

锆钛酸铅陶瓷在力电耦合场下疲劳性能的评价

邓启煌^{1,3}, 王连军¹, 王宏志¹, 江 莞^{2,3}

(1. 东华大学 纤维材料改性国家重点实验室, 上海 201620; 2. 东华大学 先进玻璃制造技术教育部工程研究中心, 上海 201620; 3. 中国科学院 上海硅酸盐研究所, 上海 200050)

摘 要: 小样品力学性能试验方法(Modified Small Punch Tests, 简称 MSP)是评价陶瓷材料力学性能的一种有效方法. 采用改进型多场耦合小冲压(MSP)试验法评价了 $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ 陶瓷(PZT)在力电耦合和纯力场下的疲劳性能. 通过对比在纯力场和力电耦合下的力学性能可以看出: 与纯力场下相比, PZT 陶瓷在力电耦合下的断裂强度会降低. 在力场和电场的同时作用下, 疲劳寿命显著缩短, 压电陶瓷材料内部易出现沿晶断裂.

关 键 词: 力电耦合; 小样品力学试验; 疲劳性能; PZT

中图分类号: TQ174

文献标识码: A

Evaluation of Fatigue of the Lead Zirconate Titanate Ceramics under Electro-mechanical Coupling Field

DENG Qi-Huang^{1,3}, WANG Lian-Jun¹, WANG Hong-Zhi¹, JIANG Wan^{2,3}

(1. State Key Laboratory for Modification of Chemical Fibers and Polymer Materials, Donghua University, Shanghai 201620, China; 2. Engineering Research Center of Advanced Glasses Manufacturing Technology, MOE, Donghua University, Shanghai 201620, China; 3. Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China)

Abstract: Modified small punch (MSP) tests are effective evaluation methods for mechanical properties by using small specimens. Fatigue properties of PZT ceramics under electro-mechanical coupling field and pure force field were evaluated with multi-fields coupling MSP tests. It is found that the fracture strength of the samples under electro-mechanical field would sharply decrease, compared with the samples under pure force field. Fatigue life would decrease greatly and intergranular fracture would happen easily under electro-mechanical coupling field.

Key words: electromechanical coupling; modified small punch test; fatigue properties; PZT

锆钛酸铅陶瓷具备优良的铁电性、热释电性、压电性和光学等性能, 已广泛应用于常规元器件及信息电子产品^[1-2]. 在大多数的应用中, 器件都是在力场和电场的耦合条件下服役, 力电耦合作用是其结构破坏和压电失效的主要原因. 压电陶瓷在力电耦合下其疲劳性能的研究已成为当今的一个热点^[3-5].

有文献报道采用预制裂纹的球压法^[6-9]、单相拉

伸^[10]和弯曲试验法^[11-19]研究陶瓷的疲劳行为. 但是许多陶瓷材料为薄板或片状, 用上述方法无法评价真实应力状态下的疲劳行为, 如陶瓷涂层、陶瓷基板等. 另外, 单相拉伸和弯曲试验法用于疲劳评价时, 样品的加载困难, 并且不易精确定位.

多场耦合 MSP 试验法的样品制备简便, 固定方便, 可以很精确测试陶瓷材料的位移, 在评价脆性材料, 如陶瓷^[20-21]及其复合材料^[22-27]、特别是功能

收稿日期: 2011-08-15; 收到修改稿日期: 2011-10-31

基金项目: 上海市科学技术委员会基础研究重点项目(10JC1400500); 上海市重点学科项目(B603); 航空科学基金(201108M2001) Shanghai Science and Technology Committee, Key Project of Foundation Research (10JC1400500); Shanghai Leading Academic Discipline Project (B603); Aeronautical Science Foundation of China Project (201108M2001)

作者简介: 邓启煌(1982-), 男, 博士研究生. E-mail: dengqihuang@mail.dhu.edu.cn

通讯作者: 江 莞, 教授. E-mail: wanjiang@dhu.edu.cn

陶瓷^[28-30]等方面, 得到了很好应用. 另外, MSP 试验法的应力状态和弯曲试验法类似, MSP 强度也能和弯曲强度对应, 所以 MSP 试验法评价疲劳更具有实用意义. MSP 试验法与电场及温度场结合还可以很方便地评价功能陶瓷在多场耦合下的力学性能.

