

УДК 539 : 537.226.4

© 1992

РАЗРУШЕНИЕ СЕГНЕТОКЕРАМИКИ В ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ И МЕХАНИЧЕСКОМ ПОЛЯХ

Л. В. Жога, В. В. Шпейзман

Исследованы различные аспекты разрушения сегнетокерамики в электрическом и механическом полях. Показано подобие распределений электрической и механической прочности. Установлено, что слабые электрические поля слегка упрочняют сегнетокерамику, а большие разупрочняют. Аналогичный эффект обнаружен по отношению к влиянию механической нагрузки на электрическую прочность (напряжение пробоя). Результаты объясняются двойственной ролью локальных деформационных процессов в разрушении: релаксационной — при слабых воздействиях и способствующей разрушению — при больших нагрузках. Высказано предположение о том, что локальные очаги разрушения в электрическом и механическом полях одни и те же и определяются структурой материала. Изучена также кинетика разрушения в электрическом и механическом полях и показано внешнее сходство проявлений кинетики разрушения в обоих полях.

Сегнетоэлектрические материалы в процессе их эксплуатации подвергаются воздействию электрических и механических нагрузок. Характеристиками разрушения этих материалов в электрическом поле являются напряжение пробоя, которое изучалось, например, в [1-3], а в механическом — прочность [4, 5]. Вопросы электрической и механической прочностей обычно рассматриваются вне связи друг с другом в предположении независимости электрического пробоя и механического разрушения. Однако иногда предполагается связь внутренних напряжений с электрической прочностью керамик. Так, в [2] рассматривается влияние внутренних напряжений, возникающих при горячем прессовании керамики, на остаточную поляризацию, от величины которой в свою очередь зависит напряжение пробоя.

В [6] было показано, что механическая нагрузка, равная примерно 75% от разрушающей нагрузки, уменьшает напряжение пробоя сегнетокерамики ЦТС-19 более чем вдвое, и высказано предположение о связи процессов разрушения в электрическом и механическом полях. В настоящей работе эта связь исследовалась более подробно, изучены различные ее аспекты, в том числе вопросы статистики и кинетики разрушения, а также влияние одного типа воздействия на прочность в поле другой природы.

1. Методика эксперимента

Опыты проводились на различных сегнетокерамиках на основе титанатов и цирконатов свинца, бария и кальция (ЦТС-19, ЦТС-22, ЦТБС-3, ТБК-3). Измерения прочности проводили при комнатной температуре методом осесимметричного изгиба на дисках диаметром $2c = 20$ и толщиной $h = 1$ мм. Диаметр опоры $2b$ и диаметр нагружающего пуансона $2a$ соответственно 13 и 7 мм. Напряжения рассчитывали по формуле

$$\sigma = \frac{3}{2} \frac{1 + \nu}{\pi h^2} \left(\ln \frac{b}{a} + \frac{1 + \nu}{1 - \nu} \frac{b^2 - a^2}{2c^2} \right) P \quad (1)$$

(P — нагрузка, ν — коэффициент Пуассона), которая выведена в [7] для случая изгиба круглых пластин с недеформируемой нейтральной осью (плоскостью).

Для измерения электрической и механической прочности в электрическом поле в каждой серии экспериментов использовались образцы той же партии и размера, на которые наносились серебряные электроды. Одну поверхность диска электрод покрывал полностью, другую — частично. Диаметр второго электрода составлял 7 мм, что примерно соответствовало размеру нагруженной высокими напряжениями области образцов при разрушении их осесимметричным изгибом. Образец помещался в этилсилексановую жидкость, и на его электроды подавалось электрическое напряжение с постоянной скоростью. В опытах с измерением напряжения пробы эта скорость была $62 \text{ В} \cdot \text{с}^{-1}$, при исследовании кинетики пробы — $10^3 \text{ В} \cdot \text{с}^{-1}$. За величину электрической прочности принимали напряженность электрического поля $E = U/h$, где h — толщина образца.

2. Результаты опытов и их обсуждение

На рис. 1 сравниваются распределения электрической и механической прочностей неполяризованных образцов. Сравнение проводится на основе концепции наислабшего звена (концепции Вейбулла), согласно которой функция распределения $F(X)$ имеет следующий вид [8]:

$$F(X) = 1 - \exp [-(X/X_0)^{2\beta}], \quad (2)$$

где X — текущее значение прочности (механической или электрической), 2β и X_0 — константы распределения.

