复合材料学报 第22卷 第2期 4月 2005年
Acta Materiae Compositae Sinica Vol. 22 No. 2 April 2005

文章编号: 1000-3851 (2005) 02-0121-04

压电复合材料的电弹耦合特性分析

杨凤霞[1], 李智华[1,*], 张端明[1], 韩祥云[1], 钟志成[2], 郑克玉[1], 魏 念[1], 关 丽[1]
(1. 华中科技大学 物理系, 武汉 430074; 2. 襄樊学院, 襄樊 441053)

摘 要: 利用 Eshelby 理论及 Mori-Tanaka 平均场原理, 推导出压电陶瓷/聚合物两相复合材料的有效电弹模量表达式。该表达式能反映两相材料复合的物理本质。并以椭圆柱形压电纤维增强的聚合物基复合材料为例, 分析压电复合材料的电弹耦合特性。结果表明: 复合材料的平均电弹模量在很大程度上取决于电弹耦合效应; 该效应与组成相的空间连接型、体积占有率及压电夹杂形状有关; 耦合效应的存在是由各组成相材料性能差异引起的。

关键词: 压电复合材料; 电弹模量; 耦合
中图分类号: TB 332; TB 330.1 **文献标识码**: A

ANALYSIS TO THE COUPLED ELECTROELASTIC BEHAVIORS OF PIEZOELECTRIC COMPOSITES

YANG Fengxia[1], LI Zhihua[1,*], ZHANG Duanming[1], HAN Xiangyun[1], ZHONG Zhicheng[2], ZHENG Keyu[1], WEI Nian[1], GUAN Li[1]
1. Department of Physics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China;
2. Xiangfan University, Xiangfan 441053, China)

Abstract: The explicit expression for effective electroelastic moduli of piezoelectric ceramic/polymer biphase piezocomposite was obtained by employing Eshelby's model and Mori-Tanaka average field theory. The expression can reflect physical insight for piezocomposites. As a practical example, the coupled electroelastic behaviors were analyzed for a piezoelectric elliptic cylindrical fiber reinforced polymer composite. The results show that the average electroelastic moduli depend on the coupled electroelastic effects which have relations to the connectivity, volume fraction and the shape of piezoelectric inclusions. The origin of the coupling effects is related to the existence of mismatch electroelastic moduli of constituents.

Keywords: piezoelectric composite; electroelastic moduli; coupling

压电复合材料是由两相或多相材料复合而成的压电材料。常见的压电复合材料是由压电陶瓷和聚合物(如聚偏氟乙烯或环氧树脂)组成的两相材料, 它是70年代发展起来的一类新型功能复合材料, 克服了压电陶瓷材料密度高、脆性大、不易制成大平面薄片或复杂形状等特点。由于该类材料特殊的电性能[1], 在医疗、传感、计测等方面得到了广泛应用。国内外在压电复合材料制备工艺、影响性能的因素及理论等方面进行了大量的研究[2~5]。近年来, 以压电共聚物——聚偏二氟乙烯-三氟乙烯共聚物(P(VDF-TrFE))[6]及水泥[7]为基体的压电复合材料也引起人们的关注。

影响复合材料性能的因素包括组成相的性能, 体积占有率, 空间连结型及压电夹杂形状。因此, 根据复合的方式和组元的性能确定复合体的性能是工艺设计及理论研究的依据。在众多理论中, 大部分理论都是针对某种连结型的复合材料, 如0-3型、1-3型、2-2型。而 Eshelby[8]理论实用于各种连结型的复合材料, 该理论是英国著名科学家 Eshelby 针对解决无限大体内椭球夹杂的弹性场问题提出的, 随后推广到处理夹杂的电、磁场等问题。本文作者将利用 Eshelby 理论及 Mori-Tanaka[9]平

收稿日期: 2004-05-25; **收修改稿日期**: 2004-11-12
基金项目: 国家自然科学基金(50272022)资助项目; 武汉市青年晨光计划项目(20045006071-40)
通讯作者: 李智华, 博士, 讲师, 主要从事 PLD 及复合材料的研究 E-mail: lily.lzh@263.net