本工作采用 MSP 试验法与电场结合评价 PZT 陶瓷在纯力场下和力电耦合下的疲劳性能, 并讨论了力电耦合对 PZT 陶瓷疲劳的影响, 获得了在不同的加载条件下 PZT 陶瓷的疲劳寿命, 从而论证了 MSP 试验法用于评价陶瓷材料疲劳性能的可行性和可靠性.

1 实验方法

1.1 材料制备

压电陶瓷样品选用保定市宏声声学电子器材有限公司提供的 PZT-5 陶瓷, 其 Zr/Ti 摩尔比为 52/48, 在 120 °C 的硅油中极化 25 min, 极化电压为 2500 V/mm. 压电陶瓷样品的尺寸为 $\phi 10 \text{ mm} \times 0.6 \text{ mm}$ 的圆片.

1.2 材料表征

MSP 测试的模具设计如图 1 所示, 图 1(a)为 MSP 试验法的示意图, 图 1(b)为 MSP 强度计算的模型, MSP 测试采用万用力学测试系统(Instron, 8501, USA)作为驱动和数据采集平台, MSP 实验装置主要包括压头、上模、下模、高精度位移传感器和电源. 样品由下模支撑, 负载通过压头加在试样的中心,

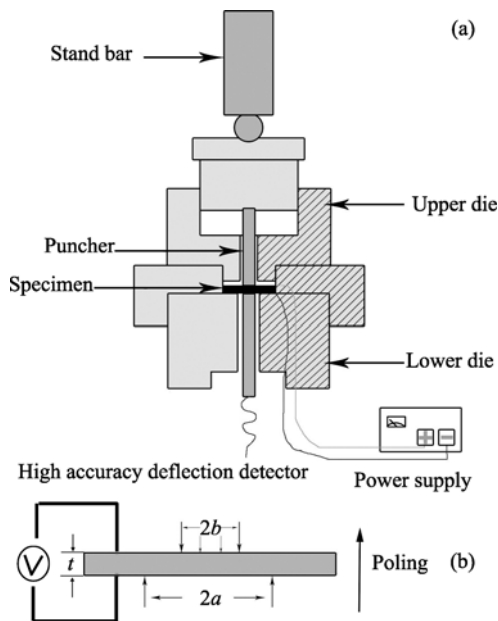


图 1 MSP 试验法模具示意图(a)和强度计算模型(b)

Fig. 1 Schematic drawing of MSP-testing apparatus (a) and model for strength calculation (b)

试样的变形位移由高精度位移传感器探测. 对 PZT 陶瓷材料进行不同加载速率下的 MSP 强度测试, 测试条件如下, 加载速率分别为 0.0005、0.005、0.05、0.5 和 5 mm/min, 直至样品断裂, 相对应的采样速率分别为 10、10、20、100、500 Hz. 可以通过引入电源在测试纵轴方向上施加交流电场, PZT 陶瓷在力电耦合下服役的电场大小在矫顽场 ($E_c = 700 \text{ V/mm}$) 之下^[31], 本实验选择的力电耦合的电场大小为: $E = 700 \sin(100\pi t) \text{ V/mm}$, 其中 t 为加载时间, 在不同加载速率下对样品进行 MSP 强度测试, 载荷和位移都通过计算机记录. 每组样品测试五次, 并通过统计得到平均值. 断裂强度均可以通过下面的公式计算出来:

$$\sigma = \frac{3P}{2\pi t^2} \left[1 - \frac{1-\gamma^2}{4} \cdot \frac{b^2}{a^2} + (1+\gamma) \ln \frac{a}{b} \right] \quad (1)$$

其中 P 为断裂载荷(N), γ 为泊松比, a 和 b 为图 1(b) 中的承载模内孔半径和圆柱形压头半径(mm), t 为试样厚度(mm).