Результаты испытаний представлены в координатах: ордината $y = \ln [-\ln \times \times (1 - F(X))]$, где X — это либо σ , либо E ; абсцисса $x = \ln \sigma$ или $\ln E$. Как известно, если справедлива концепция наислабшего звена, то в этих координатах распределение есть прямая [8]. Поскольку электрическая и механическая прочностии имеют разную размерность, то сравнивать их распределения, очевидно, можно лишь в том случае, если они обладают какой-либо особенностью. Как видно из рис. 1, распределения имеют излом. Обычно это характеризует материалы, обладающие двумя типами дефектов, определяющими прочность [8]. Именно совпадение изломов на распределениях по E и по σ и примерно одинаковое соотношение наклонов прямых до и после излома свидетельствуют о том, что, во-первых, между электрической и механической прочностями существует связь и, во-вторых, дефекты, которые определяют пробой сегнетоэлектрика, и те, что ответственны за разрушение от механической нагрузки, одни и те же. Возможно, ими являются неровности поверхности диска, которые могут быть концентраторами при механическом нагружении, создавать локальные перенапряжения и усиливать электрическое поле у выступов электрода.

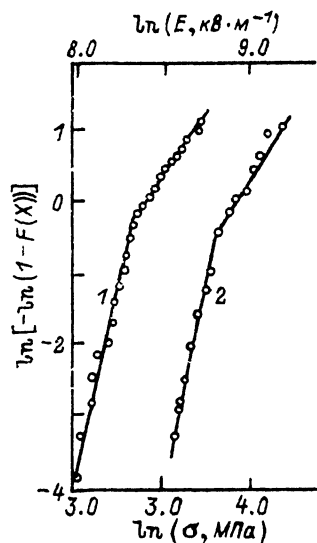


Рис. 1. Распределение механической (1) и электрической (2) прочностей сегнетокерамики ЦТС-22 в координатах Вейбулла.

Для 1 отложены напряжения σ , для 2 — напряженность E .

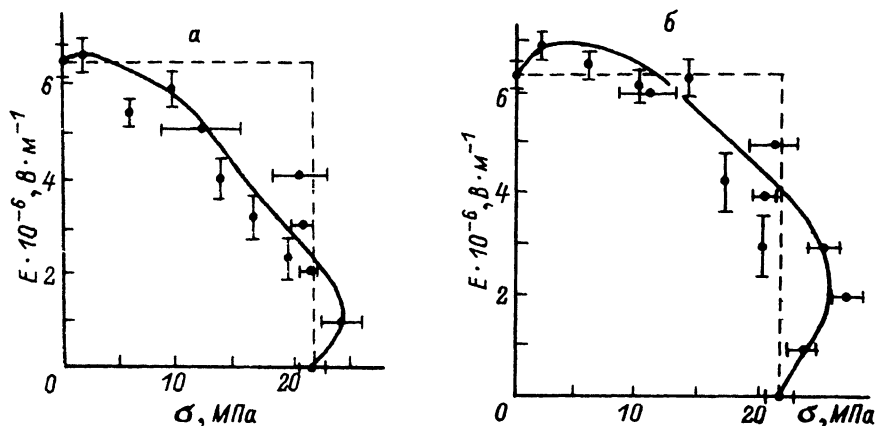


Рис. 2. Механическое разрушение сегнетокерамики ЦТС-19 в электрическом поле (точки) и электрический пробой нагруженных образцов. $E \uparrow \uparrow P$ (а), $E \uparrow \downarrow P$ (б).

Описанные опыты являются косвенным свидетельством связи электрической и механической прочностей. Мы попытались прямыми опытами проверить, существует ли эта связь. Были поставлены две серии опытов. В первой серии определялась электрическая прочность сегнетокерамики, нагруженной механически до разного уровня напряжений. Во второй серии образцы, находящиеся в электрическом поле разной напряженности, доводились до механического разрушения, т. е. определялась прочность в электрическом поле.

