

## PZT 95/5 陶瓷电致失效机理研究\*

张福平 杜金梅 刘雨生 刘 艺 刘高旻 贺红亮†

(中国工程物理研究院流体物理研究所冲击波物理与爆轰物理实验室, 绵阳 621900)

(2010年6月6日收到; 2010年9月8日收到修改稿)

对 PZT 95/5 陶瓷在直流电场、脉冲方波电场以及半正弦波电场作用下的失效机理进行了理论和实验分析. 结果表明: 在直流作用下, 其失效机理以热-电耦合失效为主; 而在脉冲电场作用下, 考虑振动冲击效应以及相关的力谱分布, 脉宽越短, 能量向高频偏移, 越可能发生力-电耦合失效; 当脉宽增加, PZT 95/5 陶瓷失效机理将从力-电耦合失效逐步转变成直流失效模式.

**关键词:** PZT 95/5, 失效机理, 直流电场, 脉冲电场

**PACS:** 77. 84. Cg, 77. 22. Jp

## 1. 引言

钙钛矿结构的铁电陶瓷在可实现的电场信号下引起较大的致动, 它具有较高的机电转换效率及良好的性能可控性, 因而铁电陶瓷广泛应用于制动器、微定位器等机敏元件. 同时, 随着铁电薄膜制备技术的突破使得铁电体薄膜与半导体器件集成变成可能, 从而导致了以铁电存储器为代表的新型信息功能器件和系统的开发与应用. 铁电陶瓷高的机电转换效率带来良好的应用价值的同时, 也是造成铁电陶瓷在极化、检测、以及使用过程中失效的原因之一. 这是由于铁电陶瓷本身属于脆性材料, 而在外加电场过程中由于电力转换的作用, 不可避免带来机械应力, 最终成为铁电陶瓷的电致断裂诱因<sup>[1-3]</sup>.

目前, 对于直流及交变电场下铁电陶瓷的电致断裂已经有不少报道. 对未极化 PZT 陶瓷, McHenry 和 Koepke 发现外加电场促进垂直于电场方向的裂纹扩展<sup>[4]</sup>. 对于已经极化的陶瓷, Wang 和 Singh 用维氏刻痕预制裂纹的方法研究极化了 PZT 陶瓷在低电场下 ( $< 1.0 \text{ kV/mm}$ ) 的裂纹扩展情况, 其发现在正向电场作用下, 虽然 PZT 基体受到拉应力作用, 而裂纹的扩展却受到电场屏蔽效应产生的压应

力环的阻碍; 在反向电场作用下, 裂纹的扩展反而得到促进<sup>[5]</sup>. 而在其他人研究中, 正向直流电场究竟是促进裂纹扩展或阻碍裂纹的扩展尚无明确定论<sup>[6-8]</sup>.

对于制动器以及铁电存储器等铁电功能器件, 在检测和使用过程中会外加脉冲电场, 而脉冲电场下铁电陶瓷的失效机理还未见相关报道. 本文以 PZT 95/5 铁电陶瓷为研究对象, 分别对 PZT 95/5 外加正向直流、脉冲电场(方波、半正弦波)的失效机理进行了初步研究, 三种失效效应(热、静力学、动力学)被考虑. 结果表明直流失效伴随热失效, 而脉冲电场作用下的失效以力学振动失效为主.

## 2. 三种失效效应分析

为了简化问题, PZT 95/5 陶瓷外加电场方向与极化方向一致(正向电场), 避免了反向电场带来的电畴的反转带来的更复杂的因素. PZT 95/5 外加陶瓷直流、脉冲方波、脉冲半正弦波的最大电场幅度为  $E_{\max}$ , 其电场表达式分别为

$$E_{\text{DC}} = E_{\max}, \quad -\infty < t < \infty, \quad (1)$$

$$E_{\text{PR}} = \begin{cases} E_{\max}, & |t| \leq T/2, \\ 0, & |t| > T/2, \end{cases} \quad (2)$$

\* 冲击波物理与爆轰物理国防科技重点实验室基金(批准号: 2010A0201005), 中国工程物理研究院科学技术基金(批准号: 9140C67020309004)资助的课题.

