

切割-填充法制备粗压电陶瓷纤维 复合材料驱动器

Fabrication of Macro Piezoceramic Fiber Composite Actuators by Cutting-filling Method

温 凯, 裘进浩, 季宏丽, 朱孔军
(南京航空航天大学 机械结构力学及控制
国家重点实验室, 南京 210016)

WEN Kai, QIU Jin-hao, JI Hong-li, ZHU Kong-jun
(State Key Laboratory of Mechanics and Control of
Mechanical Structures, Nanjing University of
Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China)

摘要: 采用切割-填充法制备了一种粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器, 该驱动器由叉指电极电路板、环氧树脂黏结层和粗压电陶瓷纤维复合材料层三部分组成。理论计算了粗压电陶瓷纤维复合材料的压电性能, 并采用 TF Analyzer 2000 铁电分析仪和基于 LabVIEW 的动态应变采集系统测试了该驱动器的 P - E 回线和应变性能。结果表明: 粗压电陶瓷纤维复合材料的理论压电常数 \bar{d}_{33} 和剩余极化强度 P_r 分别为 $634\text{pC} \cdot \text{N}^{-1}$ 和 $31.4\mu\text{C} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。且在 $\pm 1,000\text{V}$ 正弦交变电压作用下, 驱动器可以产生纵向和横向应变分别为 $30\mu\epsilon$ 和 $20\mu\epsilon$, 即纵向和横向伸缩分别可达 $0.63\mu\text{m}$ 和 $0.34\mu\text{m}$ 。

关键词: 压电陶瓷驱动器; 切割-填充法; 压电陶瓷纤维; 叉指电极; 压电复合材料

doi: 10.11868/j.issn.1001-4381.2015.01.013

中图分类号: TB381 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-4381(2015)01-0072-05

Abstract: The macro piezoceramic fiber composite actuators were fabricated by cutting-filling method. The structure of this actuator was made up of three parts, including interdigitated electrode plates, epoxy resin bonding layer and macro piezoceramic fiber composite layer. The piezoelectric properties of the macro piezoceramic fiber composite were calculated by theoretical model. The P - E loop and strain properties of the actuator were tested by TF Analyzer 2000 ferroelectric analyzer and dynamic strain acquisition system based on LabVIEW. The results show that the theory piezoelectric constants \bar{d}_{33} and remanent polarization P_r of the macro piezoceramic fiber composite are $634\text{pC} \cdot \text{N}^{-1}$ and $31.4\mu\text{C} \cdot \text{cm}^{-2}$, respectively. Moreover, the actuator can also generate longitudinal strain of $30\mu\epsilon$ and transverse strain of $20\mu\epsilon$ at $\pm 1,000\text{V}$ sinusoidal alternating voltage. That means, the stretching of longitudinal and transverse directions of the actuator is $0.63\mu\text{m}$ and $0.34\mu\text{m}$, respectively.

Key words: piezoceramic actuator; cutting-filling method; piezoceramic fiber; interdigitated electrode; piezoelectric composite

压电陶瓷材料是指一种能够实现机械能和电能相互转换的功能材料^[1]。然而由于它具有脆性大、密度大、硬度高、不易变形等缺点,使得这类材料在应用上受到了很大的限制^[2]。压电陶瓷复合材料一般是指由压电陶瓷相和聚合物相复合而成的一类材料^[3,4]。由于聚合物相具有柔韧性好、密度低、易变形等优点,使得这类复合材料具有优异的综合性能,因此也被广泛地应用于制备驱动器等器件^[5-8]。

第一类驱动器采用主动的纤维复合材料(Active

Fiber Composites, AFC)由麻省理工学院制备而成^[9]。AFC是一种将横截面为圆形的压电陶瓷纤维横向排列于有机物基体之中形成的复合材料。由于陶瓷纤维为圆柱形使得驱动器中陶瓷纤维相和电极的接触面积减小,降低了驱动器的机电转换效率。针对 AFC 的缺点美国航空航天局兰利研究中心采用流延成型法首先制备出压电陶瓷薄片,然后采用切割机制备压电陶瓷纤维,最后将压电陶瓷纤维与有机物基体复合,成功制备出了粗纤维复合材料(Macro Fiber Composite,

