高温压电复合材料换能器

陈秋颖*, 王秀明, 王小民

中国科学院声学研究所, 北京 100190

* 联系人, E-mail: chenqiuying@mail.ioa.ac.cn

2014-04-01 收稿, 2014-05-13 接受, 2014-09-09 网络版发表

国家自然科学基金(11134011, 41274134)资助

摘要 探讨了高温压电复合材料超声换能器中材料的温度性能问题. 首先测量了一种改性的具有较高居里温度的压电陶瓷和一种具有耐高温性能的聚合物的材料常数随温度的变化曲线, 然后利用 ANSYS 有限元软件模拟计算了 1-3 型压电复合材料的谐振频率和阻抗特性等受温度的影响, 并根据优化仿真模型制备了 1-3 型高温压电复合材料晶片及相应的超声换能器. 研究表明, 所研制的 1-3 复合晶片性能参数随温度变化的结果和数值模拟预期的结果吻合较好. 与非复合的压电陶瓷换能器相比, 采用 1-3 复合结构的高温压电换能器具有更宽的频带和更高的灵敏度. 本项工作对于研发宽频带、高灵敏度的耐高温压电复合材料超声换能器具有参考价值.

关键词

压电复合材料
温度稳定性
超声换能器

耐高温压电复合材料超声换能器在深部声学钻探、航空航天无损探伤等具有高温恶劣环境的超声检测领域具有重要应用价值^[1~4]. 由于传统的超声检测用换能器利用 PZT 压电陶瓷片的厚度振动模式工作, 往往带宽和灵敏度都不能满足检测需求. 而 1-3 型压电复合材料是由一维连通的压电陶瓷平行排列于三维连通的聚合物基体中形成的两相复合材料, 与单纯的 PZT 压电陶瓷相比, 其具有机械品质因数较低, 平面机电耦合系数小而厚度机电耦合系数大($k_t > k_p$), 声阻抗低易与负载介质匹配等优点, 非常适合制作宽频带、高灵敏度的检测超声换能器^[5]. 但是, 一般的压电复合材料耐温性较差, 适用的环境温度往往不超过 60℃^[6,7], 极大地限制了其在具有更高耐温需求领域的应用. 因此研制具有更高耐温性能的 1-3 型压电复合材料, 是研制复合材料超声换能器的关键.

本文针对以上问题, 研制了耐高温的 1-3 型压电复合材料, 并制备了超声换能器. 首先测量了所选用的改性压电陶瓷和耐高温聚合物的材料参数随温度的变化, 然后利用 ANSYS 有限元软件, 模拟计算了 1-3 型压电复合材料的谐振频率和阻抗特性等受温度

的影响, 并根据优化仿真模型制备了 1-3 型压电复合材料晶片及超声换能器, 并将理论模拟与实验测量结果进行了对比, 还讨论了压电复合材料高温失效机理, 确定研制高温压电复合材料的关键参数. 所研制的耐高温压电复合材料超声换能器在频带宽度、灵敏度等方面都有了明显提高.

1 材料参数的温度性能测量

确定组成压电复合材料的压电陶瓷和聚合物的材料常数随温度的变化情况, 既可以为选取材料提供依据, 又可以为仿真计算提供常数. 但材料常数随温度的变化往往不能由生产商提供, 而且部分材料常数也不能直接测量. 因此本文对压电陶瓷和聚合物在介电、压电和弹性 3 个方面的性能随温度的变化进行了直接或者间接测量, 测量方法和结果如下.

