} .

La partie réversible agit comme une force de ressort, tandis que la partie irréversible régie par le champ d'accrochage est similaire à une force de frottement. La force de frottement est activée lorsque la norme du champ électrique appliqué dépasse le seuil du champ d'accrochage κ .

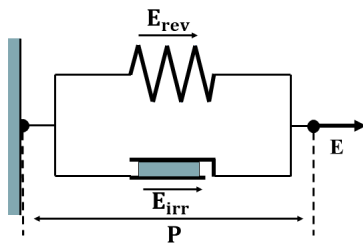


Fig. 3. Analogie mécanique du modèle énergétique [4]

Il est connu que le champ coercitif des matériaux ferroélectriques est lié à la transition accrochage-décrochage des parois de domaines.

La dissipation dépend de la variation des paramètres internes et est supposée analogue au travail généré par une force de frottement.

$$\Delta = \kappa |\dot{\mathbf{P}}| \quad (3)$$

κ est l'intensité du champ d'accrochage. Dans ce travail, nous supposons que tout le travail associé à la partie irréversible du comportement ferroélectrique est dissipé. La dissipation peut être exprimée en fonction du champ électrique irréversible.

$$\Delta = \mathbf{E}_{\text{irr}} \cdot \dot{\mathbf{P}} \quad (4)$$

La nouvelle relation d'équilibre devient :

$$(\mathbf{E} - \mathbf{E}_{\text{irr}} - \mathbf{E}_{\text{rev}}) \cdot \dot{\mathbf{P}} = 0 \quad (5)$$

L'équation ci-dessus n'est pas différentiable lorsque $\dot{\mathbf{P}} = 0$.

La fonction étant convexe, nous pouvons considérer \mathbf{E}_{irr} comme un ensemble de sous-gradients de la fonction Δ et non plus comme un gradient à une seule valeur.

L'équation fondamentale du modèle énergétique peut être trouvée en combinant les équations précédemment citées, et est présentée ci-dessous :

$$\begin{aligned} \mathbf{E} - \mathbf{E}_{\text{rev}} - \mathbf{E}_{\text{irr}} = \mathbf{0} &\rightarrow \mathbf{E} - \frac{\partial \psi}{\partial \mathbf{P}} \in \partial \Delta(\dot{\mathbf{P}}) \\ &= \begin{cases} \mathbf{E}_{\text{irr}}, & |\mathbf{E}_{\text{irr}}| \leq \kappa \text{ if } \dot{\mathbf{P}} = 0 \\ \mathbf{E}_{\text{irr}} = \kappa \frac{\dot{\mathbf{P}}}{|\dot{\mathbf{P}}|} & \text{sinon} \end{cases} \end{aligned}$$

Ce modèle énergétique est basé sur les principes de conservation de l'énergie. La polarisation est obtenue par minimisation d'un potentiel thermodynamique $\Omega^k(\mathbf{E}, \mathbf{P}^k)$.

Pour tenir compte de la nature progressive des mécanismes de polarisation, le modèle considère plusieurs cellules caractérisées par des intensités différentes des champs d'accrochage [5] :

- κ^k : intensité du champ d'accrochage,
- ω^k : poids du champ d'accrochage κ^k .

La polarisation est obtenue en moyennant la réponse de toutes les cellules considérées.

$$\Omega^k(\mathbf{E}, \mathbf{P}^k) = \psi(\mathbf{P}^k) - \mathbf{E} \cdot \mathbf{P}^k + \kappa^k |\dot{\mathbf{P}}^k| \quad (6)$$

L'expression de l'énergie libre est approximée à l'aide de la courbe obtenue en appliquant un modèle multi-échelle simplifié ajusté à une fonction de saturation scalaire.

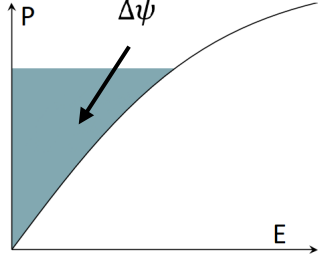


Fig. 4. Courbe de polarisation anhystérique réversible

3.2. Procédure d'identification

La procédure d'identification des paramètres est effectuée sur des échantillons non polarisés. Un champ électrique uniaxial cyclique d'amplitude croissante est appliqué sur les échantillons.

Le déplacement électrique et la déformation sont enregistrés et utilisés pour construire les courbes d'hystérésis ferroélectrique.

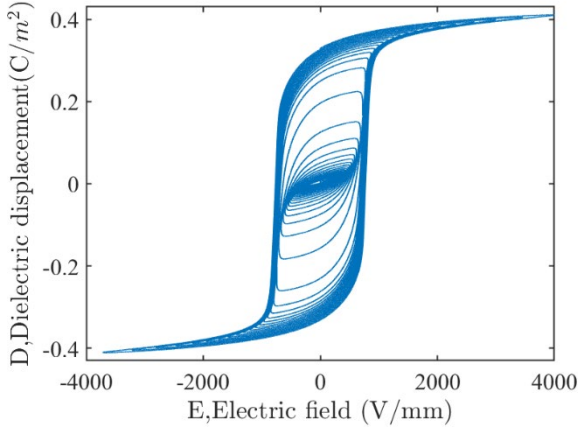


Fig. 5. Boucles d'hystérésis pour 48 niveaux d'amplitude de champ électrique appliqué sur PIC153

Une méthode d'identification développée initialement pour les matériaux ferromagnétiques par *Henrotte et al.* [6] a été reprise. Le champ coercitif peut être obtenu en appliquant une tension avec des amplitudes croissantes et peut être mesuré à partir des boucles d'hystérésis résultantes.