MFC)及其驱动器^[10]。MFC 是一种将横截面为矩形的压电陶瓷纤维横向排列于有机物基体之中形成的复合材料^[10-12]。与 AFC 相比,由于 MFC 中压电陶瓷纤维为矩形,使得其在制备出的驱动器中压电陶瓷相和电极的接触面积显著增加,提高了驱动器的机电转换效率^[13-15]。

尽管美国航空航天局兰利研究中心制备出的 MFC 驱动器具备了一定的性能,但是他们所采用的制备方法仍然有许多缺点,例如,采用流延法制备的压电陶瓷薄片烧结比较困难,薄片的平整性难以确定;烧成后的压电陶瓷薄片脆性大,切割工艺复杂等。本研究介绍了一种新的粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器的制备方法即切割-填充法,该方法制备工艺简单易操作,成本较低且制备出的粗压电陶瓷纤维复合材料表面平整,有效地克服了 MFC 驱动器的制备缺点。测试了压电陶瓷相和聚合物相的电学和力学性能,理论推导了粗压电陶瓷纤维复合材料的电学和力学性能,并采用 TF Analyzer 2000 铁电分析仪和基于 LabVIEW 的动态应变采集系统测试了驱动器的 $P-E$ 曲线和应变性能。

1 实验

1.1 粗压电陶瓷纤维复合材料的制备

图 1 为粗压电陶瓷纤维复合材料的制备工艺流程图。采用切割-填充法制备粗压电陶瓷纤维复合材料,主要步骤如下:(1)采用固相反应法制备尺寸为 $25\text{mm} \times 19\text{mm} \times 2\text{mm}$ 的 PZT-5H 压电陶瓷块,如图 1(a)所示。(2)利用金刚石线切割机(STX-402)将制得的陶瓷块切成如图 1(b)所示的形状,其中陶瓷片间距为 0.3mm ,陶瓷片厚度为 0.5mm ,深度为 1mm 。(3)将步骤(2)切好的陶瓷块放入底部平整的 $60\text{mm} \times 60\text{mm} \times 25\text{mm}$ 的塑料容器中。(4)用电子秤分别称取 50g 环氧树脂 E-44、 45g 低分子 650 聚酰胺树脂固化剂、 5g 二丁酯增韧剂和 10g 丙酮。(5)将丙酮倒入低分子 650 聚酰胺树脂中用玻璃棒搅拌均匀,再将环氧树脂 E-44 和二丁酯倒入丙酮和聚酰胺树脂的混合物中共同搅拌至均匀,制备成所需的环氧树脂填充液,然后将填充液注入步骤(3)中的塑料容器之中。(6)将装有填充液的塑料容器放入真空干燥箱中,然后抽真空,使其在相对真空度为 -0.08MPa 下保压 1h ,随后继续抽真空,使其在相对真空度为 -0.09MPa 时保压 1h 。之后升温至 60°C 保温 3h ,再升温至 80°C 保温 1h ,最后当温度降至室温时取出制得压电陶瓷复合叠层,如图 1(c)所示。(7)将步骤(6)中制得的压电

陶瓷复合叠层放置于金刚石线切割机(STX-402)中切割得到厚度为 0.5mm 的粗压电陶瓷纤维复合材料层,如图 1(d)所示。

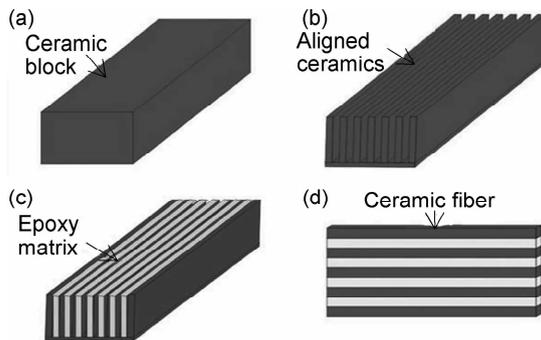


图 1 粗压电陶瓷纤维复合材料的制备工艺流程图
(a)固相反应法制备的 $25\text{mm} \times 19\text{mm} \times 2\text{mm}$ 陶块;(b)排列的陶瓷片;
(c)压电陶瓷复合材料层;(d)粗压电陶瓷纤维复合材料
Fig. 1 Fabricating process map of the macro piezoceramic fiber composite (a) $25\text{mm} \times 19\text{mm} \times 2\text{mm}$ ceramic block fabricated by solid phase reaction method; (b) aligned ceramics; (c) piezoceramic laminated composite; (d) macro piezoceramic fiber composite