采用扫描电镜(FESEM JSM-6390F, JEOL, Japan)观察 MSP 试验后样品的断面形貌.

2 结果与讨论

图 2(a)为在纯力场下 PZT 陶瓷的 MSP 强度和

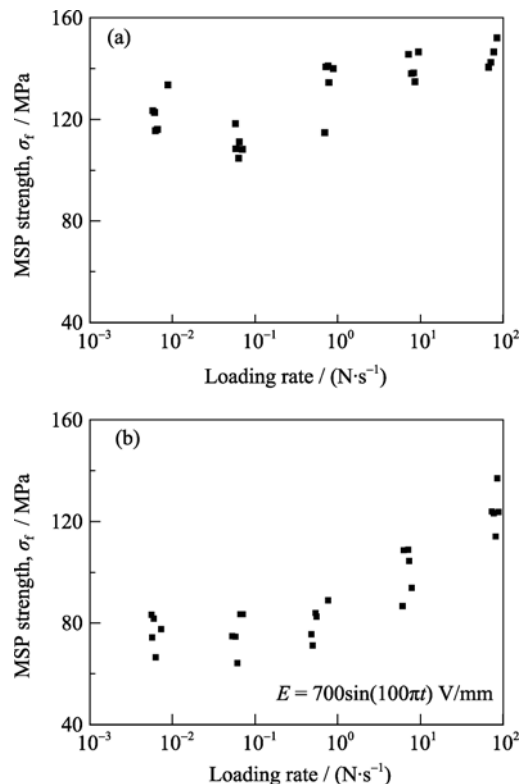


图 2 不同载荷速率下 PZT 陶瓷的 MSP 强度

Fig. 2 MSP strength of PZT ceramic under different loading rates

载荷速率的关系, 图 2(b)为在力电耦合场下 PZT 陶瓷的 MSP 强度和载荷速率的关系. 从图 2 可以看出, 无论是在纯力场下还是力电耦合场下, 随着应力速率的增大, PZT 陶瓷的 MSP 强度都在增大. 在纯力场下, PZT 陶瓷的 MSP 平均强度在 110~144 MPa 之间, 在力电耦合下, PZT 陶瓷的 MSP 平均强度在 76~124 MPa 之间, 由此可以看出, 在力电耦合场下的 PZT 陶瓷的 MSP 强度较低, 并且, MSP 强度变化也较显著. 可能是交变电场引起材料内部的电畴, 电畴的翻转诱导微裂纹的产生, 材料内部的微裂纹会降低材料的 MSP 强度^[32].

图 3(a)为在纯力场下 PZT 陶瓷的 $\lg \sigma_f$ 和 $\lg(d\sigma/dt)$ 的关系, 图 3(b)为在力电耦合场下 PZT 陶瓷的 $\lg \sigma_f$ 和 $\lg(d\sigma/dt)$ 的关系. 从图 3 中可以看出, 随着加载速率的降低, PZT 陶瓷达到断裂所需的时间越长, 在长时间受到一个力的作用时, PZT 陶瓷会发生裂纹的缓慢扩展, 这个疲劳效应对陶瓷的力学性能产生影响, 导致 PZT 陶瓷的断裂强度下降. 从图 3 中还可以看出 $\lg \sigma_f$ 和 $\lg(d\sigma/dt)$ 呈线性关系, 通过拟合得到在纯力场下和力电耦合场下的斜率分别为 0.025 和 0.053. 拟合直线的斜率越大, 表明 PZT 陶瓷的强度下降的越快, 从拟合直线斜率的结果可以看出, 在力电耦合场下, PZT 陶瓷的直线斜率是纯力场下