Commençant d'un état dépolarisé du matériau où $E_{rev}^k = 0$, un champ électrique uniaxial est appliqué au matériau allant de $E = 0$ jusqu'à $E = E_m$.

La polarisation dans chaque cellule suit l'équation fondamentale du modèle énergétique.

L'état diélectrique de chaque cellule change lorsque le champ électrique appliqué dépasse l'intensité du champ d'accrochage propre à la cellule. Nous trouvons pour chaque cellule, après chargement :

$$E_{rev}^k = E_m - \kappa^k \quad (7)$$

Une fonction auxiliaire est construite en utilisant la courbe du champ coercitif en fonction de l'amplitude du champ électrique appliqué (Fig.6).

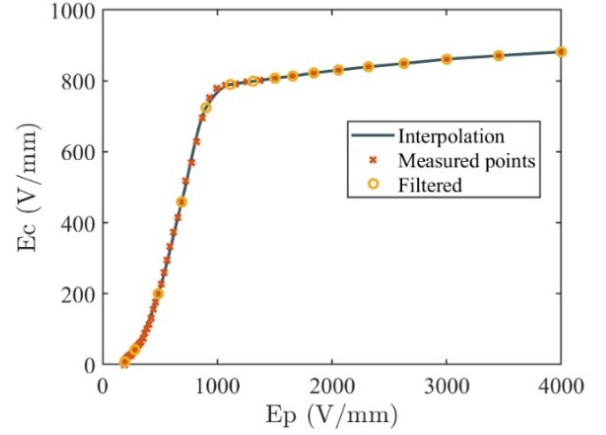


Fig. 6. Champ coercitif en fonction de l'amplitude du champ électrique appliqué sur PIC 153

La fonction auxiliaire est définie par :

$$E_{rev}(0 \rightarrow E_m) = \int_0^\infty \omega(\kappa^k) \max(E_m - \kappa^k, 0) d\kappa^k = F(E_m) \quad (8)$$

Dont les dérivées première et seconde sont respectivement :

$$\partial_E F(E) = \int_0^E \omega(\kappa^k) d\kappa^k, \quad \partial_E^2 F(E) = \omega(E) \quad (9)$$

La fonction auxiliaire satisfait les conditions suivantes :

- $F(0) = 0$,
- $F(E) = E - E_{c,max} \forall E > E_{sat}$
- $F(E) = \alpha E \forall E < E_{sat}$

E_{sat} est le champ électrique à saturation et α est un paramètre matériau.

La courbe résultante est lisse (Fig.7), ce qui nous permettra de calculer les valeurs des dérivées première et seconde de $F(E)$ à l'aide de la méthode des différences finies.

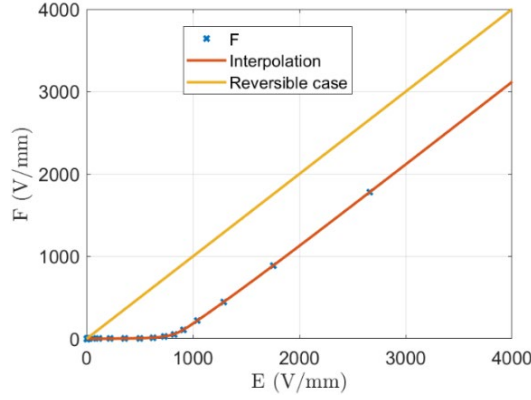


Fig. 7. Fonction auxiliaire pour différentes amplitudes de champ électrique pour PIC 153

Les termes de la dérivée première sont utilisés pour calculer la dérivée seconde de la fonction auxiliaire qui représente la densité de probabilité du champ d'accrochage.

Pour la mise en œuvre numérique, la densité de probabilité continue $\omega(\kappa^k)$ est discrétisée. Le champ d'accrochage est divisé en N cellules.

La figure 8 montre la densité de probabilité du champ d'accrochage κ^k après discrétisation pour des échantillons PIC153. Chaque valeur de l'intensité du champ d'accrochage κ^k a sa propre probabilité correspondante.