1.2 粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器的封装

图 2 为封装好的粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器的示意图。其封装过程是制备性能优异的驱动器的关键步骤,具体步骤如下:(1)将环氧树脂胶均匀地涂覆在一片刻有叉指电极的聚酰亚胺薄膜(SC7059S1,深圳市同德鑫电子有限公司)上作为下电极板。(2)将之前所制备的厚度为 0.5mm 的粗压电陶瓷纤维复合材料平整地铺在下电极板上并准确调整其位置,使其与叉指电极保持垂直位置。(3)将环氧树脂胶均匀地涂覆在另外一片刻有叉指电极的聚酰亚胺薄膜上作为上电极板,并将其精确地与粗压电陶瓷纤维复合材料和下电极板黏合,使上下电极板的电极线路完全重合。(4)将初步封装好的驱动器进行真空热压处理,抽真空 5h ,温度设定为 60°C ,压力约为 5MPa ,最终得到所

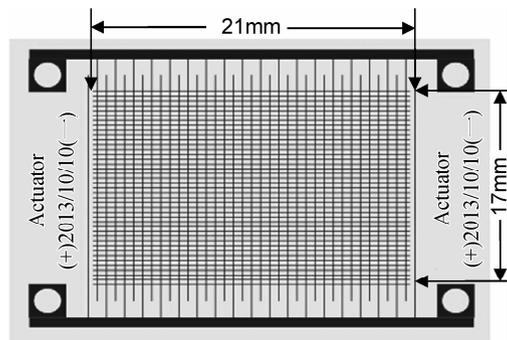


图 2 封装好的粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器
Fig. 2 The encapsulated macro piezoceramic fiber composite actuator

需的粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器,其尺寸如表1所示。

表1 粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器的尺寸

Table 1 Dimension of macro piezoceramic fiber composite actuators

Property	Dimension
Piezoelectric fiber width, $w_f/\mu\text{m}$	500
Piezoelectric fiber thickness, $t_f/\mu\text{m}$	500
Interdigitated electrode gap, center-to-center, p_e/mm	1
Interdigitated electrode finger width, $w_e/\mu\text{m}$	150
Interdigitated electrode thickness, $t_e/\mu\text{m}$	16
Epoxy resin bonding layer thickness, $t_b/\mu\text{m}$	100
Package active area width, w_{mfc}/mm	17
Package active area length, l_{mfc}/mm	21
Package maximum thickness, $t_{\text{mfc}}/\mu\text{m}$	750

1.3 粗压电陶瓷纤维复合材料的极化和性能测试

极化过程是粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器获得驱动性能不可缺少的步骤,其主要过程为:将封装好的粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器的上下电极板一端分别焊接上两根导线,作为正极和负极,然后在室温下使用万能击穿装置(2671,常州华城双凯仪器有限公司)对驱动器进行极化,极化电压为1500V/mm,时间为30min。

压电陶瓷相的压电常数 d_{33} 采用准静态压电应变仪(ZJ-3A)测量,机电耦合系数 k_{33} 、介电常数 ϵ_r 和介电损耗 $\tan\delta$ 通过阻抗分析仪(HP 4294A)测量。压电陶瓷和环氧树脂基体的弹性柔顺常数 s_{33} 采用动态热分析仪(DMA2980)测量,驱动器的 $P-E$ 曲线采用铁电分析仪(TF Analyzer 2000)测量,驱动器的纵向和横向应变性能采用基于LabVIEW的动态应变采集系统测量。

2 结果分析

2.1 PZT-5H 压电陶瓷的性能

表2列出了PZT-5H压电陶瓷的电学和力学等性能。从测试的结果可以看出,该压电陶瓷的致密性较好,压电常数较高。采用较高的压电常数的PZT-5H压电陶瓷材料使得制备出的驱动器的驱动性能更优良。