На рис. 2, а, б представлены результаты опытов в координатах E — σ , причем каждая точка есть среднее значение 15—20 измерений. Усреднение производилось по характеристике, вызвавшей разрушения. На каждом рисунке совмещены результаты измерения электрической прочности поляризованных образцов под нагрузкой (точки с вертикально расположенными «усами» среднеквадратичной ошибки) и механической прочности тех же образцов в электрическом поле (точки с горизонтальными «усами»). Различия между условиями опытов, результаты которых представлены на рис. 2, — во взаимном расположении векторов напряженности E и поляризации образца P : а — они однонаправлены, $E \uparrow \uparrow P$; б — их направления противоположны, $E \uparrow \downarrow P$. Основной результат, который следует из рис. 2, а, б, — это существование взаимного влияния электрического и механического воздействий. В противном случае, если бы этого влияния не было, данные по разрушению (пробоем и механическому разрушению) в координатах E — σ образовывали бы ступеньку, как это показано на рис. 2, а, б штриховыми линиями, причем механическому разрушению отвечала бы ее вертикальная часть, а электрическому пробоем — горизонтальная.

Внимательный анализ данных (рис. 2, а, б) позволяет заметить сложный характер воздействия одного из полей (электрического или механического) на другое. Оказывается, электрическое поле малой величины повышает механическую прочность, и только начиная с некоторого значения E , близкого к половине напряженности пробоя в отсутствие механических напряжений, прочность становится меньше исходной величины. То же можно сказать о влиянии силового поля на напряжение пробоя. Влияние направления предварительной поляризации на напряжение пробоя в отсутствие механического воздействия практически незаметно, что отмечалось также в [2] для керамик, приготовленных по стандартной керамической технологии. Однако в средней части диаграммы E — σ (рис. 2, а, б) можно видеть, что точки, соответствующие случаю $E \uparrow \downarrow P$, расположены дальше от начала координат, чем в случае $E \uparrow \uparrow P$.

Если, как это уже отмечалось выше, полагать, что механическое разрушение и пробой развиваются в одних и тех же местах, то их связь может быть объяснена

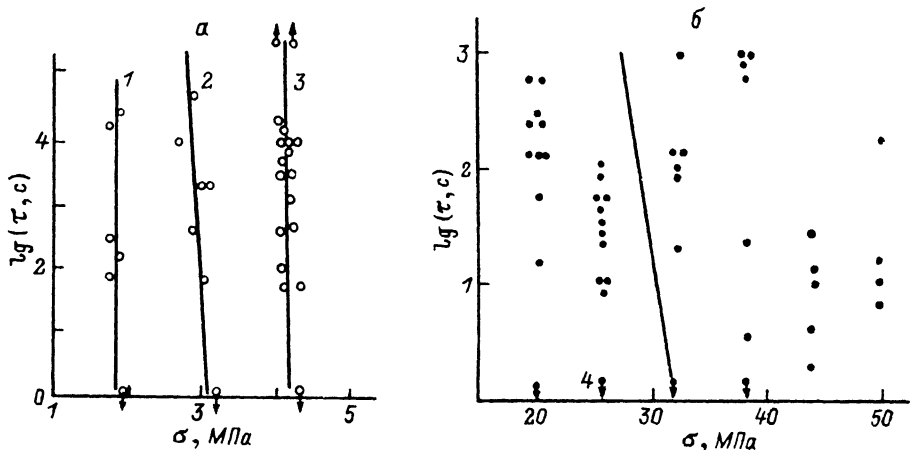


Рис. 3. Долговечность керамик ТБК (1, 2) и ЦТБС-3 (3) при $\sigma = \text{const}$ (а) и ЦТС-22 при ступенчатом нагружении (б). $T = 120$ (1), 20 °C (2, 3).

Прямая на рис. 3, б — расчет для средних значений $\lg \bar{\tau}$.

изменением структуры очагов разрушения и пробоя в результате локальной неупругой деформации. Как следует из релаксационной модели хрупкого разрушения [^{9, 10}], любой процесс локальной пластической деформации, в частности движение доменных стенок, при малых напряжениях может приводить к релаксации структурных перенапряжений и их выравниванию, а при больших напряжениях — к их усилению и образованию микротрещин. Следовательно, разная роль локальной деформации может проявиться и в различном влиянии одного из полей (электрического или механического) на разрушение в другом. Переориентация доменов также может приводить к локальной деформации и обуславливать разницу в по-разному предварительно поляризованных образцов.

