

排列-浇铸法制备柔性压电纤维复合驱动器

李世成, 朱孔军, 裘进浩, 庞旭明

(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)

摘 要: 设计了该压电纤维复合驱动器的结构, 包括叉指电极板、粘结层和压电纤维复合层三部分。采用排列-浇铸法制备了柔性的层状压电纤维复合驱动器。测试了铌锆铅钛酸铅(PZN-PZT)陶瓷的电学性能及力学性能, 理论推导了压电纤维复合材料的压电性能, 并采用基于 LabVIEW 的动态应变系统测试了驱动器的应变性能。结果表明, PZN-PZT 陶瓷的压电常数 d_{33} 为 520 pC/N, 居里温度 T_c 为 320℃, 弹性柔顺系数 s_{33} 为 $20.5 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}$ 。压电纤维复合材料的理论压电常数 \bar{d}_{33} 为 509 pC/N, \bar{d}_{31} 为 -156 pC/N。在 300 V 正弦交变电压作用下, 驱动器可以产生 100 $\mu\epsilon$ 的纵向应变和 58 $\mu\epsilon$ 的横向应变, 即纵横向伸缩分别可达 3.6 和 1.7 μm , 说明该驱动器具有较高的机电性能。

关 键 词: 压电陶瓷纤维; 压电复合; 压电陶瓷驱动器; 排列浇铸法; 叉指电极

中图分类号: TB381 文献标识码: A

Fabrication of Flexible Piezoelectric Fiber Composite Actuator by Arrangement-casting Method

LI Shi-Cheng, ZHU Kong-Jun, QIU Jin-Hao, PANG Xu-Ming

(State Key Laboratory of Mechanics and Control of Mechanical Structures, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China)

Abstract: The structure of piezoceramic fiber composite actuator was designed, consisting of interdigitated electrode plates, binder and piezoceramic fiber composite layer. The flexible, planar piezoceramic fiber composite actuators were prepared by arrangement-casting method. The electrical and mechanical properties of the PZN-PZT ceramics were tested. Piezoelectric properties of piezoceramic fiber composite were estimated by iso-strain mixing formulas. The strain properties of the actuator were tested using dynamic response system based on LabVIEW. The piezoelectric constant d_{33} , Curie temperature T_c and elastic compliance coefficient s_{33} of the PZN-PZT ceramics are found to be 520 pC/N, 320℃ and $20.5 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}$, respectively. Theory of piezoelectric constants \bar{d}_{33} and \bar{d}_{31} of piezoceramic fiber composite are 509 and -156 pC/N, respectively. Test results show that the actuator is capable of producing large, directional in-plane strains. 100 parts-per-million longitudinal strain and 58 parts-per-million transverse strain were generated under a 300 V peak-to-peak applied voltage cycle. The stretching of the longitudinal and transverse directions are 3.6 μm and 1.7 μm , respectively, indicating the actuator has a high electromechanical property.

Key words: piezoceramic fibers; composites; actuator; arrangement-casting method; interdigitated electrodes

压电复合材料是将具有强压电效应的陶瓷和柔性聚合物按一定的连通方式、一定的体积或重量比

收稿日期: 2012-04-04; 收到修改稿日期: 2012-05-22

基金项目: 国家自然科学基金(51172108); 教育部新世纪优秀人才支持计划(NCET-10-0070); 长江学者创新团队项目(IRT0968); 江苏高校优势学科建设工程资助项目

National Natural Science Foundation of China (51172108); Program for New Century Excellent Talents (NCET-10-0070); Changjiang Scholars Innovative Research Team Project (IRT0968); Universities of Jiangsu Province Advantages of Subject Construction Project

作者简介: 李世成(1987-), 男, 硕士研究生. E-mail: lishicheng1987@126.com

通讯作者: 朱孔军, 教授. E-mail: kjzhu@nuaa.edu.cn

例及一定的空间几何分布制成的材料。两种材料的复合可以优势互补,获得既具有较强压电性,又具有良好柔韧性的综合性能优异的压电材料。在智能材料与结构中,压电复合材料不仅可以解决传统技术中难于解决的一些关键问题,而且它的作用也是其它材料难以取代的。压电复合材料已受到了高度重视并进行了深入研究^[1-6]。