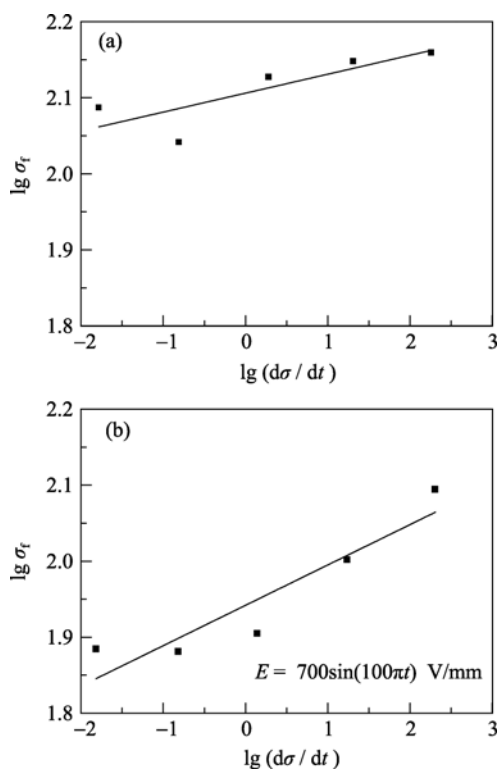


图 3 (a)纯力场下, (b)力电耦合下 $E=700\sin(100\pi t)$ V/mm $\lg \sigma_f$ 和 $\lg(d\sigma/dt)$

Fig.3 Relation between $\lg \sigma_f$ and $\lg(d\sigma/dt)$ (a) force load, (b) electromechanical coupling load $E=700\sin(100\pi t)$ V/mm

斜率的一倍, 也即, PZT 陶瓷在力电耦合场下的疲劳效应比较显著.

图 4(a)为在纯力场下的 PZT 陶瓷的寿命曲线, 图 4(b)为在力电耦合场下的 PZT 陶瓷的寿命曲线. 从图 4 中可以看出, 随着对陶瓷加载力的减小, 陶瓷的使用寿命增大. 通过对比图 4(a)(b)可知, 在力电耦合作用下, 由于电场的作用, 导致 PZT 陶瓷的抗疲劳能力变差, 平均寿命变短. 当应力为 97 MPa 时, 在纯力场下, PZT 陶瓷的平均寿命为 72 h, 在力电耦合下时, PZT 陶瓷的平均寿命只有 18 s; 当应力降低到 83 MPa 时, 在纯力场下, PZT 陶瓷的平均寿命为 1 年, 在力电耦合下, PZT 陶瓷的平均寿命只有 154 s. 上述结果表明, 在高应力作用下, PZT 陶瓷在纯力场下和力电耦合下的平均寿命差距较小; 而在低应力作用下, 虽然 PZT 陶瓷在力电耦合下使用的寿命要与纯力场下寿命相比差距较大, 但两者的寿命均比高应力作用下的寿命变长. 当应力下降到 32 MPa 时, 在纯力场作用下, PZT 陶瓷的平均寿命大于 2×10^{13} 年, 在力电耦合条件下, PZT 陶瓷的平均寿命可达到 3.5 年, 均超过电子陶瓷通常使用的 3 年设计寿命, 即该应力下均可长期使用.