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

均场理论，推导压电陶瓷/聚合物复合材料的有效电弹模量表达式，并以椭圆柱形压电纤维增强的聚合物基复合材料为例，分析电弹耦合特性。

1　压电复合材料的有效电弹模量

利用 Lothe 及 Barnett[10] 介绍的简化符号，压电材料的压电方程表示为

$$\sum_{iJ} = E_{iJMn} Z_{Mn} \tag{1a}$$

或

$$Z_{Ab} = F_{AbiJ} \sum_{iJ} \tag{1b}$$

这里：张量 F 是 E 的逆。式中：A，M，$J=1,2,3,4$；i，n，$b=1,2,3$；$\sum_{iJ}$ 代表应力-电场；Z_{Mn} 代表应变-电位移场；E_{iJMn} 代表电弹模量。每一个缩写的符号分别为

$$Z_{Mn} = \begin{cases} S_{mn} & M = 1,2,3 \\ -E_n & M = 4 \end{cases}$$

$$\sum_{iJ} = \begin{cases} T_{ij} & J = 1,2,3 \\ D_j & J = 4 \end{cases}$$

$$E_{iJMn} = \begin{cases} c_{ijmn} & J,M = 1,2,3 \\ e_{nij} & J = 1,2,3;M = 4 \\ e_{imn} & J = 4;M = 1,2,3 \\ -\varepsilon_{in} & J = M = 4 \end{cases} \tag{2}$$

这里：T，S，E 和 D 分别表示应力，应变，电场和电位移；c，e 和 ε 分别表示弹性刚度系数，压电应力系数及介电常数。

考虑电弹模量为 E^{m}_{iJMn} 的一无限大基体 R^3 中有一个电弹模量为 E^{p}_{iJMn} 的椭圆形压电夹杂 Ω。假定无体力及自由电荷，在线性响应下，根据 Eshelby 理论，由于异质压电夹杂的存在，在夹杂中产生一扰应变-电位移场 Z_{Mn}。同时，根据 Eshelby 等效夹杂原理，夹杂可以看成具有一个本征应变-电位移场 Z^{*}_{Ab}，这两个场之间具有如下关系[5]

$$Z_{Mn} = S_{MnAb} Z^{*}_{Ab} \tag{3}$$

这里：S_{MnAb} 是压电 Eshelby 张量。对于特殊形状的夹杂，Mikata 等[11] 已经给出了精确的解。当复合材料中夹杂有一定的体积占有率 f，在夹杂与夹杂以及夹杂与基体间存在相互作用，从而影响基体及夹杂中各种场的分布，Dunn[12] 等将这种影响称之为相互作用微扰。其中扰应变-电位移场 $\overline{Z}$ 定义为

$$\overline{Z}_{Mn} = \frac{1}{V_{D-\Omega}} \int_{D-\Omega} (Z^{\mathrm{Total}}_{Mn} - Z^{0}_{Mn}) \tag{4}$$

式中：$V_{D-\Omega}$ 是基体的体积；Z^{Total} 代表总的应变-电位移场；Z^{0}_{Mn} 是外加应变-电位移场。根据压电方程，对应 $\overline{Z}$ 的平均扰应力-电场为

$$\overline{\sum_{iJ}} = E^{m}_{iJMn} \overline{Z}_{Mn} \tag{5}$$

当考虑相互作用影响，在夹杂中存在两种微扰——单夹杂微扰 Z_{Mn}，相互作用微扰 $\overline{Z}_{Mn}$。

当施加一远场均匀的应变-电位移场——Z^{0}_{Mn} 边界条件，基体与夹杂中的应变-电位移场分别为

$$\begin{cases} Z^{m}_{Mn} = Z^{0}_{Mn} + \overline{Z}_{Mn} \\ Z^{p}_{Mn} = Z^{0}_{Mn} + \overline{Z}_{Mn} + Z_{Mn} \end{cases} \tag{6}$$