2001年以来,美国航空航天局兰利研究中心(NASA Langley Research Center)对压电纤维复合材料展开制备及应用研究,他们采用流延成型法制备陶瓷素坯,经过一定的烧结工艺,然后采用精密切割机将陶瓷切成纤维阵列,并成功制备了粗压电纤维复合材料(Macro Fiber Composites简称MFC)^[2,7-8]。MFC是一种把横截面为矩形的陶瓷纤维横向排列于聚合物中而复合的材料。和主动压电纤维复合材料(Active Fiber Composites简称AFC)不同的是,MFC中的矩形陶瓷纤维增大了陶瓷和电极的接触面积,提高了其机电转换效率^[9-11]。由于MFC的柔韧性较好,它可以广泛地应用于直升机转子叶片的振动控制、无人机的方向舵控制、组织健康监测、机翼的变形、人造卫星的振动控制等方面^[12-13]。

目前国内关于MFC制备方面的报道相对较少,开发具有我国自主知识产权的压电纤维复合材料,对于我国在航空智能结构领域的研究至关重要^[14-15]。美国航空航天局的Wilkie等^[2]所采用的制备方法存在以下几个缺点:a)陶瓷薄片面积较大烧结较困难,很难保证薄片的平整;b)加工风险高,陶瓷片脆性大,需要精细操作;c)不能满足批量生产。本工作采用排列-浇铸法将环氧树脂渗入陶瓷片的间隙中,先制备出2-2型压电陶瓷复合叠层,然后利用切割机将该2-2型压电陶瓷复合叠层切割成所需尺寸的粗压电纤维复合材料(MFC)。本研究介绍了MFC驱动器的结构和制备方法,测量了组成材料的电学与力学性能,理论推导了MFC的电学性能,并结合叉指电极对MFC的电学性能进行了分析。

1 实验部分

图1为MFC驱动器的结构示意图。MFC驱动器的结构分为三个部分:压电纤维复合层、一对刻有叉指电极(IDE)的柔性电路板和环氧树脂粘结界。

1.1 压电纤维复合层的制备

图2为排列-浇铸法制备压电纤维复合材料的工艺图。压电纤维复合材料的制备分为六个步骤。步骤一:采用流延法制备出尺寸为45 mm×13.5 mm×0.3 mm

的 $0.3\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-}0.7\text{Pb}(\text{Zr}_{0.49}\text{Ti}_{0.51})\text{O}_3$ (PZN-PZT)陶瓷片,如图2(a)所示。步骤二:选择70个已烧结的陶瓷,将其四个边对齐堆放好,用方形物体固定在两边,使陶瓷片保持整齐排列,如图2(b)所示。步骤三:将厚度为0.1 mm的隔板裁剪成图示的形状,然后将隔板依次插入陶瓷片的间隙中,并用适当的压力使陶瓷片和隔板保持紧密接触,形成陶瓷-隔板叠层结构,如图2(c)所示。步骤四:选择一个方形的底部平整的塑料容器,尺寸为57 mm×57 mm×45 mm,在容器的一个侧壁均匀地涂抹一层环氧树脂胶,然后将步骤三制备的陶瓷-隔板叠层结构的一侧缓慢靠近容器中的环氧胶,叠堆的另一端用方形物体夹紧,随后将容器放入烘箱中,在85℃下固化30 min后,将陶瓷片之间的隔板抽出,得到陶瓷片均匀排列的阵列结构,如图2(d)所示。步骤五:用电子秤分别称取50 g环氧树脂E-51,25 g聚酰胺PA650,10 g丙酮,随后将丙酮倒入聚酰胺中搅拌均匀,再将丙酮-聚酰胺混合物倒入环氧树脂中共同搅拌至均匀,制备成环氧树脂浇铸液,然后将浇铸液注入容器中,在相对真空度为-0.070 MPa时保压1 h,随后在相对真空度为-0.085 MPa时保压1 h,然后升温至50℃保温3 h,再升温至80℃保温1 h,最后脱模制备出2-2型压电陶瓷复合叠层,如图2(e)所示。步骤六:利用金刚石线切割机(STX-402, MTI Corporation)将2-2型压电陶瓷复合叠层切割成所需厚度的MFC,如图2(f)所示。

排列-浇铸法工艺过程简单、易于控制、可重复性好,成本低、效率高、易于批量生产,且制备出的复合材料上下表面平整,压电纤维排列均匀,环氧树脂的致密性好。

1.2 叉指电极板(IDE)

