

冲击波加载铁电体的电响应研究

林其文

(1983年6月28日收到)

本文对垂直模式冲击波压缩铁电陶瓷电响应的理论有所改进。我们不仅考虑铁电介质的电介弛豫和电导率弛豫，而且还计及冲击波阵面在样品中传播的“时序”效应的影响。外电路由串联电阻、电感和并联电容组成。计算结果表明理论与实验符合很好。

一、引言

极化铁电陶瓷(F C)在冲击波(SW)加载下将发生去极化相变，其剩余极化消失，同时束缚的面电荷被释放出来。只要连结适当的外电路负载，在几微秒内可得到峰值功率为兆瓦级的脉冲电源。

在“轴式”装置中，冲击波在铁电样品中的传播方向平行于它的剩余极化矢量。这时冲击波阵面两边的电场不相同，而且波后区的电场往往超过铁电介质的击穿阈值。在“垂直模式”装置中，冲击波传播方向垂直于剩余极化矢量。这时，如果铁电组件同外电负载适当匹配，电场幅度不会过大，而且它同铁电样品的几何尺寸、材料性质以及外电路阻抗有关。

Lysne^[1]应用电介弛豫来解释含电感的实验的阻尼振荡现象，取得了比较满意的结果。本文在Lysne的研究基础上提出了一些补充意见：(1)为了解释电场较高时的实验值，引进了与电场相关的铁电介质电导率；(2)为了较好地描述极化和电导率的弛豫，引入冲击波阵面在铁电体陶瓷中传播的“时序”效应。

二、理论

1. 铁电陶瓷的电位移与电导率

图1给出了一种典型的垂直模式冲击波去极化的矩形锆钛酸铅(PZT)组件并具有一般的电负载的示意图。组件是由数块PZT矩形片并联(对于电流型装置)或串联(对于电压型装置)组成。由炸药爆轰(或弹丸碰撞)在组件左表面 $z=0$ 处产生平面冲击波。作为一个合理的近似，击波阵面把组件分成包含已冲击和未冲击材料的两个区域。铁电陶瓷的一些参数在阵面上不连续，我们用下标 i 表示分区，并且 $i=1, 2$ 分别表示该参数在未冲击区或已冲击区的取值。在垂直式中电场过阵面连续，即 $E_1 = E_2 = E$ 。

Lysne引入的电介质的一般状态方程为^[1]

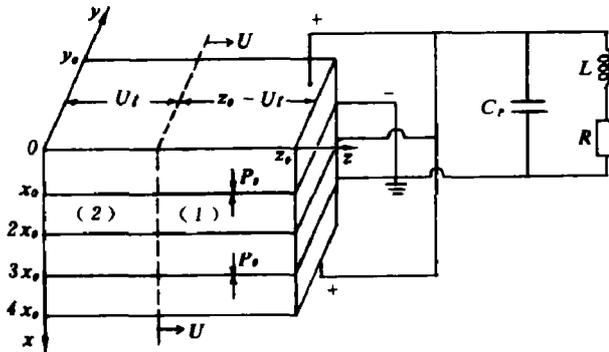


图 1 垂直去极化矩形 P Z T 组件 (电流型) 装置。组件由四片陶瓷块组成, 每块的尺寸和方向以 x_0, y_0, z_0 表示。速度为 U 的平面冲击波沿 z 方向传播, 虚线表示 t 时刻波阵面的位置。极化方向由 P_0 的箭头表示。

$$D_i(t) = \varepsilon_{\infty i} E(t) + \frac{\varepsilon_{s i} - \varepsilon_{\infty i}}{\tau_i} \int_0^t \exp\left(-\frac{t-\hat{t}}{\tau_i}\right) E(\hat{t}) d\hat{t} + P_i \quad (1)$$