本文中，上标 m、p 分别代表基体和压电夹杂。Z^{0}_{Mn} 满足压电方程(1)，即 $Z^{0}_{Mn} = F^{m}_{iMniJ} \sum^{0}_{iJ}$。根据 Mori-Tanaka 的平均场理论，复合材料的平均应变-电位移 $\langle Z_{Mn} \rangle$ 是各组成相应力-电场的体积平均，实际上等于 Z^{0}_{Mn}，即

$$\langle \overline{Z}_{Mn} \rangle = Z^{0}_{Mn} + \overline{Z}_{Mn} + f Z_{Mn} = Z^{0}_{Mn}$$

进一步整理得如下关系式

$$\overline{Z}_{Mn} = -f Z_{Mn} \tag{7}$$

根据压电方程，基体及夹杂中平均应力-电场为

$$\begin{cases} \sum^{m}_{iJ} = E^{m}_{iJMn} (Z^{0}_{Mn} + \overline{Z}_{Mn}) \\ \sum^{p}_{iJ} = E^{p}_{iJMn} (Z^{0}_{Mn} + \overline{Z}_{Mn} + Z_{Mn}) \end{cases} \tag{8}$$

根据 Eshelby 等效夹杂原理，夹杂可以看成是与基体性质相同但有一个本征应变-电场 Z^{*}_{Mn} 的夹杂，即

$$E^{p}_{iJMn} (Z^{0}_{Mn} + \overline{Z}_{Mn} + Z_{Mn}) = E^{m}_{iJMn} (Z^{0}_{Mn} + \overline{Z}_{Mn} + Z_{Mn} - Z^{*}_{Mn}) \tag{9}$$

联立表达式(3)、式(5)、式(7)和式(9)，得到了基体及夹杂中平均应力-电场

$$\begin{cases} Z^{m}_{Mn} = [I + f S_{MnAb} A^{-1}_{AbiJ} (E^{p}_{iJPq} - E^{m}_{iJPq})] Z^{0}_{Pq} \\ \quad = A^{m}_{MnPq} Z^{0}_{Pq} \\ Z^{p}_{Mn} = [I - (1-f) S_{MnAb} A^{-1}_{AbiJ} (E^{p}_{iJPq} - E^{m}_{iJPq})] Z^{0}_{Pq} \\ \quad = A^{p}_{MnPq} Z^{0}_{Pq} \end{cases} \tag{10}$$

式中：A^{-1}_{AbiJ} 是 A_{iJAb} 的逆，即

$$A_{iJAb} = (1-f)(E^{p}_{iJMn} - E^{m}_{iJMn}) S_{MnAb} + E^{m}_{iJAb} \tag{11}$$

而 A^{m}_{MnPq}、A^{p}_{MnPq} 分别是基体与夹杂的集中因子，为

$$\begin{cases} A^{m}_{MnPq} = I_{MnPq} + f S_{MnAb} A^{-1}_{AbiJ} (E^{p}_{iJPq} - E^{m}_{iJPq}) \\ A^{p}_{MnPq} = I_{MnPq} - (1-f) S_{MnAb} A^{-1}_{AbiJ} (E^{p}_{iJPq} - E^{m}_{iJPq}) \end{cases} \tag{12}$$

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

这里：I_{MnAb}是二阶及四阶单位张量的缩写符号。

根据 Mori-Tanaka[9] 平均场理论，复合材料的平均应力-电场$\langle \sum_{Mn} \rangle$是各组成相应力-电场的体积平均，即

$$\langle \sum_{iJ} \rangle = \frac{1}{V_{D-\Omega}} \int_{D-\Omega} \sum_{iJ}^{m} \mathrm{d}V + \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} \sum_{iJ}^{p} \mathrm{d}V = (1-f) \sum_{iJ}^{m} + f \sum_{iJ}^{p} \tag{13}$$