† 通讯人联系. E-mail: Honglianghe@263.com

$$E_{ps} = \begin{cases} E_{max} \sin \frac{\pi}{T} t, & t \in [0, T], \\ 0, & t \notin [0, T], \end{cases} \quad (3)$$

式中  $E_{DC}$  为直流电场、 $E_{PR}$  为脉冲方波电场、 $E_{PS}$  为脉冲半正弦波电场、 $T$  为脉宽、 $t$  为时间. 上述直流电场波形脉冲方波脉冲半正弦波电场如图 1 所示所示.

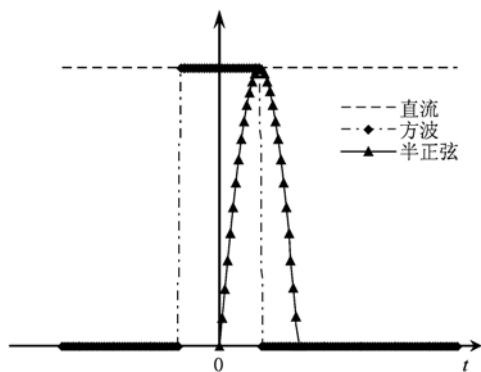


图 1 直流、脉冲方波以及半正弦波电场示意图

众所周知,绝缘介质的击穿失效分为本征击穿和非本征击穿,对于实际固体绝缘介质,其击穿失效一般为非本征击穿,击穿过程往往伴随热的、机械过程<sup>[9]</sup>. 同时,对于 PZT 95/5 陶瓷,由于电滞伸缩效应的存在,其在外加电场同时产生大的机械应力和机械应变. 下面分别从热效应和机械效应两方面讨论 PZT 95/5 在直流和脉冲正电场作用下的失效机理.

### 2.1. 热效应

热失效是由于电介质中存在传导电流或交变电场下的位移电流所引起的发热量来不及散失而使局部介质温度升高,直至丧失绝缘性能而遭到热破坏. 对于 PZT 95/5 陶瓷,热量来自电场对其做功(电场做功转化为热量和机械能),其热功率表达式为

$$W = U^2/R, \quad (4)$$

式中  $U$  为电压、 $R$  为 PZT95/5 陶瓷电阻. 所获得的总热量表达式为

$$Q = \int_{-\infty}^{\infty} W dt = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{U^2}{R} dt, \quad (5)$$

式中  $Q$  为热量. 对于 PZT 95/5 陶瓷其电阻率为  $10^{13} \Omega \cdot m$  以上,由(4)式知,其产生热功率  $W$  较小. 考虑到散热,正常情况下, PZT 95/5 陶瓷的温度不会急剧上升而造成热击穿或热失效. 但在某种特殊情况下, PZT 95/5 陶瓷内部含有缺陷(裂纹、孔隙、

导电杂质等),使陶瓷局部区域电阻率下降,局部区域发热而造成局部介质温度升高,最终造成热电耦合击穿. 这种情况常见于直流击穿,直流击穿区域为肉眼可见黑点,用扫描电镜对直流击穿区域进行分析(图 2 所示),在击穿通道周边形成非常明显的熔融区(图 2 中的球形颗粒为 PZT 95/5 基体受热液化或汽化后快速凝固产生,熔融区附近 PZT 95/5 陶瓷无明显晶粒,其为液相急冷产生的非晶态),也就是说在直流击穿伴随大量热量产生. 而对于脉冲电场作用下,特别是脉宽为微秒级,这种现象很少观察到,相对于直流,脉冲电场作用时间很短,根据(5)式,其发热量远低于直流电场,所以热失效在短脉冲电场作用下很少观察到. 在同样脉冲宽度和最大幅值情况下,根据(5)式,脉冲方波发热量大于脉冲半正弦电场. 综上所述,考虑到热效应,直流电场热效应大于脉冲电场,而脉冲方波要大于脉冲半正弦电场.