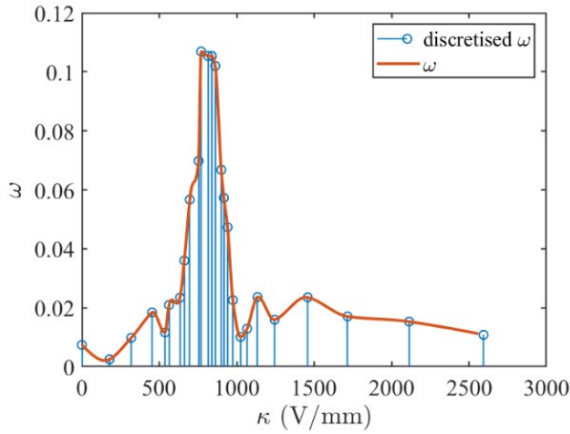


Fig.8. Discrétisation de la densité de probabilité du champ d'accrochage

4. RESULTATS

Pour mettre en évidence la capacité du modèle énergétique à décrire le comportement ferroélectrique autour d'un point de polarisation rémanente, une comparaison est réalisée entre les boucles mineures générées par le modèle et les résultats expérimentaux pour un chargement unipolaire de faible amplitude. (Fig. 9 et 10).

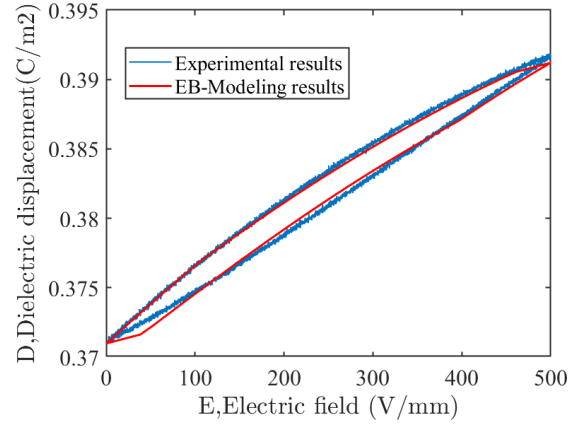


Fig. 9. Boucles d'hystérésis mineures pour un champ électrique unipolaire, autour de la polarisation rémanente pour PIC153 pour une amplitude $E = 500$ (V/mm)

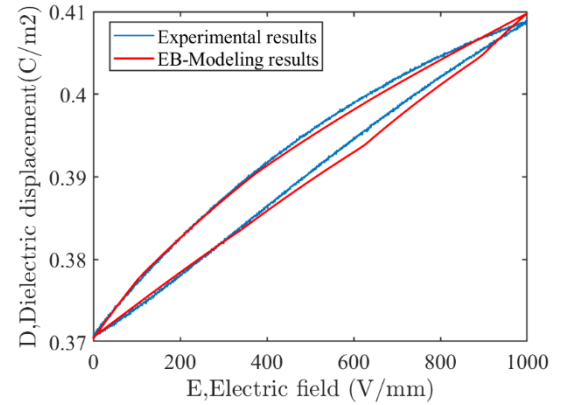


Fig. 10. Boucles d'hystérésis mineures pour un champ électrique unipolaire, autour de la polarisation rémanente pour PIC153 pour une amplitude $E = 1000$ (V/mm)

5. CONCLUSION

Dans cette étude, un modèle énergétique est développé pour décrire l'hystérésis ferroélectrique. L'énergie libre est définie à partir d'un modèle multi-échelle simplifié et la dissipation est choisie par analogie à celle associée aux forces de frottement sec.

Une approche multi-cellules est adoptée pour caractériser le champ d'accrochage à l'échelle microscopique.

Les résultats du modèle sont comparés aux résultats expérimentaux dans un cas de chargement électrique unipolaire et un bon accord avec les résultats expérimentaux est obtenu.

REFERENCES

- [1] L. Daniel, D.A. Hall, P.J. Withers, A multiscale model for reversible ferroelectric behaviour of polycrystalline ceramics, *Mech. Mater.* 71 (2014) 85–100. <https://doi.org/10.1016/j.mechmat.2014.01.006>.
- [2] V. Segouin, M. Domenjoud, Y. Bernard, L. Daniel, Mechanics-aided digital image correlation for the investigation of piezoelectric and ferroelectric behaviour of a soft PZT, *J. Eur. Ceram. Soc.* 39 (2019) 2091–2102. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2018.12.058>.
- [3] V. Segouin, M. Domenjoud, Y. Bernard, L. Daniel, Development of a 2D DIC experimental tool for piezoelectric strains measurements, in: *Conf. Proc. Soc. Exp. Mech. Ser.*, Springer, Cham, 2017: pp. 45–50. https://doi.org/10.1007/978-3-319-51439-0_11.
- [4] K. Jacques, S. Steentjes, F. Henrotte, C. Geuzaine, K. Hameyer,

Representation of microstructural features and magnetic anisotropy of electrical steels in an energy-based vector hysteresis model, AIP Adv. 8 (2018). <https://doi.org/10.1063/1.4994199>.

- [5] A. Bergqvist, Magnetic vector hysteresis model with dry friction-like pinning, Phys. B Condens. Matter. 233 (1997) 342–347. [https://doi.org/10.1016/S0921-4526\(97\)00319-0](https://doi.org/10.1016/S0921-4526(97)00319-0).
- [6] F. Henrotte, A. Nicolet, K. Hameyer, An energy-based vector hysteresis model for ferromagnetic materials, COMPEL - Int. J. Comput. Math. Electr. Electron. Eng. 25 (2006) 71–80. <https://doi.org/10.1108/03321640610634344>.