图 5 为 PZT 陶瓷的断面 SEM 形貌. 如图 5(a)

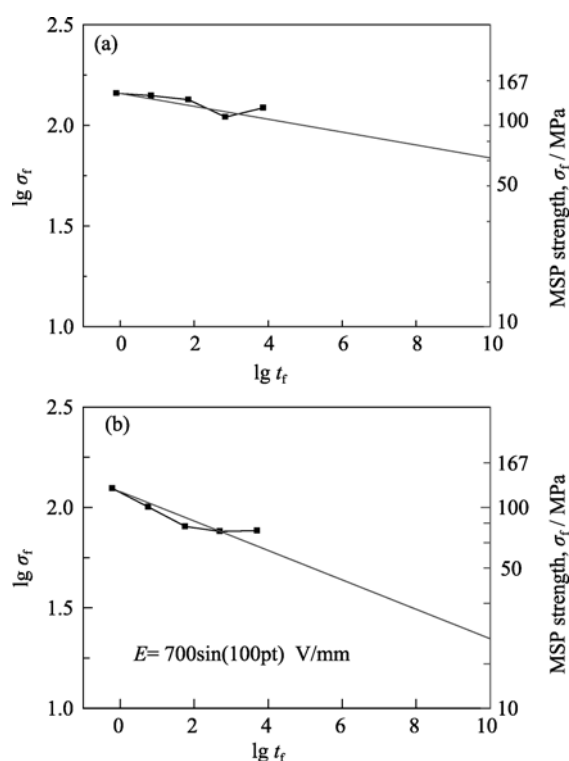


图 4 PZT 陶瓷的 MSP 强度随破坏时间的变化(a)纯力场下, (b)力电耦合下 $E=700\sin(100\pi t)$ V/mm

Fig.4 MSP strength of PZT ceramic versus time to failure (a) force load; (b) electromechanical coupling load $E=700\sin(100\pi t)$ V/mm

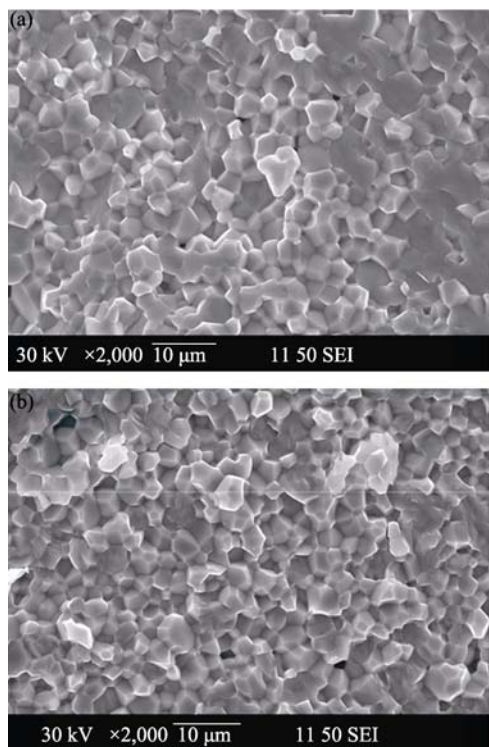


图5 PZT陶瓷断面SEM照片(a)纯力场下, (b)力电耦合场下
Fig. 5 SEM micrographs of fracture surfaces of the PZT ceramics under (a) force load, (b) electromechanical coupling load $E=700\sin(100\pi t)$ V/mm

和(b)所示, PZT陶瓷样品具有致密的结构, 晶粒大小约为 $3\sim 5\ \mu\text{m}$, 晶粒发育完整, 大小均匀. 图5(a)是在纯力场下的断裂结果, 微观组织中有小部分的断裂表现为穿晶断裂的方式, 因此, 它的力学性能较好, 强度较高. 而图5(b)中, 力电耦合场下的断裂方式以沿晶断裂为主, 电场对材料的力学性能产生影响, 可能是交变电场导致PZT陶瓷内部电畴的翻转, 促进了晶界附近裂纹的产生与扩展, 降低了材料的力学性能^[33].

3 结论

通过将电场引入MSP试验法, 评价了PZT压电陶瓷在力电耦合场下的疲劳性能, 获得如下结论:

- 1) 与纯力场相比, PZT陶瓷在力电耦合作用下的MSP断裂强度会降低.
- 2) 在力场和电场的同时作用下, 疲劳寿命显著缩短, 压电陶瓷材料易出现沿晶断裂.
- 3) 利用MSP方法与电场结合来评价PZT陶瓷在力电耦合场下的力学性能是一种方便、有效和可靠的测试方法.