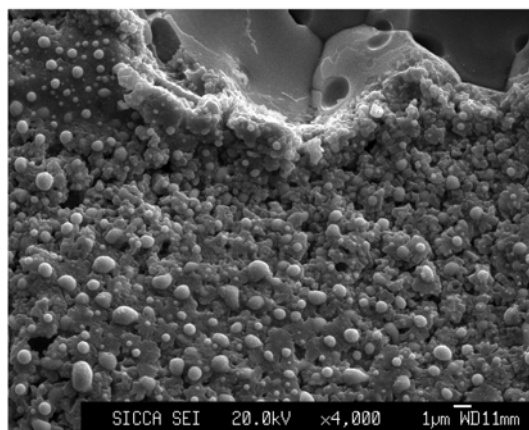


图 2 直流击穿部位扫描电镜图,可见明显的熔融区

### 2.2. 静力学效应

极化了的 PZT 95/5 陶瓷具有较强的电滞伸缩特性,也就是说外加电场作用下, PZT 95/5 陶瓷内部产生应力,这种力电关系可由压电方程给出,其电场方向应力  $\sigma_3$  (也就是应力最大方向)表达式为

$$\sigma_3 = e_{33} E_3 = \frac{d_{33}}{C_{33}^E} E_3, \quad (6)$$

式中  $E_3$  为外加电场,  $e_{33}$  为压电应力常数张量,  $d_{33}$  为压电刚度常数张量(64 pC/N),  $C_{33}^E$  是弹性柔顺系数( $21 \times 10^{-12} m^2/N$ ). 如取  $E_3$  为 3 kV/mm, 根据(6)式,  $\sigma_3$  为 PZT 95/5 基体所受的拉应力,计算值为 10.5 MPa. PZT 95/5 陶瓷的强度一般远高于此应力

值,理论上,在此应力幅度不会发生应力破坏.而在脉冲高电压检测过程中,发现有陶瓷发生开裂现象,其裂口断口扫描电镜照片如图3所示,其断口处无明显烧蚀及熔融区(晶粒保持完整),属于典型的力学失效断口.从(6)式计算得到的应力远低于力学失效值,而且Wang和Singh<sup>[4]</sup>认为正电场作用下(<1 kV/mm),裂纹扩展受电场屏蔽效应产生的压应力环的阻碍,与本文观察到脉冲正电场下PZT 95/5陶瓷失效相矛盾.究其原因,由于PZT 95/5外加电场高达3 kV/mm,考虑到裂纹间隙出空气相对介电常数(1)与PZT 95/5陶瓷的相对介电常数(230)失配,Wang和Singh<sup>[4]</sup>认为裂纹处形成5—10倍电场集中.在外加电场很低情况下,可以形成电场屏蔽效应产生的压应力环;而外加电场达到3 kV/mm,考虑电场集中,其电场强度已经达到15—30 kV/mm,裂纹区域附近不可避免发生电击穿(裂纹导通),电场屏蔽效应被消除,裂纹受拉应力而不是压应力,应力幅度由下式给出:

$$\sigma_c = \alpha \sigma_3, \quad (7)$$

式中 $\sigma_c$ 为裂纹所受应力幅度, $\alpha$ 为应力集中因子,其由裂纹长径比决定.假设 $\alpha$ 为10,裂纹所受拉应力达到105 MPa,此应力幅度可使裂纹扩展而发生力学失效.

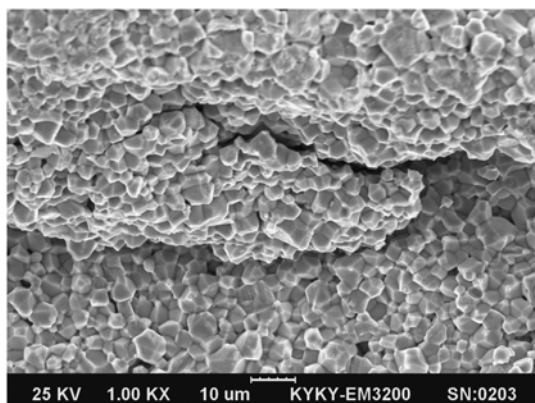


图3 脉冲电场失效部位扫描电镜图,无明显熔融区

### 2.3. 动力学效应

在静力分析过程中,重点分析了外加正电场下,PZT 95/5受力问题,而对于直流和脉冲电场失效机理,从静力学看两者没有区别.在实际检验过程中,采用直流检验后合格的PZT 95/5陶瓷,在外加脉冲电场下部分PZT 95/5陶瓷仍然发生断裂,为解释这种现象,需要从动力学角度进行分析.在动