图3为MFC驱动器的叉指电极板实物图。IDE

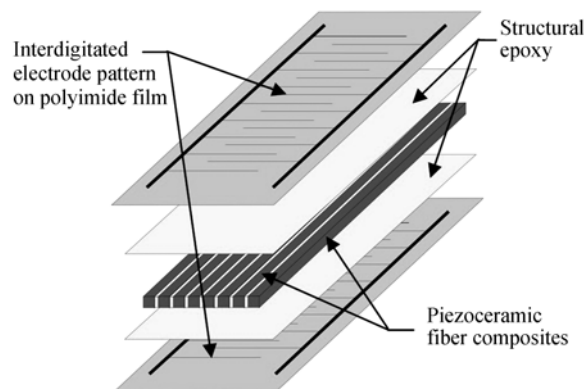


图1 MFC驱动器结构示意图

Fig. 1 MFC actuator structure diagram

Interdigitated electrode pattern, structural epoxy and piezoceramic fiber composites

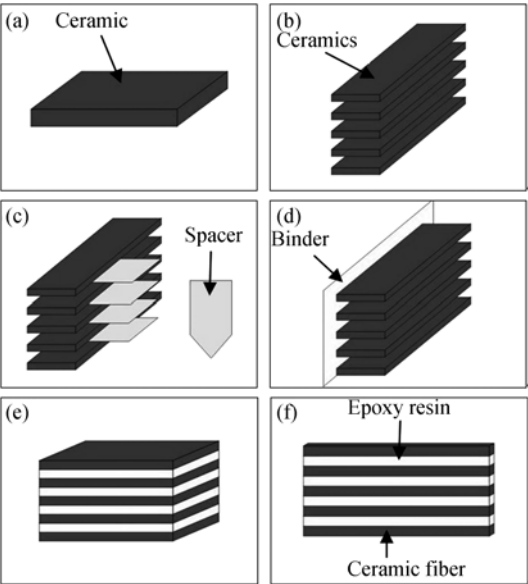


图 2 压电纤维复合层的制备工艺图

Fig. 2 Preparation process map of the piezoelectric fiber composites

(a) 45 mm×13.5 mm×0.3mm ceramic wafer prepared by tape-casting; (b) Aligned ceramics; (c) Ceramics separated by spacers; (d) Ceramics fixed with binders; (e) Polymer stack (2-2 laminated composite); (f) Piezoceramic fiber composites

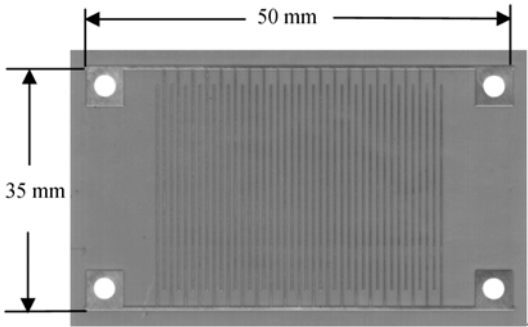


图 3 MFC 驱动器的叉指电极板

Fig. 3 Interdigitated electrode plate of MFC actuator (50 mm×35 mm, electrode gap: 1mm, finger width: 150 μm)

的具体尺寸参照表 1。MFC 所用的 IDE 交叉电极是刻在聚酰亚胺薄膜上的,聚酰亚胺薄膜起到载体和绝缘的作用。这种柔性电路板是采用高精度的光刻技术制备,IDE 中导电路径材料采用的是铜箔。铜箔的柔韧性很好,可以保证 MFC 驱动器具有较好的耐久性。

1.3 MFC 的封装与测试

图 4 为封装好的 MFC 驱动器示意图及局部放大图。用环氧树脂胶将压电纤维复合层封装在上下电极板之间。上下电极板的交叉线路保持镜面对称,也就是线路保持完全重合,再经过真空热压处理,压力约为 4 MPa,温度设置在 60℃,抽真空 4 h,最终得到 MFC 驱动器。

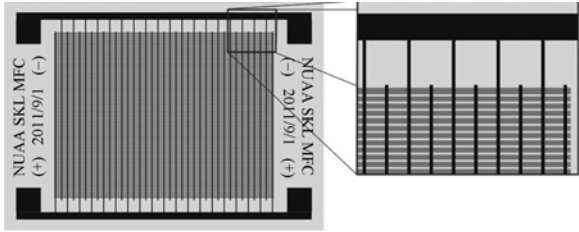


图 4 封装好的 MFC 驱动器及局部放大图

Fig. 4 The encapsulated MFC actuator and structural detail

表 1 MFC 驱动器的尺寸

Table 1 Dimension of MFC actuator

Properties	Dimension
Package active area width, w_{mfc}	29 mm
Package active area length, l_{mfc}	36 mm
Package maximum thickness, t_{mfc}	450 μm
Piezoelectric fiber thickness, t_f	300 μm
Piezoelectric fiber width, w_f	310 μm
Piezoelectric fiber spacing, k_f	100 μm
Interdigitated electrode gap, center-to-center, p_e	1 mm
Interdigitated electrode finger width, w_e	150 μm
Interdigitated electrode thickness, t_e	18 μm
Electrode laminate acrylic adhesive thickness, t_a	13 μm
Polyimide outer electrode film thickness, t_p	50 μm