1.1 压电陶瓷材料参数的温度性能测量

本文选用的压电陶瓷是一种改性的 PZT 陶瓷, 其居里温度为 370℃. 在压电陶瓷温度性能测量的过程中, 将样品置于可精密控温的材料试验箱 Binder

引用格式: 陈秋颖, 王秀明, 王小民. 高温压电复合材料换能器. 科学通报, 2014, 59: 3156–3161

Chen Q Y, Wang X M, Wang X M. Investigation of high-temperature 1-3 piezo-composite transducers (in Chinese). Chin Sci Bull (Chin Ver), 2014, 59: 3156–3161, doi: 10.1360/N972014-00244

M115 中(该仪器的控温精度高,温漂不超过 0.2℃),控制温度从 20~250℃以 1℃/min 的速率匀速升温,每隔 10℃采集一次数据,分别采用如下(1)~(3)的方法,测量压电陶瓷的介电、压电和弹性常数随温度的变化。

(1) 利用精密阻抗分析仪(Agilent 4294A)测量压电陶瓷样品(尺寸为 $\Phi 20\text{ mm} \times 0.8\text{ mm}$)1 kHz 时的低频电容随温度的变化,再利用公式 $\varepsilon = C_0 d / (A \varepsilon_0)$,计算出压电陶瓷的相对介电常数随温度的变化,其中 C_0 为低频电容, d 为晶片厚度, A 为晶片有效面积, ε_0 为真空中介电常数。计算结果见图 1(a)(为了直观显示参数相对变化情况,所有测量结果均由 20℃下的测量值进行了归一化处理,下同)。

(2) 利用 ZJ-3A 型准静态压电常数 d_{33} 测试仪记录不同温度点时压电陶瓷样品的 d_{33} 值。由于该仪器不能在超过 40℃环境工作,采用了只将样品升温到指定温度,取出样品释放表面电荷后再进行测量的方法(由于升温会造成陶瓷表面聚集感生电荷,直接测量会对结果产生影响,因此要先短路释放电荷),具体结果见图 1(c)。

(3) 采用穿透法测量压电陶瓷样品的纵波声速,将两片该种压电陶瓷晶片对穿放置于待测样品厚度方向两侧分别用作发射和接收,利用超声分析仪 5800 激励,在示波器 TDS3012 显示并采集声波信号。根据压电陶瓷声速随温度的变化间接反映压电陶瓷的弹性常数随温度的变化,结果见图 1(c)。

图 1(a)~(c)的测量结果说明,在从 20~250℃的升温过程中,压电陶瓷的介电常数逐渐增大,压电常数逐渐变小,而材料声速基本保持不变。所以,在模拟计算时,也只考虑了介电常数和压电常数随温度变化的影响,而认为压电陶瓷的弹性常数不随温度变化。

1.2 聚合物材料参数的温度性能测量

由于高分子聚合物材料不具有压电性,而且又因为聚合物的相对介电常数为 1~10,而压电陶瓷相对介电常数高达 700~3000,所以其介电性也远小于压电陶瓷,可以认为其介电常数在我们所研究的材料和关心的温度范围内不受温度的影响。本文仅测量了聚合物材料的声速随温度的变化,从而间接反映其弹性常数随温度变化的特性。

本文选取了一种耐高温树脂 Aremoc(由美国 Aremoc 公司提供),并按照其固化条件制备了所需样

图 1 压电陶瓷材料参数随温度变化

(a) 压电陶瓷介电常数随温度变化; (b) 压电陶瓷压电常数随温度变化; (c) 压电陶瓷声速随温度变化

品,还采用超声穿透法测量了固化后这种聚合物材料的纵波声速 C_l 、横波声速 C_s 随温度的变化。根据 $C_l = \sqrt{E(1-\gamma)/[\rho(1+\gamma)(1-2\gamma)]}$ 和 $C_s = \sqrt{E/[2\rho(1+\gamma)]}$ 可计算得到不同温度时材料的杨氏模量 E 和泊松比 γ 。

表 1 给出了本文所用聚合物的相关材料性能。该材料要经过 70℃两小时和 150℃两小时的聚变过程进行固化。固化后的样品在超声穿透法测量声速时,随着温度升高,接收波形会发生变化。图 2 给出了测量纵波声速时几个关键温度点的接收波形对比情况。从图 2 可见,当温度超过 150℃后,波形信号开始出