力学分析中,引入振动与冲击的概念.为简化问题,忽略PZT 95/5陶瓷的电场转换成应力的弛豫时间,同时只考虑极化方向的受力,在直流和脉冲电场作用下受力表达式为

$$\sigma_{DC} = \sigma_3, \quad -\infty < t < \infty, \quad (8)$$

$$\sigma_{PR} = \begin{cases} \sigma_3, & |t| \leq T/2, \\ 0, & |t| > T/2, \end{cases} \quad (9)$$

$$\sigma_{PS} = \begin{cases} \sigma_3 \sin \frac{\pi}{T} t, & t \in [0, T], \\ 0, & t \notin [0, T], \end{cases} \quad (10)$$

式中 $\sigma_{DC}$ 为直流受力, $\sigma_{PR}$ 为脉冲方波受力, $\sigma_{PS}$ 为半正弦波受力.采用傅里叶变换,将上述受力从时域转换成频域,其傅里叶变换表达式为<sup>[10]</sup>

$$X(f) = \int_{-\infty}^{\infty} \sigma(t) e^{-j2\pi ft} dt, \quad (11)$$

式中 $f$ 为频率.变换后的直流和脉冲的力谱表达式为<sup>[9]</sup>

$$X_{DC}(f) = 2\pi\sigma_3\delta(f), \quad (12)$$

$$X_{PR}(f) = \sigma_3 \frac{\sin(\pi T f)}{\pi f}, \quad (13)$$

$$X_{PS}(f) = \frac{2\sigma_3 T \cos(\pi f T)}{\pi(1 - 4T^2 f^2)}, \quad (14)$$

式中 $X_{DC}(f)$ 为直流力谱, $X_{PR}(f)$ 为脉冲方波力谱, $X_{PS}(f)$ 为半正弦波力谱.图4为直流力谱示意图,其只在频率为零时,力谱不为零,也就是说,在直流作用下,其为纯粹静力过程,不用考虑振动效应.而从图4脉冲电场的力谱看,其不仅在频率为零时不为零,而且在其他频率也不为零,在这种情况下,当PZT 95/5陶瓷样品的振动固有频率与上述力谱某个频率重合时,这部分频率的振动将得到放大(共振效应),可能会造成PZT 95/5陶瓷的力学失效.从图4还可以看出,冲击能量主要集中在低频段,而在高频段能量逐步衰减;在同脉宽 $T$ 条件下,半正弦波的衰减比脉冲方波要快.对于不同的脉宽 $T$ ,无论是方波还是半正弦波, $T$ 越小,其能量越向高频分

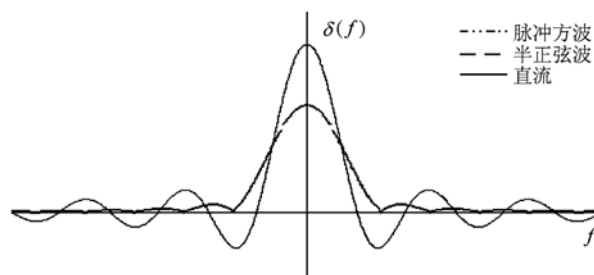


图4 脉冲方波、半正弦以及直流力谱

散;而  $T$  越大,能量越向低频集中;当  $T$  趋向无穷时,脉冲变成直流. 考虑到 PZT 95/5 样品振动固有频率为高频,所以大部分样品不会因为共振效应发生失效. 而当 PZT 95/5 样品内部含有裂纹缺陷时,其固有频率从高频向低频移动,而外加电场的脉宽很短时,就可能发生共振现象,即使静力  $\sigma_3$  较低,也可能因为共振而发生应力失效. 考虑动力因素,同脉宽  $T$  情况下,脉冲方波比半正弦波电场恶劣;而不同脉宽  $T$  情况下,脉宽  $T$  越小越恶劣,直流状况最不恶劣,这解释了直流检验通过的 PZT 95/5 陶瓷在脉冲电场下发生断裂的根本原因.