2.2 粗压电陶瓷纤维复合材料的性能

表3列出了通过计算公式推导出的粗压电陶瓷纤维复合材料的理论电学性能。由于受到实验条件的限制,本工作只对制备出的粗压电陶瓷纤维复合材料驱

表2 PZT-5H 压电陶瓷的性能

Table 2 Properties of PZT-5H piezoceramics

Property	Value
$\rho/(\text{g} \cdot \text{cm}^{-3})$	7.65
$d_{33}/(\text{pC} \cdot \text{N}^{-1})$	650
$d_{31}/(\text{pC} \cdot \text{N}^{-1})$	-182
$s_{33}/(\text{m}^2 \cdot \text{N}^{-1})$	4.82×10^{-12}
ϵ_r	4500
Q_m	65
k_{33}	0.63

表3 粗压电陶瓷纤维复合材料的理论电学性能

Table 3 Theoretical electrical properties of piezoceramic fiber composite

Property	Value
$\bar{d}_{33}/(\text{pC} \cdot \text{N}^{-1})$	634
$\bar{d}_{31}/(\text{pC} \cdot \text{N}^{-1})$	-113
$\bar{\epsilon}_r$	2813
\bar{k}_{33}	0.43

动器的电学和力学性能进行理论上的推导。由于粗压电陶瓷纤维复合材料是由粗压电陶瓷纤维和环氧树脂基体两相材料复合而成,所以其电学和力学性能可以通过压电复合材料的两相复合理论计算公式简单粗略地计算得到^[16-19]。其计算公式如下:

纵向压电常数($\text{pC} \cdot \text{N}^{-1}$):

$$\bar{d}_{33} = \frac{d_{33,f}}{\left(1 + \frac{\varphi_m}{\varphi_f} \frac{s_{33,f}^E}{s_{33,m}^E}\right)} \quad (1)$$

横向压电常数($\text{pC} \cdot \text{N}^{-1}$):

$$\bar{d}_{31} = \varphi_f d_{31,f} \quad (2)$$

介电常数:

$$\bar{\epsilon}_r = \varphi_f \epsilon_{r,f} + \varphi_m \epsilon_{r,m} \quad (3)$$

机电耦合系数:

$$\bar{k}_{33} = \frac{k_{33,f}}{\sqrt{\left(1 + \frac{\varphi_m}{\varphi_f} \frac{\epsilon_{r,m}}{\epsilon_{r,f}}\right) \left(1 + \frac{\varphi_m}{\varphi_f} \frac{s_{33,f}^E}{s_{33,m}^E}\right)}} \quad (4)$$

式中^[16]:下标f和m分别表示复合材料中的压电陶瓷纤维和环氧树脂基体材料; φ 表示压电陶瓷纤维或环氧树脂基体所占的体积分数。

计算结果表明:经过压电陶瓷纤维和环氧树脂基体两相复合后驱动器的压电性能和机电转变性能都比较好。当然这种公式推导的性能结果是建立在粗压电陶瓷纤维复合材料处于被充分极化的条件之下得出的,而实际的极化过程由于在复合材料表面封装叉指电极时电极不能完全地与复合材料表面充分接触,使得复合材料的极化不能完全充分进行。所以上述公式计算的结果与实际的结果仍然存在一定的误差,但是

作为对这种复合材料的初级评定,上述的公式还是可行的^[16-19]。

2.3 粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器的性能

图 3 为粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器的 $P-E$ 回线图。通过 TF Analyzer 2000 铁电分析仪测得该驱动的矫顽场 E_c 为 $8.3\text{kV}\cdot\text{cm}^{-1}$, 剩余极化强度 P_r 为 $31.45\mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}$, 结果表明该驱动器在进行极化的过程时所需的电压较低, 且极化后的效果较好。