方程 (1) 是弛豫电介质的包含指数弛豫函数的德拜近似的普通公式⁽²⁾。这里, $\varepsilon_{\infty i}$ 和 $\varepsilon_{s i}$ 表示瞬时和弛豫介电常数, τ_i 是弛豫时间。 P_i 代表剩余极化并可写为

$$P_i = P_0 (\text{波前}); \quad P_2 \approx 0 (\text{波后}) \quad (2)$$

波后, 由于铁电体相变到非铁电态, P_2 几乎为零。本文下面要讨论。

实际上, 冲击波阵面总是逐渐地扫过被加载的样品的, 所以已受冲击的区域的不同 z 平面处相变时间不一样。当考虑到冲击波阵面在样品中传播的“时序”效应的影响时, 在受压区 2 的电介弛豫的一般公式应修改为

$$D_2(E, z, t) = \varepsilon_{\infty 2} E(t) + \frac{\varepsilon_{s 2} - \varepsilon_{\infty 2}}{\tau_2} \int_{z/U}^t \exp\left(-\frac{t-\hat{t}}{\tau_2}\right) E(\hat{t}) d\hat{t} + \frac{\varepsilon_{s 1} - \varepsilon_{\infty 1}}{\tau_1} \int_0^{z/U} \exp\left(-\frac{t-\hat{t}}{\tau_1}\right) E(\hat{t}) d\hat{t} + P_2 \quad (3)$$

式中 U 是冲击波速度。方程 (3) 是冲击加载铁电体的“时序”介电弛豫公式。显然这里已增加了一项“时序”效应项并且方程 (1) 中 $i = 2$ 的电位移仅是方程 (3) 中 $Z = 0$ 的特殊情况。我们对 $D_2(E, z, t)$ 在区域 2 内取平均值, 写为

$$D_2(E, t) = \begin{cases} \frac{1}{U t} \int_0^{U t} D_2(E, z, t) dz & t < t_0 \\ \frac{1}{z_0} \int_0^{z_0} D_2(E, z, t) dz & t > t_0 \end{cases} \quad (4)$$

其中 $t_0 = z_0/U$ 是冲击波通过整个样品的时间。将方程 (3) 代入方程 (4) 且令

$$a_i = \frac{\varepsilon_{s i} - \varepsilon_{\infty i}}{\tau_i}$$

$$\varphi_i(t, t') = a_i \int_0^{t'} \exp\left(-\frac{t-\hat{t}}{\tau_i}\right) E(\hat{t}) d\hat{t}$$

$$\psi_i(t, t^*) = \int_0^{t^*} \varphi_i(t, t') dt' \quad (5)$$

则容易得到电位移 $D_2(E, t)$ 的一个简化形式。然后可以把 $D_2(E, t)$ 和方程 (1) 中的 $D_1(E, t)$ 合并表为一个统一公式

$$D_i(E, t) = \epsilon_{oi} E(t) + \varphi_i(t) + S_d(t) \delta_{i2} + P_i$$

其中

$$S_d(t) = \begin{cases} \frac{1}{t} [\psi_1(t) - \psi_2(t)] & t < t_0 \\ \frac{1}{t_0} [\psi_1(t, t_0) - \psi_2(t, t_0)] & t > t_0 \end{cases}$$

$$\varphi_i(t) = \varphi_i(t, t)$$

$$\psi_i(t) = \psi_i(t, t)$$

$$\delta_{i2} = \begin{cases} 0 & i = 1 \\ 1 & i = 2 \end{cases} \quad (6)$$

可见, 鉴于冲击波在组件中传播的“时序”效应的影响, 电介弛豫方程 (6) 中的 $D_i(E, t)$ 增加了一项 $S_d(t)$ 。

大量冲击实验表明, 铁电体的电导率同冲击压力和电场的依赖关系较为敏感。在通常的冲击压力范围内 ($2 \sim 3 \text{ GPa}$), 电导率 σ_i 应包括一个常数部分 σ_{oi} 和一个依赖于电场的变量部分 $\sigma_i^b(E)$ 。假定 σ_i 具有如下的经验形式则理论与实验数据基本拟合

$$\sigma_i = \sigma_{oi} + \sigma_i^b(E)$$

及
$$\sigma_i^b(E) = \sigma_{oi}^b \exp\left(-\frac{E^2 - E_{oi}^2}{E_{oi}^2}\right) \quad (7)$$