### 3. 结 论

PZT 95/5 陶瓷在正向直流、脉冲电场作用下有不同的失效机理. 对于直流电场作用下,失效以热-电耦合失效机理为主,其击穿处的熔融区为热-电耦合失效的证据. 而对于脉冲电场,脉宽越短,考虑其力谱的频率分布以及相关的共振效应,失效以力-电耦合失效为主;随着脉宽的增加,其失效机理逐步从力-电耦合转变成直流热失效模式.

- [1] Zhang F P, Du J M, Liu Y S, He H L, 2007 *J. Am. Ceram. Soc.* **90** 2639
- [2] Setchell R E, 2007 *J. Appl. Phys.* 053525
- [3] Du J M, Zhang Y, Zhang F P 2006 *Acta. Phys. Sin.* **55** 2584 (in Chinese) [杜金梅、张毅、张福平 2006 物理学报 **55** 2584]
- [4] McHenry K D, Koepke B G 1983 *Fracture Mechanics of Ceramics* edited by Bradt R C, Hasselman D P, Lange F F (Plenum, New York, 1983), Vol. 5, pp. 337—352
- [5] Wang H, Singh R 1997 *J. Appl. Phys.* **81** 7471
- [6] Cao H, Evans A G 1994 *J. Am. Ceram. Soc.* **77** 1783
- [7] White G S, Raynes A S, Vaudin M D, Freiman S W 1994 *J. Am. Ceram. Soc.* **77** 2603
- [8] Zhang T Y, Hack J E 1992 *J. Appl. Phys.* **71** 5865
- [9] Fang J X, Ying Z W 2000 *Dielectric Physics* (Beijing: Science Press) p134 (in Chinese) [方俊鑫、殷之文 2000 电介质物理学(科学出版社)第 134 页]
- [10] Cao S Q, Zhang W D, Xiao L X 2001 *Vibration Structure Modal Analysis-Theory, Experiment and Application* (Tianjin: Tianjin University Press) pp73—84 (in Chinese) [曹树谦、张文德、萧龙翔 2001 振动结构模态分析——理论、实验与应用(天津大学出版社)第 73—84 页]

## Failure mechanism of PZT 95/5 under direct current and pulsed electric field\*

Zhang Fu-Ping Du Jin-Mei Liu Yu-Sheng Liu Yi Liu Gao-Min He Hong-Liang<sup>†</sup>

(State Key Laboratory for Shock Wave and Detonation Physics Research, Institute of Fluid Physics, Mianyang 621900, China)

(Received 6 June 2010; revised manuscript received 8 September 2010)

### Abstract

The failure mechanism of PZT 95/5 under direct current and pulsed electric field is studied by experiment and theoretical analysis in this paper. The electrothermal coupled failure is the key mode when the PZT 95/5 is subjected to direct current. But when the pulsed electric field is applied to the PZT 95/5, the resonance effect and the relation between energy and frequency being considered, the vibrant energy shifts to high frequency and the possibility of electromechanical-coupled failure is increased with decreasing pulse duration. When the pulse duration is increased, the failure behavior transfers gradually from mechanical coupled with electric failure to direct current failure mode.

**Keywords:** PZT 95/5, failure mechanism, direct current, pulsed electric field

**PACS:** 77.84.Cg, 77.22.Jp

---

\* Project supported by the Science and Technology Foundation of State Key Laboratory of Shock Wave and Detonation Physics (Grant No. 2010A0201005) and the Science Foundation of China Academy of Engineering Physics, China (Grant No. 9140C67020309004).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: Honglianghe@263.com