因为压电纤维之间由聚合物连接,增加了材料整体的柔韧性,使封装过程变得简单方便。该方法更容易控制、易于批量生产,且能保证产品性能的一致性。本研究制备的 MFC 驱动器的几何尺寸如表 1 所示。

陶瓷的压电应变常数 d_{33} 采用准静态压电应变仪(ZJ-3A, Institute of Acoustics, Academic Sinica, Beijing, China)测量,机电耦合系数 k_{33} 、相对介电常数 ϵ_r 和介电损耗 $\tan\delta$ 通过阻抗分析仪(HP 4294A, Agilent, USA)测量。陶瓷和环氧树脂基体的弹性柔顺系数 s_{33} 采用沃特世科技(上海)有限公司生产的 DMA2980 动态热分析仪测量。MFC 的上下表面覆盖叉指电极(Interdigitated Electrode 简称 IDE),使用 2671 型万能击穿装置在室温下对其进行极化,IDE 的正负电极间距为 0.85 mm,极化电压为 2500 V/mm,极化时间为 20 min。结合惠斯通电桥和基于 LabVIEW 的动态应变系统对 MFC 的应变进行测试。

2 结果分析

2.1 PZN-PZT 陶瓷的性能

表 2 列出了 PZN-PZT 陶瓷的电学、力学等性能。根据测试结果可以看出,陶瓷的致密性较好,压电常数较高,居里温度非常高,弹性柔顺系数较低。较

表 2 PZN-PZT 陶瓷的性能
Table 2 Properties of PZN-PZT ceramics

Properties	PZN-PZT ceramics
Piezoelectric strain constant, $d_{33}/(\text{pC}\cdot\text{N}^{-1})$	520
Piezoelectric strain constant, $d_{31}/(\text{pC}\cdot\text{N}^{-1})$	-205
Density, $\rho/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$	7.88
Dielectric constant, ϵ_r	1704
Mechanical quality factor, Q_m	63
Electromechanical coupling coefficient, k_{33}	0.6
Curie temperature, $T_c/^\circ\text{C}$	320
Elastic compliance coefficient, $s_{33}/(\text{m}^2\cdot\text{N}^{-1})$	2.05×10^{-11}

高的居里温度是 PZN-PZT 陶瓷的突出优点。采用 PZN-PZT 陶瓷制备的 MFC 驱动器的性能稳定, 抗老化能力强, 使用温度范围较宽^[16]。

2.2 压电纤维复合材料的共应变理论

MFC 性能可以通过两相压电复合材料的复合理论简单计算。因为 MFC 的主动部分由平行排列的压电纤维和非压电基体材料组成, MFC 的压电性能可以利用组成材料各自的性能和下面列出的共应变方程粗略推导^[16-18]。

纵向压电常数(pC/N):
$$\bar{d}_{33} = \frac{d_{33,f}}{\left(1 + \frac{\phi_m}{\phi_f} \frac{s_{33,f}^E}{s_{33,m}^E}\right)} \quad (1)$$

横向压电常数(pC/N):
$$\bar{d}_{31} = \phi_f d_{31,f} \quad (2)$$

介电常数:
$$\bar{\epsilon}_r = \phi_f \epsilon_{r,f} + \phi_m \epsilon_{r,m} \quad (3)$$

机电耦合系数:
$$\bar{k}_{33} = \frac{k_{33,f}}{\sqrt{\left(1 + \frac{\phi_m}{\phi_f} \frac{\epsilon_{r,m}}{\epsilon_{r,f}}\right) \left(1 + \frac{\phi_m}{\phi_f} \frac{s_{33,f}^E}{s_{33,m}^E}\right)}} \quad (4)$$