表 1 聚合物材料相关性能

固化条件	固化后常温声速 (m s^{-1})	固化后常温密度 (kg m^{-3})	声波畸变温度 ($^{\circ}\text{C}$)
70 $^{\circ}\text{C}$, 2 h	$C_l=2680$	1910	150
150 $^{\circ}\text{C}$, 2 h	$C_s=1330$

图 2 (网络版彩色)不同温度点时回波对比图

现畸变, 尤其到 170 $^{\circ}\text{C}$ 之后, 基本不能呈现正常的接收波形, 反映出超过固化温度后聚合物性能发生改变. 测量材料横波声速时, 由于横波探头不能耐高温工作, 采取只将样品加热再取出测试的近似测量手段. 测量到 120 $^{\circ}\text{C}$ 时接收波形明显畸变, 推测该温度后材料发生性能变化, 几乎不能正常传播剪切振动的横波. 因此, 本文超过 120 $^{\circ}\text{C}$ 的横波声速是利用 120 $^{\circ}\text{C}$ 之前的数据拟合得到, 与实际的材料参数会有一定误差, 且温度越高, 偏差会越大. 图 3 是利用以上处理过程, 根据聚合物的纵、横波声速随温度的变化, 计算得到聚合物杨氏模量和泊松比随温度变化的曲线, 也是模拟计算中所用到的数据.

此外, 根据我们研究的压电陶瓷和聚合物材料的热膨胀系数数量级^[8](压电陶瓷: 10 $^{-6}$ / $^{\circ}\text{C}$, 聚合物: 10 $^{-4}$ / $^{\circ}\text{C}$)推测在本文给定的温度范围内, 体积变化引起的材料密度变化都很小, 最大相对变化率在1%以内, 因此本文认为材料密度在我们关心的温度范围内不变.

图 3 聚合物弹性常数随温度变化

2 1-3 复合材料晶片的数值仿真

ANSYS 软件是融结构、流体、电场、磁场、声场分析于一体的大型通用有限元分析软件, 能为解决换能器研制中的工程技术问题提供良好的仿真计算环境^[9]. 采用其谐波分析和瞬态分析可分别计算换能器的阻抗特性和脉冲响应特性.

本文利用 ANSYS 软件, 数值模拟计算了我们制作的 1-3 型压电复合材料的阻抗特性及脉冲响应特性随温度的变化情况. 首先根据常温下实测的材料参数结果进行模拟计算, 并与常温下复合材料晶片的阻抗测量结果进行对比, 验证模型的可信度. 之后逐点模拟计算了不同温度点时复合晶片的相关参数的值, 并形成了该参数随温度变化的曲线, 然后与测量结果进行对比. 为突出主要问题, 本文将数值仿真的结果和实测结果同时列显于后文中, 此处不再赘述.

3 1-3 复合材料晶片的研制及测量

本文采用切割填充法, 根据仿真模型的几何参数, 将所测压电陶瓷和聚合物制备成了 1-3 型压电复合材料晶片样品, 其相关参数见表 2, 样品加工精度控制在 0.05 mm 以内.

利用阻抗分析仪测量该复合晶片的阻抗特性随温度的变化, 并与 ANSYS 仿真结果进行对比, 如图 4 和 5 所示.