其中 σ_{oi}^b , E_{oi} 及 E_{oi} 都是常数。当电场 E 趋于击穿场强 E_{oi} 之前, $\sigma_i^b(E)$ 通常很小, 所以我们叫 $\sigma_i^b(E)$ 为击穿电导率。实际上, 电导率 $\sigma_i^b(E)$ 的变化比电场 E 的变化要慢, 即是说, $\sigma_i^b(E)$ 亦有弛豫效应。于是, 考虑冲击波在铁电样品中传播的“时序”效应影响的电导率弛豫的统一公式可以给出为:

$$\sigma_i(E, t) = \sigma_i^b(E) + W_i(t) + S_o(t) \delta_{i2} + \sigma_{oi} \quad (8)$$

并且

$$W_i(t, t') = \beta_i \int_0^{t'} \exp\left(-\frac{t - \hat{t}}{\tau_{oi}}\right) \sigma_i^b(\hat{E}) d\hat{t}$$

$$X_i(t, t') = \int_0^{t'} W_i(t, t') dt'$$

$$W_i(t) = W_i(t, t),$$

$$X_i(t) = X_i(t, t)$$

$$\beta_i = \frac{\gamma_{ii} - 1}{\tau_{oi}}$$

$$S_o(t) = \begin{cases} \frac{1}{t} [X_1(t) - X_2(t)] & t \leq t_0 \\ \frac{1}{t_0} [X_1(t, t_0) - X_2(t, t_0)] & t > t_0 \end{cases}$$

其中 γ_{ii} 和 τ_{oi} 分别是电导率的弛豫常数和弛豫时间。显然公式(8)的 $\sigma_i(E, t)$ 与公式(7) 比较增加了两项“时序”弛豫项。

2. 电响应方程

如图 1 所示, 在波阵面前后的组件电极面积同时间有关。在时刻 t 它们分别是

$$\begin{cases} A_1 = \begin{cases} A_0(1 - t/t_0) & t \leq t_0 \\ 0 & t > t_0 \end{cases} \\ A_2 = A_0 - A_1 \end{cases} \quad (9)$$

这里 $A_0 = ny_0 z_0$ 或 $y_0 z_0$, 分别对应于 PZT 组件为 n 块陶瓷片并联或串联的情况。

为了下面讨论方便起见, 位移电流 I_d 定义为

$$I_d = \sum_{i=1}^2 \frac{d}{dt} [A_i (D_i - P_i)] \quad (10)$$

垂直模式的冲击去极化电流 I_s , 我们给出为

$$I_s = \sum_{i=1}^2 \frac{d}{dt} (A_i P_i) \quad (11)$$

I_s 实际代表冲击波压缩 PZT 组件的换能器的电流源函数。当然, 通常定义的通过组件的位移电流应为上述 I_d 与 I_s 之和。组件样品内的传导电流是

$$I_o = \sum_{i=1}^2 \sigma_i A_i E \quad (12)$$

通过外电容 C , 电路的电流为

$$I_c = X_o C_o E \quad (13)$$

其中 X_o 是该组件正负电极间的距离, 并且 $X_o = nx_o$ 或 x_o 分别对应于 n 片陶瓷块串联或并联情况。

若通过 $L-R$ 电路的电流为 I , 则据基尔霍夫定律, 关于 E 和 I 的一组方程可写为

$$\begin{cases} I + X_o C_o \dot{E} + \sum_{i=1}^2 \{ A_i \sigma_i E + \frac{d}{dt} [A_i (D_i - P_i)] \} + I_s = 0 \\ RI + LI = X_o E \end{cases} \quad (14)$$