参考文献:

[1] Bexell M, Johansson S. Fabrication and evaluation of a piezoelec-

tric miniature motor. *Sensors and Actuators a-Physical*, 1999, **75(1)**: 8–16.

- [2] Tressler J F, Alkoy S, Newnham R E. Piezoelectric sensors and sensor materials. *Journal of Electroceramics*, 1998, **2(4)**: 257–272.
- [3] Fu R, Qian C F, Zhang T Y. Electrical fracture toughness for conductive cracks driven by electric fields in piezoelectric materials. *Applied Physics Letters*, 2000, **76(1)**: 126–128.
- [4] Fu R, Zhang T Y. Effects of an electric field on the fracture toughness of poled lead zirconate titanate ceramics. *Journal of the American Ceramic Society*, 2000, **83(5)**: 1215–1218.
- [5] Wang H, Wereszczak A A. Effects of electric field and biaxial flexure on the failure of poled lead zirconate titanate. *IEEE Transactions on Ultrasonics Ferroelectrics and Frequency Control*, 2008, **55(12)**: 2559–2570.
- [6] Pedersen T O, Tvergaard V. On low cycle fatigue in metal matrix composites. *International Journal of Damage Mechanics*, 2000, **9(2)**: 154–173.
- [7] Birman V, Byrd L W. Damping in ceramic matrix composites with matrix cracks. *International Journal of Solids and Structures*, 2003, **40(16)**: 4239–4256.
- [8] Kawakami Y, Takeshige F, Hayashi M, et al. Fatigue of tooth-colored restoratives in aqueous environment. *Dental Materials Journal*, 2007, **26(1)**: 1–6.
- [9] Mitov G, Lohbauer U, Rabbo M A, et al. Investigations of subcritical crack propagation of the Empress 2 all-ceramic system. *Dental Materials*, 2008, **24(2)**: 267–273.
- [10] Jung Y G, Peterson I M, Kim D K, et al. Lifetime-limiting strength degradation from contact fatigue in dental ceramics. *Journal of Dental Research*, 2000, **79(2)**: 722–731.
- [11] Dusza J, Sajgalik P, Steen M, et al. Dynamic fatigue of a $\text{Si}_3\text{N}_4+\text{SiC}$ nanocomposite at 1350°C . *Materials Science and Engineering a-Structural Materials Properties Microstructure and Processing*, 2000, **291(1/2)**: 250–255.
- [12] Dusza J, Sajgalik P, Steen M, et al. Low-cycle fatigue strength under step loading of a $\text{Si}_3\text{N}_4+\text{SiC}$ nanocomposite at 1350°C . *Journal of Materials Science*, 2001, **36(18)**: 4469–4477.
- [13] Thompson G A. Determining the slow crack growth parameter and weibull two-parameter estimates of bilaminate disks by constant displacement-rate flexural testing. *Dental Materials*, 2004, **20(1)**: 51–62.
- [14] Zhang Y, Lawn B R, Rekow E D, et al. Effect of sandblasting on the long-term performance of dental ceramics. *Journal of Biomedical Materials Research Part B-Applied Biomaterials*, 2004, **71B(2)**: 381–386.