Остановимся теперь на кинетических эффектах в разрушении сегнетокерамики в электрическом и механическом полях. На рис. 3, а, б приведены результаты измерения времени до разрушения различных керамик при постоянном напряжении изгиба. Для керамик ТБК (при температурах 20 и 120 °C) и ЦТБС, для которых распределение прочности было довольно узкое, удается получить зависимости $\lg \tau(\sigma)$, близкие к вертикали, подобные тем, что описаны в [^{9, 10}] для цинка, полимеров при низких температурах, щелочно-галоидных кристаллов. Так же как и для перечисленных материалов, измеряемые значения долговечности можно получить в узком интервале напряжений. В том же интервале наблюдается разрушение при нагружении и отсутствие разрушения за доступное (выбранное) время наблюдения (рис. 3, а). Однако для некоторых керамик разброс прочности был велик и результаты исследования их долговечности напоминали результаты, полученные на кремнии низкой прочности [^{10, 11}], а именно вероятность разрушения при постоянной нагрузке была крайне мала. Для кремния эта вероятность могла быть повышена использованием образцов высокой прочности, прошедших химическую полировку поверхности. Для сегнетозлектрических керамик, естественно, этот метод не привел бы к положительному результату. Поэтому мы воспользовались идеей, высказанной еще Джонсоном и Гиббсом [¹²]. Образцы подвергались ступенчатому нагружению с выдержкой на каждой ступени по 15 мин. Опыты проводились в воздушной среде и в 20%-ном растворе NaCl. В последнем случае предполагалось возможное влияние на разрушение электрического взаимодействия поверхности электродов или керамики, содержащей избыточный заряд, и электролита. Однако существенного различия прочности и времени до разрушения на воздухе и в щелочной

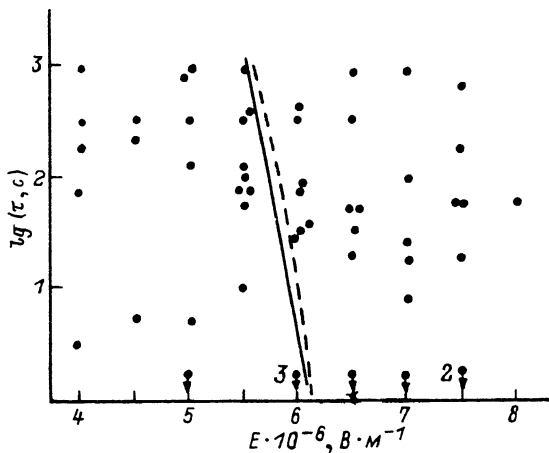


Рис. 4. Электрическая долговечность (время до пробоя при заданной напряженности поля) для керамики (ЦТС-19 при ступенчатом возрастании напряженности электрического поля.

Сплошная и штриховая линии — расчетные зависимости для средних значений $\lg \tau$ (E). Первая — в предположении линейной зависимости $\lg \tau$ (E), вторая — квадратичной.

среде не было обнаружено. Вопрос влияния среды на разрушение сегнетоэлектриков является предметом отдельного исследования. Здесь же в качестве примера проявления кинетики разрушения приведены результаты испытания керамики в растворе NaCl при ступенчатом нагружении (рис. 3, б). Под долговечностью понималось время до разрушения, отсчитываемое от последней догрузки. Случаи разрушения при подгрузке обозначены точками со стрелками вниз. Аналогичный прием был использован нами и при исследовании временных эффектов при разрушении (пробое) в электрическом поле. При этом малыми степенями повышалось электрическое напряжение. За долговечность принималось время до пробоя на последней ступени (рис. 4).

Сравнение рис. 3, б и 4 показывает, что проявление временных эффектов в разрушении в электрическом и механическом полях качественно одинаково, что также подтверждает гипотезу о влиянии на эти процессы одних и тех же дефектов структуры. Количественное сравнение данных по разрушению в электрическом и механическом полях затруднительно. Конечно, можно было бы воспользоваться результатами работы [13] и произвести статическую обработку данных, изображенных на рис. 3, б и 4, т. е. построить зависимость средних значений логарифма долговечности $\lg \tau$ от напряжений σ или напряженности электрического поля E . Однако при этом необходимо, чтобы вид этой зависимости был известен. Для механического разрушения в [10, 11] использовалась линейная аппроксимация, и для ряда хрупких материалов на ее основе были получены величины активационных характеристик разрушения и разработаны приемы его прогнозирования. Для разрушения в электрическом поле в [3] применялись зависимости вида $\tau \sim \exp(\beta'/E)$ и $\tau \sim \exp(-\alpha E^{1/2})$, в [14] для разрушающей напряженности светового поля $\tau \sim \exp(\gamma E)$. Поскольку данных по кинетике электрического разрушения известно немного, то делать какие-либо заключения об универсальности зависимости τ (E) и, как следствие этого выбора, о связи или ее отсутствии для характеристик кинетики разрушения в электрическом и механическом полях нам в настоящее время не представляется возможным. Заметим лишь, что использование линейных зависимостей $\lg \tau$ (σ) и $\lg \tau$ (E) приводит к различным значениям предэкспоненты (их можно сравнить, поскольку они имеют одинаковую размерность). Так, для механического разрушения она в этом случае 10^{21} с, а электрического — 10^{36} с. Однако если предположить