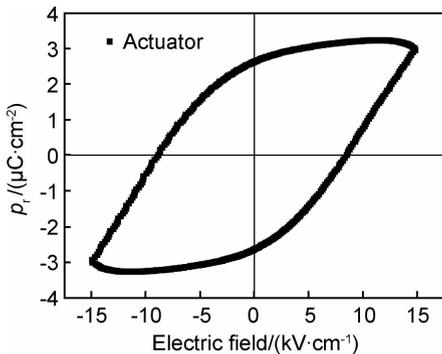


图 3 粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器的 $P-E$ 回线

Fig. 3 $P-E$ hysteresis loops of the macro piezoceramic fiber composite actuator

图 4 为粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器的自由应变性能曲线图。通过功率放大设备对驱动器施加振幅为 $\pm 1000\text{V}$ 、频率 50Hz 的正弦交变电压, 测得了驱动器的纵向应变和横向应变曲线。从自由应变曲线中可以看出驱动器的纵向应变和横向应变分别为 $30\mu\epsilon$ 和 $20\mu\epsilon$ 。通过应变和伸缩量的换算公式可以计算得到驱动器的纵向和横向伸缩量分别可达 $0.63\mu\text{m}$ 和 $0.34\mu\text{m}$, 显示出了该驱动器具有良好的纵向和横向伸缩性能。

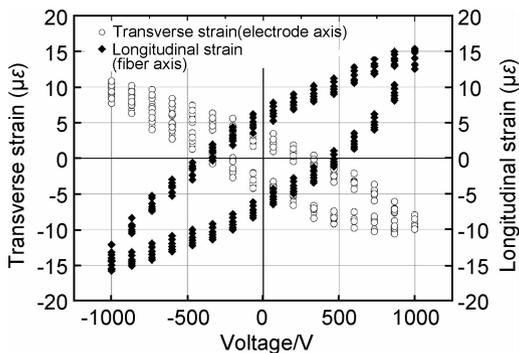


图 4 粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器的自由应变性能
($\pm 1000\text{V}$, 50Hz , 正弦电压, 循环 6 次)

Fig. 4 Free-strain performance of the macro piezoceramic fiber composite actuator ($\pm 1000\text{V}$, 50Hz , sine wave, 6 cycles)

3 结论

(1) 采用切割-填充法制备的粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器, 其压电陶瓷纤维复合层表面平整, 压电陶瓷纤维和环氧树脂基体排列均匀, 环氧树脂的致密性好, 提高了驱动器的整体力学性能。

(2) 采用切割-填充法制备的粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器, 其矫顽场 E_c 为 $8.3\text{kV}\cdot\text{cm}^{-1}$, 剩余极化强度 P_r 为 $31.45\mu\text{C}\cdot\text{cm}^{-2}$, 使得该驱动器在进行极化的过程时所需的电压较低, 且极化后的效果较好。

(3) 在 $\pm 1000\text{V}$, 50Hz 的正弦交变电压作用下, 驱动器可以产生纵向和横向应变分别为 $30\mu\epsilon$ 和 $20\mu\epsilon$, 即纵向和横向伸缩分别可达 $0.63\mu\text{m}$ 和 $0.34\mu\text{m}$, 相比于单相的压电陶瓷驱动器, 粗压电陶瓷纤维复合材料驱动器具有更加优越的伸缩性能。

参考文献

- [1] 刘永刚, 沈星, 裘进浩, 等. 压电纤维复合材料的研究[J]. 宇航材料工艺, 2007, (5): 18-21.
LIU Yong-gang, SHEN Xing, QIU Jin-hao, et al. Interdigitated electrodes piezoelectric fiber composites[J]. Aerospace Materials & Technology, 2007, (5): 18-21.
- [2] 林超, 陈凤, 袁莉, 等. 智能复合材料研究进展[J]. 玻璃钢/复合材料, 2012, (2): 74-77.
LIN Chao, CHEN Feng, YUAN Li, et al. Research progress in intelligent composite materials[J]. Fiber Reinforced Plastics/Composites, 2012, (2): 74-77.
- [3] LI Guo-rong, CHEN Da-ren, YIN Qing-rui. Displacement characterization of the PZT-based monolithic multilayer piezoelectric actuators[J]. Journal of Inorganic Materials, 1999, 14(3): 419-424.
- [4] YUAN Wen-hui, GU Ye-jian, LI Bao-qing, et al. Facile synthesis of graphene/ZnO nanocomposites by a low-temperature exfoliation method[J]. Journal of Inorganic Materials, 2012, 27(6): 591-595.
- [5] 徐玲芳, 陈文, 周静, 等. 锆钛酸铅镧压电陶瓷纤维的制备与性能[J]. 硅酸盐学报, 2010, 38(3): 419-424.
XU Ling-fang, CHEN Wen, ZHOU Jing, et al. Fabrication and performance lead lanthanum zirconatetitanate piezoelectric ceramic fiber[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society, 2010, 38(3): 419-424.
- [6] QIU Jin-hao, TANI Jun-ji, TOSHIYUKI U, et al. Fabrication and high durability of functionally graded piezoelectric bending actuators[J]. Smart Materials and Structures, 2003, 12(1): 115-121.
- [7] HUANG Shi-feng, LIU Ya-mei, GUO Li-li, et al. Influence of volume fraction of piezoelectric ceramic on properties of 1-3-2 piezoelectric composites[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society, 2009, 37(6): 923-926.