E 和 I 的初值条件是

$$E(0) = I(0) = 0 \tag{15}$$

3. 电流源函数

现在我们讨论方程(11)给出的冲击去极化电流 I_s 的具体形式。把方程(2)的 $P_1 = P_0$ 和 $P_2 = 0$ 代入方程(11)可给出

$$I_s = \begin{cases} -I_0 & t \leq t_0 \\ 0 & t > t_0 \end{cases} \tag{16}$$

其中 $I_0 = A_0 P_0 / t_0$ 。对一个无冲击耗散的理想矩形样品, I_s 直到冲击波完全通过样品之前为 I_0 , 然后即为零。在实验中冲击波要耗散并且 I_s 在过渡时间 t_0 处是连续的降到零。因此, 我们引入 P_2 的一个经验公式

$$P_2(t) = \begin{cases} \frac{P_0}{2} \left[1 + \frac{t_s}{2} \ln \left(\frac{\text{ch}((t-t_0)/t_s)}{\text{ch}(t_0/t_s)} \right) \right], & t < t_0 \\ P_0 \left\{ 1 - \frac{t}{2t_0} \left[1 - \frac{t_s}{t} \ln \left(\frac{\text{ch}((t-t_0)/t_s)}{\text{ch}(t_0/t_s)} \right) \right] \right\}, & t > t_0 \end{cases} \tag{17}$$

其中 t_s 是 $P_2(t)$ 的弛豫时间。将方程(17)代入方程(11)可得

$$I_s = -\frac{I_0}{2} \left[1 - \text{tgh} \left(\frac{t-t_0}{t_s} \right) \right] \tag{18}$$

只要 t_s/t_0 足够小于 1, 经验公式(17)和(18)是合理的。这里 I_s 同 Lysne 应用的电流源函数 G 是相同的。我们在本文涉及到 I_s 的计算都取(18)而不取(16)式。

三、算例和讨论

电响应方程(14)用龙格—库塔法数字积分, 积分 φ_i, ψ_i, W_i 和 X_i 用梯形公式求解。PZT 95/5 材料参数列入表 1。Lysne 已经给出这些参数的大部分的合理值^[1], 例如 $\epsilon_{\infty 1}, \epsilon_{\infty 2}, \tau_1, \tau_2, \sigma_{01}$ 等。另外一些参数, 如 $\sigma_{02}, \sigma_{01}^b, E_{b1}, E_{01}, \gamma_{s1}, \tau_{01}$ 和 U 等, 通过一些实验的拟合迭代获得。本文计算了四个不同组件尺寸和电负载的模型, 见表 2。所有实验值取自参考文献[3][4]。

表1. PZT 95/5 材料参数

$\epsilon_{\infty 1}$	8×10^{-11}	F/cm	E_{b1}	5×10^4	V/cm	τ_1	0.7	μs
$\epsilon_{\infty 2}$	7×10^{-11}	"	E_{b2}	3×10^4	"	τ_2	0.4	"
ϵ_{s1}	16×10^{-11}	"	E_{01}	2×10^4	"	τ_{01}	0.7	"
ϵ_{s2}	9×10^{-11}	"	E_{02}	1.2×10^4	"	τ_{02}	0.4	"
σ_{01}	10^{-9}	$(\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$	γ_{s1}	5		t_s	0.4	"
σ_{02}	2×10^{-9}	"	γ_{s2}	5				
σ_{01}^b	5×10^{-9}	"	P_0	29.7	$\mu\text{C}/\text{cm}^2$			
σ_{02}^b	7×10^{-6}	"	U	3.9	km/s			

表2. 模型算例

模型号	x_0 cm	y_0 cm	z_0 cm	n	R Ω	L μH	C_p nF	负载类型
1 ^a	0.952	0.318	2.22	1	15000	0	0	电阻
2	1	5	1	7 ^c	2544	0	0	电阻
3	1	4	1	2 ^c	40000	0	1.85	电容
4 ^b	0.5	7	1	1	0.1	59	3.9	电感

a. PZT 95/5 材料参数取自文献[1],同时不考虑击穿电导率。

b. 一部分参数用下列值: $P_0 = 31 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, $\epsilon_{\omega 1} = 16 \times 10^{-11} \text{F}/\text{cm}$, $\epsilon_{\omega 2} = 8 \times 10^{-11} \text{F}/\text{cm}$, $\epsilon_{\omega 3} = 20 \times 10^{-11} \text{F}/\text{cm}$ 。

c. PZT 组件为串联组成。

1. 电阻负载 (电压模型)。此时 $L = C_p = 0$ 。我们首先用本文叙述的改进方法计算了模型 1 并与 Lysne 的计算进行比较, 见图 2。结果表明改进法计算的电流比 Lysne 法的更符合于实验。