图 4 仿真和实验结果的良好吻合, 验证了本文给出的数值模型的正确性和有效性. 从图 5 可见, 实测

表 2 压电复合材料样品相关参数

制备方法	陶瓷柱尺寸 (mm)	间距 (mm)	陶瓷体积比 (%)	晶片厚度 (mm)
切割填充	0.7 × 0.7	0.3	50	3.7

图4 常温阻抗-仿真与实测对比

图5 谐振频率随温度变化-仿真与实测对比

及仿真结果都表明随着温度升高,晶片谐振频率逐渐降低.从图5的实测结果上可以看出,复合晶片的谐振频率在150℃之后发生跳变,反映出晶片性能在150℃后发生突变,这与所用聚合物材料在150℃固化相关.结合前面对压电陶瓷和聚合物的相关测试结果,分析这一现象主要是由于聚合物弹性突变引起.当温度超过聚合物的固化温度后,其逐渐软化,对压电陶瓷柱间的振动耦合作用大大减弱,复合晶片的谐振频率主要集中在压电陶瓷上,使得等效谐振的声速不再是复合晶片的声速而变成压电陶瓷的声速,因此声速变大,导致谐振频率明显提高.图5的实验结果和Parr等人^[10,11]的结果具有一致性,该文献中1-3压电复合材料的谐振频率在超过其聚合物的固化温度后,也出现了和本文一样的阶跃式跳变.他们用激光振动计观测到了压电陶瓷与聚合物的振动解耦现象,这在一定程度上验证了本文的推测.但他们并未分析谐振频率变高的具体原因,也没有给出压电陶瓷和聚合物的材料参数随温度的变化,以及这两者之间的联系.通过本文的实验研究和前人

工作,确定了聚合物的固化温度是研制耐高温的压电复合材料的关键参数.并且从以上仿真和实测结果推测,本文所研制的1-3复合晶片稳定工作的温度为其固化温度150℃,该材料在超过这一温度后,性能会发生大幅下降.利用超声分析仪对1-3复合晶片进行脉冲响应测试,从20~180℃的温度变化过程中,温度每上升10℃进行一次测量,记录各个温度点时复合晶片在硅油与钛块的平面界面的反射回波,给出各反射回波的幅度随温度的变化曲线,并与仿真结果进行对比,如图6所示.从图6可见,随着温度升高晶片接收的回波幅度逐渐降低,且超过150℃之后,回波幅度出现急剧降低,这和谐振频率在150℃之后出现跳变相对应,印证了前面的推测.

此外,从图5和6的仿真结果可见,在120℃之前,仿真计算的结果和实验测量结果吻合较好,但超过120℃后,两者差异较大,这主要是由于超过120℃后对聚合物材料参数的测量存在较大误差,计算所用参数很难准确反映其真实特性.但从120℃之前的仿真结果来看,只要计算所用的参数可靠,仿真结果几乎可以预测复合材料性能随温度的变化.

4 复合材料超声换能器研制及测量

将所研制的1-3型压电复合晶片制作成超声换能器,利用吸声背衬减少脉冲振荡的拖尾,匹配层增加声波透射能量,从而达到宽带窄脉冲、高灵敏度的性能.将其与非复合的压电陶瓷换能器在时频特性上进行对比测试,结果如图7所示,将主要的性能指标列于表3.

从图7和表3的对比结果可见,与纯压电陶瓷换能器相比,采用1-3压电复合材料的超声换能器具有更宽的频带和更高的灵敏度,在超声检测应用中具

图6 复合晶片回波幅度随温度变化-仿真与实测对比

图 7 (网络版彩色)超声换能器时频特性对比
(a) 1-3 复合; (b) 非复合

表 3 超声换能器主要性能指标对比

编号	有效面积(mm ²)	峰峰值(V)	脉冲宽度(μs)	相对回波灵敏度(dB)	中心频率(kHz)	-6 dB 带宽(%)
复合	962	17.5	7.9	-28	461	97.1
非复合	1256	20.5	14.1	-27	556	36.0

有更多时频特性方面的优势.

图 8 给出了所研制压电复合材料超声换能器的温度稳定性实测结果,从 20~150℃的升温过程中,灵敏度仅下降了 2.4 dB,超过 150℃后,灵敏度迅速下降,主要受到复合晶片的性能突降影响.该换能器的稳定工作温度可达 150℃.

图 8 压电复合材料超声换能器温度稳定性

5 结论

本文针对压电复合材料及其超声换能器的耐温问题进行了数值仿真和实验工作.所研制的 1-3 型压电复合晶片的性能参数随温度变化的结果和数值仿真的结果在一定程度上吻合较好.1-3 型压电复合材料的耐温性主要受到聚合物材料的固化温度影响,超过其固化温度后,聚合物软化与压电陶瓷柱的振动解耦,导致复合晶片性能突降.因此,聚合物的固化温度是研制 1-3 型压电复合材料及其超声换能器的关键参数.