公式(1)~(4)中^[18], 下标 f 和 m 分别表示复合材料中的压电纤维和基体材料, ϕ 表示纤维或基体的体积分数。一般来说, 与压电纤维比较, 环氧树脂基体材料和聚酰亚胺薄膜的刚性和介电性能都很低。为了理论推导的准确性, 纤维和基体材料的柔顺性和介电性能都做了定量分析。基体的弹性柔顺系数和介电常数分别为 $310\times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}$ 和 3.5。

表 3 列出了利用上述公式推导出的 MFC 的理论电学性能。上述公式推导出的结果只是作为初级评定, 计算只考虑了 MFC 被充分极化的情况。在实际中, MFC 是将压电材料封装在上下叉指电极板之间的整体结构。只有采用更复杂的公式才能得出更接近实际的数值, 但是, 上述的共应变方程可以作为初级评定^[17-18]。

2.3 MFC 的性能

图 5 为 MFC 驱动器的电压-应变曲线图。在

表 3 压电纤维复合材料的理论电学性能
Table 3 Theory of electrical properties of piezoceramic fiber composite

Properties	Piezocomposites
Piezoelectric strain constant, $\bar{d}_{33}/(\text{pC}\cdot\text{N}^{-1})$	509
Piezoelectric strain constant, $\bar{d}_{31}/(\text{pC}\cdot\text{N}^{-1})$	-156
Dielectric constant, $\bar{\epsilon}_r$	1296
Electromechanical coupling coefficient, \bar{k}_{33}	0.58

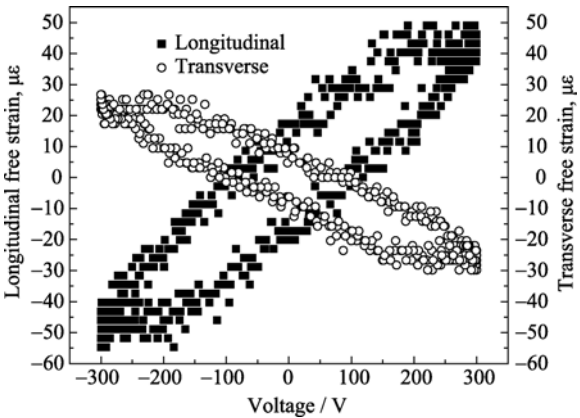


图 5 MFC 驱动器的自由应变性能: ($\pm 300 \text{ V}$, 10 Hz, 正弦电压, 循环 4 次)

Fig. 5 Free-strain performance of MFC actuator ($\pm 300 \text{ V}$, 10 Hz sine wave, 4 cycles)

MFC 的上下表面各粘结一个纵向的和横向的电阻应变计(BE120-3AA, 齐齐哈尔市万达电器设备厂), 将 MFC 驱动器的正负极连接到 NI 9263 输出电源上, 再把电阻应变计连接到 NI 9237 惠斯通电桥模拟输入组件上, 在 LabVIEW 程序中测量 MFC 驱动器的应变性能。通过电压放大设备施加振幅 $\pm 300 \text{ V}$ 、频率 10 Hz 的正弦电压。实验测得了 MFC 的纵向应变和横向应变曲线。MFC 的纵向应变振幅为 $100 \mu\epsilon$, 横向应变振幅为 $58 \mu\epsilon$ 。

通过简单地计算, 可以得到 MFC 驱动器的纵向和横向伸缩分别为 3.6 和 $1.7 \mu\text{m}$ 。结果表明, 叉指电极产生的平面内的电场沿着压电纤维轴心方向, 促使压电纤维产生较大的纵向压电效应, 所以在纤维轴向发生的机械响应最大, 从而产生较大的纵向伸缩振动。

从电压-应变曲线(图 5)还可以看到 MFC 驱动器的电压-应变曲线存在迟滞现象。在本研究中将迟滞量化定义为零电压位置对应的纵向应变的差值与总的纵向应变之比。迟滞性越大, 所测样品的机电转换能力越差; 迟滞性越小, 所测样品的机电转换能力越强^[17]。在本实验测试条件下, 得到 MFC 驱动器产生的电压-应变的迟滞为 33%。结果表明,

MFC 驱动器具有较强的机电转换能力。

3 结论

1) 采用排列-浇铸法制备的 MFC 驱动器纤维排列整齐均匀,压电纤维复合层表面平整,复合层与电极板的接触性较好,使 MFC 驱动器的性能更加优越。

2) 叉指电极产生的电场与压电纤维轴心方向平行,促使压电纤维产生较大的纵向压电效应(d_{33}),所以在纤维轴向发生的机械响应最大($d_{33} > d_{31}$)。