因此，联立表达式(8)、式(10)和式(13)及$\langle \sum_{iJ} \rangle = \bar{E}_{iJMn} \langle Z_{Mn} \rangle$，得到复合材料的有效电弹模量为

$$\begin{aligned} \bar{E}_{iJMn} &= (1-f) E_{iJAb}^{m} A_{AbMn}^{m} + f E_{iJAb}^{p} A_{AbMn}^{p} \\ &= (1-f) E_{iJAb}^{m} + f E_{iJAb}^{p} + \\ & f(1-f)(E_{iJMn}^{p} - E_{iJMn}^{m}) S_{MnPq} A_{PqsT}^{-1} [E_{sTAb}^{p} - E_{sTAb}^{m}] \end{aligned} \tag{14}$$

式(14)中，前两项是两组成相的简单叠加。如果忽略第三项，这个结果刚好是串并联模型的结果。在这里，将第三项定义为耦合效应，显然，它是两组成相相互作用的结果，反映了组成相之间的电弹耦合效应。再者，该表达式还反映了空间结构、各相体积占有率及夹杂形状对复合材料性能的影响，这由表达式(14)中的第三项得到体现。因此本文作者推导的复合材料有效电弹模量表达式，清楚地反映了两相材料复合的物理本质。

2 电弹耦合特性分析

本文作者以椭圆柱形压电纤维增强的聚合物基复合材料为例，分析压电复合材料的电弹耦合特性。为方便分析，令式(14)中 $D = SA^{-1}$。在一级近似下，介电常数、弹性刚度系数、压电电压常数及压电应变常数的耦合效应可表示为

$$\begin{aligned} \Delta\bar{c}_{11} &= f(1-f)[(c_{11}^{*} D_{1111} + c_{12}^{*} D_{2211}) c_{11}^{*} + (D_{1122} c_{11}^{*} + D_{2222} c_{12}^{*}) c_{12}^{*}] \\ \Delta\bar{c}_{22} &= (f(1-f)[(c_{12}^{*} D_{1122} + c_{11}^{*} D_{2222}) c_{11}^{*} + (D_{1122} c_{12}^{*} + D_{2211} c_{11}^{*}) c_{12}^{*}] \\ \Delta\bar{c}_{33} &= f(1-f)(D_{1111} + D_{2211} + D_{1122} + D_{2222}) c_{13}^{*2} \\ \Delta\bar{e}_{31} &= f(1-f)(D_{1111} c_{11}^{*} + D_{2211} c_{12}^{*} + D_{1122} c_{11}^{*} + D_{2222} c_{12}^{*}) e_{31}^{*} \\ \Delta\bar{e}_{32} &= f(1-f)(D_{1111} c_{12}^{*} + D_{2211} c_{11}^{*} + D_{1122} c_{12}^{*} + D_{2222} c_{11}^{*}) e_{31}^{*} \\ \Delta\bar{e}_{33} &= f(1-f)(D_{1111} + D_{2211} + D_{1122} + D_{2222}) c_{13}^{*} e_{31}^{*} \\ \Delta\bar{\varepsilon}_{11} &= -f(1-f)(-D_{1313} e_{15}^{*} + D_{4113} \varepsilon_{11}^{*}) e_{15}^{*} \\ \Delta\bar{\varepsilon}_{22} &= -f(1-f)(D_{4123} \varepsilon_{11}^{*} - D_{2323} e_{15}^{*}) e_{15}^{*} \\ \Delta\bar{\varepsilon}_{33} &= f(1-f)(D_{1111} + D_{2211} + D_{1122} + D_{2222}) e_{31}^{*2} \end{aligned} \tag{15}$$

式中：上标 * 表示压电陶瓷与基体的参数差值，如 $e_{31}^{*} = e_{31}^{p} - e_{31}^{m}$。从这些表达式中可看到：当横向比 $a \neq 1$ 时，$\Delta\bar{c}_{11} \neq \Delta\bar{c}_{22}$，$\Delta\bar{e}_{31} \neq \Delta\bar{e}_{32}$，$\Delta\bar{\varepsilon}_{11} \neq \Delta\bar{\varepsilon}_{22}$，从而导致 $\bar{c}_{11} \neq \bar{c}_{22}$，$\bar{e}_{31} \neq \bar{e}_{32}$，$\bar{\varepsilon}_{11} \neq \bar{\varepsilon}_{22}$，即复合材料不再是横观各相同性，这是由横向尺寸引起的；复合材料的某种耦合效应不仅与各相材料的该种性能有关，还与其他性能有关。如$\Delta\bar{e}$不仅与 e^{*} (两相材料压电电压常数之差)有关，还与 c^{*} (两相材料介电常数之差)有关。也就是说，除了两相材料间电场与电场之间的耦合，弹性场与弹性场之间的耦合外，还存在电场与弹性场之间的耦合。正是耦合效应的存在，导致不同连通型的复合材料性能迥异；复合材料中，组成相性能的差异是产生耦合效应的起源。