通过本文的研究和探索,我们研制的 1-3 型压电复合材料超声换能器的相对脉冲回波灵敏度可达到 -28, -6 dB,相对带宽可达到 90%以上,该换能器稳定工作的温度达到 150℃(150℃时换能器灵敏度下降 2.4 dB).本文的工作为目前国内研制耐高温的压电复合材料超声换能器提供一些参考.

致谢 本文工作得到了中国科学院声学研究所的丛健生、毛捷、廉国选和李明轩等同仁的帮助,表示感谢!

参考文献

- 1 Kažys R, Voleišis A, Voleišienė B. High-temperature ultrasonic transducers: Review. Ultragarsas, 2008, 63: 7-17

- 2 Jiang X N, Kim K, Zhang S J, et al. High-temperature piezoelectric sensing. *Sensors*, 2014, 14: 144–169
- 3 Wu S, Chen H, Gu J H, et al. A thermal insulation method for a piezoelectric transducer. *Chin Sci Bull*, 2007, 52: 2305–2309
- 4 Chen Y C, Wu M J, Liu W K. PSPICE controlled-source models of analogous circuit for Langevin type piezoelectric transducer. *Sci China Phys Mech Astron*, 2007, 50: 87–96
- 5 Hayward G, Bennett J, Hamilton R. A theoretical study on the influence of some constituent material properties on the behavior of 1-3 connectivity composite transducers. *J Acoust Soc Am*, 1995, 98: 2187–2196
- 6 Xue Q, Stanton M, Elfbbaum G. A high temperature and broadband immersion 1-3 piezo-composite transducer for accurate inspection in harsh environments. *IEEE Ultrasonics Symposium*, 2003. 1173–1176
- 7 Wang L K, Wan Y Y, Li L, et al. Investigation on stability of PZT-epoxy piezocomposite with pressure and temperature. *Acta Mech Solida Sin*, 2009, 22: 226–231
- 8 江磊, 沈烈, 郑强. 聚合物的热膨胀. *功能材料*, 2004, 2: 142–144
- 9 林书玉. 切向极化压电陶瓷晶堆中扭转振动的传播速度研究. *科学通报*, 1996, 41: 307–311
- 10 Parr A C S, O'Leary R L, Hayward G. Improving the thermal stability of 1-3 piezoelectric composite transducers. *IEEE Trans Ultrason Ferroelectr Freq Control*, 2005, 52: 550–563
- 11 Parr A C S, O'Leary R L, Hayward G, et al. Investigating the thermal stability of 1-3 piezoelectric composite transducers by varying the thermal conductivity and glass transition temperature of the polymeric filler material. *IEEE Ultrasonics Symposium*, 2002. 1173–1176

Investigation of high-temperature 1-3 piezo-composite transducers

CHEN QiuYing, WANG XiuMing & WANG XiaoMin

Institute of Acoustics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China

The thermal properties of 1-3 piezo-composites are investigated and a high-temperature 1-3 piezo-composite transducer is developed. First, the material parameters with varying temperature are measured for the piezoelectric ceramic and polymer. The influence of temperature on the resonance frequency of the thickness mode and impedance of a 1-3 piezo-composite chip are then investigated by numerical simulations using the finite element method. Additionally, high-temperature 1-3 piezo-composite chips and corresponding ultrasonic transducers are manufactured according to the optimum simulation model. The numerical simulation results are consistent with the experimental measurements. Compared with a non-composite transducer, the 1-3 piezo-composite transducer has a wider frequency band and higher sensitivity. This work provides a reference for the development of piezo-composite transducers with broad-band, high-sensitivity, and high-temperature properties.

1-3 piezo-composite, temperature stability, ultrasonic transducer

doi: 10.1360/N972014-00244