图 3 是模型 2 的电压曲线。我们看到实验电压开始上升要比计算值慢些。这可能是冲击耗散, 去极化相变弛豫等因素所致。一微秒后两者符合很好。

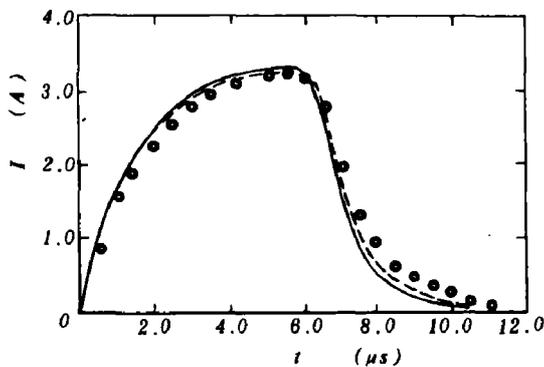


图 2 Lysne法和改进法计算的模型 1 的电流曲线比较。实线为 Lysne 法计算值, 虚线为改进法计算值, 圆圈是他引用的实验值。

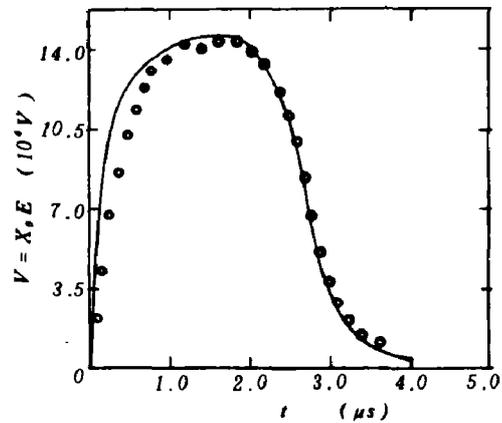
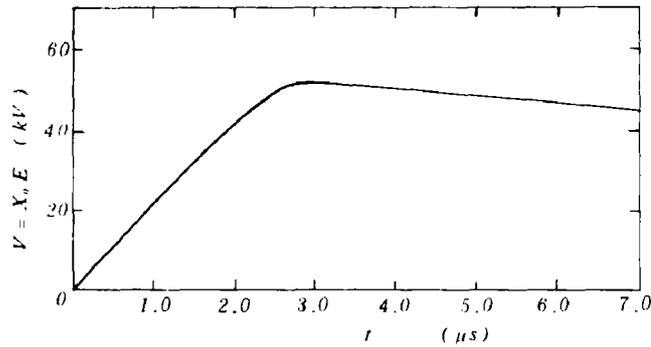


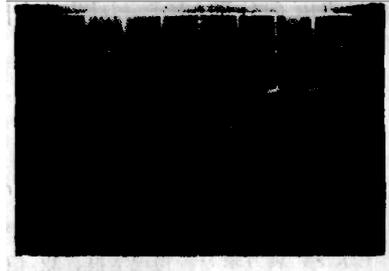
图 3 模型 2 的计算和实测电压曲线。实线为计算值, 圆圈为实测值。

2. 电容负载 (电压型)。此时 $L = 0$, 容抗 R_c 远小于电阻 R 。模型 3, $R_c = 1/\omega C_p \approx t_0/C_p \approx 1300 \Omega$, 显然 $R_c \ll R (40000 \Omega)$ 。图 4 是计算和实测模型 3 的电压曲线。对电压的上升率、下降率和峰值等两者都符合很好。