- [8] QIU Jin-hao, JIANG Hao, JI Hong-li, et al. Design, fabrication and performance evaluation of functionally gradient piezoelectric actuator[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2009, 17(1): 119–124.
- [9] BRUNNER A J, BARBEZAT M, HUBER C, et al. The potential of active fiber composites made from piezoelectric fibers for actuating and sensing applications in structural health monitoring[J]. *Mater Struct*, 2005, 38(5): 561–567.
- [10] BILGEN O, MARQUIJR C D, KOCHERSBERGER K B, et al. Macro-fiber composite actuators for flow control of a variable camber airfoil[J]. *J Intelligent Mater Syst Struct*, 2011, 22(1): 81–91.
- [11] WILKIE W K, BRYANT R G, HIGH J W, et al. Low-cost piezocomposite actuator for structural control applications[A]. *SPIE's 7th Annual International Symposium on Smart Structures and Materials*[C]. Newport Beach, CA:SPIE, 2000. 2199–3681.
- [12] WILLIAMS R B, GRIMSLEY B W, INMAN D J, et al. Manufacturing and mechanics-based characterization of macro fiber composite actuators[A]. *Proceedings of IMECE, ASME International Mechanical Engineering Congress & Exposition*[C]. New Orleans, Louisiana: ASME, 2002. 17–22.
- [13] DERAEMAERKER A, NASSER H, BENJEDDOU A, et al. Mixing rules for the piezoelectric properties of macro fiber composites[J]. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 2009, 20(12): 1475–1482.
- [14] ZHU Zhi-xiang, LI Jing-feng, LIU Yun-ya, et al. Shifting of the morphotropic phase boundary and superior piezoelectric response in Nb-doped $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ epitaxial thin films[J]. *Acta Materialia*, 2009, 57(14): 4288–4295.
- [15] WICKRAMASINGHEV K, WHAGOOD N. Material characterization of active fiber composites for integral twist-actuated rotor blade application[J]. *Smart Materials and Structures*, 2004, 13(5): 1155–1165.
- [16] JAMES E S, JOSEPH C. Piezoelectric properties of 3-X periodic $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ polymer composites[J]. *Journal of Applied Physics*, 2002, 92(10): 6119–6127.
- [17] YUAN Chang-lai, XUAN Min-jie, XU Ji-wen, et al. Preparation and magnetoelectric coupling effects of $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3/\text{CoFe}_2\text{O}_4$ laminated ceramics[J]. *Journal of Inorganic Materials*, 2013, 28(3): 318–320.
- [18] LIN Xiu-juan, ZHOU Ke-chao, ZHANG Xiao-yong, et al. Development modeling and application of piezoelectric fiber composites[J]. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 2013, 23(1): 98–107.
- [19] LI Shi-cheng, ZHU Kong-jun, QIU Jin-hao, et al. Fabrication of flexible piezoelectric fiber composite actuator by arrangement-casting method[J]. *Journal of Inorganic Materials*, 2013, 28(3): 332–335.

基金项目:国家自然科学基金中美合作与交流项目(51161120326);中国博士后基金(2012M521082);新教师类基金(20123218120035)

收稿日期:2014-01-13;修订日期:2014-11-25

通讯作者:裘进浩(1963—),男,教授,主要从事智能材料与结构研究,联系地址:江苏省南京市白下区御道街29号南京航空航天大学航空宇航学院 A18(210016),E-mail:qiu@nuaa.edu.cn