квадратичную зависимость $\lg \tau(E)$, то значение последней предэкспоненты снизится и окажется $\sim 10^{20}$ с. Обоснование же квадратичной зависимости можно усмотреть в том, что в показателе экспоненты стоит некоторая энергия, одной из составляющих которой может быть член, связанный с энергией электрона при его движении в электрическом поле, пропорциональной E^2 . Имеющихся данных, как нам кажется, недостаточно, чтобы судить о механизме протекающего во времени разрушения в электрическом и механическом полях. Результаты, несомненно, указывают на кинетический характер разрушения. Возможно, на вопрос о связи процессов разрушения в электрическом и механическом полях смогут ответить опыты по кинетике разрушения при одновременном их действии.

Итак, показано, что кривые распределения электрической и механической прочности описываются распределением Вейбулла с двумя наборами параметров. Одинаковое расположение изломов на кривых распределения и близкое по величине соотношение их наклонов до и после излома свидетельствуют о том, что разрушения в электрическом и механическом полях определяются одними и теми же дефектами.

Установлена прямыми опытами связь разрушения в электрическом и механическом полях. Показано, что малые поля одной природы повышают прочность в другом поле, а большие поля снижают. При этом положение точки в координатах $E-\sigma$ практически не зависит от очередности приложения полей.

Продемонстрирован кинетический характер разрушения сегнетокерамики в электрическом и механическом полях. Кинетические свойства разрушения керамики качественно подобны аналогичным свойствам кинетики механического разрушения других хрупких тел (металлов, полимеров, полупроводников и др.).

Список литературы

- [1] Поляризация пьезокерамики. Сборник / Под ред. Е. Г. Фесенко. Ростов-на-Дону, 1968. 47 с.
- [2] Федоров А. Д., Сервули В. А. // Сб. «Физика диэлектриков и полупроводников». Волгоград, 1981. С. 111—117.
- [3] Дакня М. С., Закревский В. А., Слуцкер А. И. // ФТТ. 1984. Т. 26. № 9. С. 2716—2721; 1986. Т. 28. № 9. С. 2700—2707.
- [4] Крамаров С. О. // Сб. «Пьезоэффект, поляризация и доменная структура поликристаллических сегнетоэлектриков». Л., 1981. 40 с.
- [5] Зацаринный В. П. Прочность сегнетоэлектриков. Ростов-на-Дону, 1979. 78 с.
- [6] Жога Л. В., Дорогин В. И., Шпейзман В. В. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 11. С. 3485—3486.
- [7] Витман Ф. Ф., Уфлянд Я. С., Иоффе Б. С. // Прикл. механика. 1970. Т. 6. № 5. С. 122—125.
- [8] Weibull W. A Statistical Theory of Strength of Materials. Ing. Vetenskamps akad. Handl, 1939. N 151. 58 p.
- [9] Степанов В. А., Шпейзман В. В., Жога Л. В. // ФММ. 1976. Т. 42. № 5. С. 1068—1074.
- [10] Степанов В. А., Песчанская Н. Н., Шпейзман В. В. Прочность и релаксационные явления в твердых телах. Л., 1984. 246 с.
- [11] Жога Л. В., Козачук А. И., Степанов В. А., Титовец Ю. Ф., Шпейзман В. В. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 11. С. 3310—3316.
- [12] Джонсон О., Гиббс П. // Разрушения твердых тел. М., 1967. С. 122—145.
- [13] Шпейзман В. В. // ФТТ. 1992. Т. 34. № 7. С. 2261—2271.
- [14] Журков С. Н., Ерньоко С. Б., Чмель А. Е. // ФТТ. 1982. Т. 24. № 3. С. 733—739.