3. 电感负载 (电流型)。此时 $L \neq 0$, R 是外电路的有效电阻, C_p 是并联匹配电容, 其



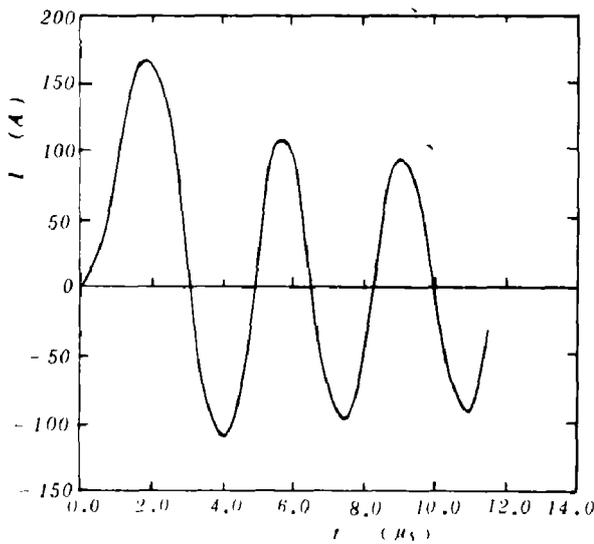
(a) 计算值



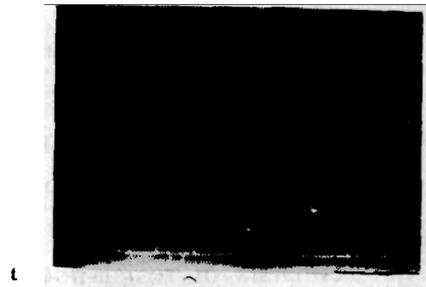
(b) 实验照片 (横轴 1 μs/格, 纵轴—20.89 kV/格)

图4 模型3的电压曲线

作用是降低电压和改善换能装置电路系统的匹配条件.图5是模型4的计算和实测电流曲线.在约11.2μs时观测电流发生了异常现象,这也许是装置系统的电路断开或样品击穿造成的



(a) 计算值



(b) 实验照片 (横轴, 2 μs/格; 纵轴, 46.7 A/格)

图5 模型4的电流曲线

由上所述可看出,实验结果同理论符合很好.因此本文引用的电介质和电导率的“时序”弛豫效应是能接受的.

我们从表2看到模型4所用的 ϵ_{∞} 、 ϵ_r 等的计算值与表1中的不一致.表1中的一部分参数用于电感负载装置的计算时,误差较大.为了较好地解决这个问题,需对所用的PZT 95/5材料的性能作进一步的考查,同时比较充分地分析各种组件和负载的实验数据,以期得到更加准确的物理模型和材料参数.尽管如此,在我们的爆电换能工作中,表1中的数据目前还是可取的.

最后, 我们认为, 非线性 $D-E$ 关系弛豫和去极化相变弛豫的效应、重新极化和电击穿等都需要更充分地研究, 因为它们同冲击波加载铁电体的电响应密切相关。

参 考 文 献

- [1] Lysne, P.C., Electrical Response of Shock-Wave-Compressed Ferroelectrics, *Proc. 6th AIRAPT Inte. High Pres. Conf.*, Boulder, (1977).
- [2] Frölich, H., *Theory of Dielectrics*, Oxford Press, Oxford (1958).
- [3] 王永令, 袁万宗等, 物理学报, 32 (6) (1983), 780.
- [4] 袁万宗等, 私人通信。

STUDY OF ELECTRICAL RESPONSE OF SHOCK-WAVE LOADED FERROELECTRICS

Lin Qiwen

Abstract

An improved theoretical model of electrical response of normal-mode-shock-wave compressed ferroelectric ceramics is introduced in this paper. We not only consider the relaxation for the dielectric and conductivity of the ferroelectric material but also take account of the action of the "time-order" effect of the shock front traveling in the specimen. The external circuit consists of resistance connected in series with inductance and capacitance connected in parallel with them. Calculations show that the experimental results are in good accord with the theory.