- [15] Sundh A, Molin M, Sjogren G. Fracture resistance of yttrium oxide partially-stabilized zirconia all-ceramic bridges after veneering and mechanical fatigue testing. *Dental Materials*, 2005, **21**(5): 476–482.
- [16] Teixeira E C, Piascik J R, Stoner B R, *et al.* Dynamic fatigue and strength characterization of three ceramic materials. *Journal of Materials Science-Materials in Medicine*, 2007, **18**(6): 1219–1224.
- [17] Clausen J O, Abou Tara M, Kern M. Dynamic fatigue and fracture resistance of non-retentive all-ceramic full-coverage molar restorations. Influence of ceramic material and preparation design. *Dental Materials*, 2010, **26**(6): 533–538.
- [18] Griggs J A, Alaqeel S M, Zhang Y L, *et al.* Effects of stress rate and calculation method on subcritical crack growth parameters deduced from constant stress-rate flexural testing. *Dental Material*, 2011, **27**(4): 364–370.
- [19] Ramalingam S, Reimanis I E, Fuller E R, *et al.* Slow crack growth behavior of zirconia-toughened alumina and alumina using the dynamic fatigue indentation technique. *Journal of the American Ceramic Society*, 2011, **94**(2): 576–583.
- [20] Li J F, Wang S A, Wakabayashi K, *et al.* Properties of modified lead zirconate titanate ceramics prepared at low temperature (800°C) by hot isostatic pressing. *Journal of the American Ceramic Society*, 2000, **83**(4): 955–957.
- [21] Li J F, Pan W, Sato F, *et al.* Mechanical properties of polycrystalline Ti_3SiC_2 at ambient and elevated temperatures. *Acta Materialia*, 2001, **49**(6): 937–945.
- [22] Jiang W, Bai G Z, Wang G, *et al.* High temperature strength of Mo/PSZ composites as evaluated by MSP test (II). *Journal of Inorganic Materials*, 2002, **17**(5): 1034–1040.
- [23] Jiang W, Li J F. Compositional dependence of thermal and mechanical properties for sintered Mo/PSZ composites. *Acta Metallurgica Sinica*, 2002, **38**(4): 438–442.
- [24] Jiang W, Wang G, Wu L B, *et al.* High temperature strength of Mo/PSZ composites as evaluated by MSP test (I). *Journal of Inorganic Materials*, 2002, **17**(4): 827–832.
- [25] Li J F, Kawai M, Kikuchi K, *et al.* Strength proof evaluation of diffusion-jointed W/Ta interfaces by small punch test. *Journal of Nuclear Materials*, 2003, **321**(2/3): 129–134.
- [26] Wang G, Jiang W, Bai G Z, *et al.* Effect of additions of oxide on microstructure and BDTT of MoSi_2 /oxide composites. *Composite Materials III*(Key Engineering Materials), 2003, **249**: 91–95.
- [27] Xiong Z, Jiang W, Shi Y, *et al.* Evaluation of high-temperature strength of Mo/PSZ composites by Modified Small Punch tests. *Materials Transactions*, 2005, **46**(3): 631–636.
- [28] Li J F, Takagi K, Terakubo N, *et al.* Electrical and mechanical properties of piezoelectric ceramic/metal composites in the $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3/\text{Pt}$ system. *Applied Physics Letters*, 2001, **79**(15): 2441–2443.
- [29] Zhang H L, Li J F, Zhang B P. Fabrication and evaluation of PZT/Ag composites and functionally graded piezoelectric actuators. *Journal of Electroceramics*, 2006, **16**(4): 413–417.
- [30] Zhang H L, Li J F, Zhang B P, *et al.* Enhanced mechanical properties in Ag-particle-dispersed PZT piezoelectric composites for actuator applications. *Materials Science and Engineering A*, 2008, **498**(1/2): 272–277.
- [31] Zhou D Y, Kamlah M. Room-temperature creep of soft PZT under static electrical and compressive stress loading. *Acta Materialia*, 2006, **54**(5): 1389–1396.
- [32] Duiker H M, Beale P D, Scott J F, *et al.* Fatigue and switching in ferroelectric memories- theory and experiment. *Journal of Applied Physics*, 1990, **68**(11): 5783–5791.
- [33] Hill M D, White G S, Hwang C S, *et al.* Cyclic damage in lead zirconate titanate. *Journal of the American Ceramic Society*, 1996, **79**(7): 1915–1920.