3) 施加 300 V、10 Hz 的正弦交变电压, MFC 驱动器可以产生 100 $\mu\epsilon$ 的纵向应变和 58 $\mu\epsilon$ 的横向应变,即纵、横向伸缩分别可达 3.6 和 1.7 μm ,相比于传统压电陶瓷, MFC 驱动器具有明显优越的性能。

参考文献:

- [1] YUAN Wen-Hui, GU Ye-Jian, LI Bao-Qing, *et al.* Facile synthesis of graphene/ZnO nanocomposites by a low-temperature exfoliation method. *Journal of Inorganic Materials*, 2012, **27**(6): 591–595.
- [2] Wilkie W Keats, Bryant Robert G, High James W, *et al.* Low-cost Piezocomposite Actuator for Structural Control Applications. SPIE's 7th Annual International Symposium on Smart Structures and Materials, Newport Beach, CA, 2000: 2199–3681.
- [3] Bent A A, Hagood N W. Piezoelectric fiber composites with interdigitated electrodes. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 1997, **8**(11): 903–919.
- [4] Zhu Zhi-Xiang, Li Jing-Feng, Liu Yunya, *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. *Acta Materialia*, 2009, **57**(14): 4288–4295.
- [5] Bent Aaron A, Hagood Nesbitt W, Rodgers John P. Anisotropic actuation with piezoelectric fiber composites. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 1995, **6**(3): 338–349.
- [6] ZHAO Yan, SUN Kang-Ning, LIU Peng. Low-temperature sintering and mechanical properties of lithium nitrate toughening carbon nano-tubes/hydroxyapatite biocomposites. *Journal of Inorganic Materials*, 2011, **26**(8): 863–868.
- [7] Williams R B, Grimsley B W, Inman D J, *et al.* Manufacturing and Mechanics-based Characterization of Macro Fiber Composite Actuators. Proceedings of IMECE. ASME International Mechanical Engineering Congress & Exposition, New Orleans, Louisiana, 2002: 17–22.
- [8] Hagood Nesbitt W, Pizzochero Alessandro. Residual stiffness and actuation properties of piezoelectric composites: theory and experiment. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 1997, **8**(9): 724–737.
- [9] HAN Quan-Wei, LI Kun, PENG Song, *et al.* Fabrication of the cobalt ferrite/modified sodium bismuth titanate 0-3 multiferroic composites via diffusion-blocking. *Journal of Inorganic Materials*, 2011, **26**(5): 486–490.
- [10] Schrock Johannes, Meurer Thomas, Kugi Andreas. Control of a flexible beam actuated by macro-fiber composite patches: I. Modeling and feedforward trajectory control. *Smart Mater. Struct.*, 2011, **20**(1): 015015–1–7.
- [11] Wilkie W K, High J, Bockman J. Reliability Testing of NASA Piezocomposite Actuators. Proceedings of the 8th International Conference on New Actuators, Bremen, Germany, 2002: 10–12.
- [12] Bilgen O, Kochersberger K B, Inman D J. Macro-fiber composite actuators for flow control of a variable camber airfoil. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 2011, **22**(1): 81–91.
- [13] Schrock Johannes, Meurer Thomas, Kugi Andreas. Control of a flexible beam actuated by macro-fiber composite patches: II. hysteresis and creep compensation, experimental results. *Smart Mater. Struct.*, 2011, **20**(1): 015016–1–10.
- [14] Melnykowyczl M, Barbezat M, Koller R, *et al.* Packaging of active fiber composites for improved sensor performance. *Smart Mater. Struct.*, 2010, **19**(1): 015001–1–9.
- [15] Wickramasinghe Viresh K, Whagood Nesbitt. Material characterization of active fiber composites for integral twist-actuated rotor blade application. *Smart Mater. Struct.*, 2004, **13**(5): 1155–1165.
- [16] ANSI/IEEE Std 176-1987, IEEE Standard on Piezoelectricity.
- [17] Wilkie W Keats, Inman Daniel J, Lloyd Justin M, *et al.* Anisotropic Piezocomposite Actuator Incorporating Machined PMN-PT Single Crystal Fibers. The 45th AIAA/ASME/ASCE/AHS/ASC Structural Dynamics and Materials Conference, United States, 2004: 1889–1905.
- [18] James E Smay, Joseph Cesarano, Tuttle B A, *et al.* Piezoelectric properties of 3-X periodic $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ -polymer composites. *Journal of Applied Physics*, 2002, **92**(10): 6119–6127.