本文作者以电弹模量数据比较全面的 BT/polymer[12] 复合材料为例，通过数值模拟结果分析压电复合材料的电弹耦合特性。

图 1 是 BT/polymer 压电复合材料的介电常数及它的耦合效应随 BT 体积占有率 f 及横向比 a 的变化。从图中可以看出：随着 f 从 0 增加到 1，介电常数的耦合效应从 0 开始增加，在 $f \approx 0.8$ 达到最大值后，开始呈现下降的趋势，当 $f = 1$ 时，耦合效应为 0。这个结果可以由式(14)得到解释：耦合效应的大小正比于两相体积占有率的乘积 $f(1-f)$，因此在 $f = 0$，1 时，耦合效应为 0，从而说明，单相材料不存在耦合，同时也说明，复合材料

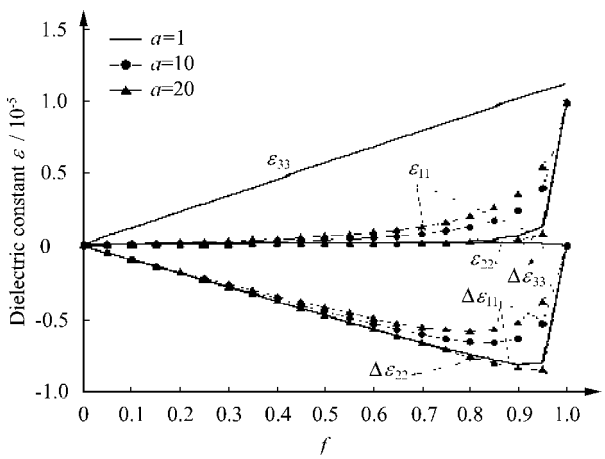

图 1 介电常数 ε 随 BT 体积分数 f 及横向比 a 的变化

Fig. 1 The dielectric constant ε as the function of f and a

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

的电弹性能在很大程度上取决于耦合效应；在 3 方向，即极化方向，介电常数的耦合效应随 f 的变化很缓慢，且不随横向比 a 变化。因此 3 方向耦合效应可以忽略；当 $a \neq 1$ 时，1 方向、2 方向的耦合效应随 a 的变化趋势不同，导致耦合效应不同。在 1 方向(横向尺寸大的方向)，随 a 增大，耦合效应的大小呈现下降的趋势，而 2 方向的耦合效应出现上升的趋势，但是当 $a > 1$ 时，耦合效应随 a 的变化不明显。1 方向、2 方向的耦合效应较大，不能忽略；弹性刚度系数 c、压电电压常数 e 随 BT 体积占有率及横向比 a 的变化情况与介电常数相同，不再另外讨论。

对其它连结型的压电复合材料，如 0-3 型，2-2 型等，利用式(14)，也可以分析它们的耦合特性，因此，本文作者的理论为压电复合材料的设计及优化提供了理论依据。

3 结　论

利用 Eshelby 理论及 Mori-Tanaka 平均场原理，推出了一个既能反映各相贡献，又能反映组成相间耦合效应影响的压电陶瓷/聚合物复合材料有效电弹模量表达式。通过对压电纤维增强的复合材料耦合效应理论及数值的分析，证实在压电复合材料中，两相间存在电场与弹性场之间的耦合，而且耦合效应随压电夹杂体积占有率的增加先增加，达到最大值后，开始下降。在 $f = 0$，1 时，耦合效应为 0。耦合效应的存在是由于各组成相材料性能差异引起的。因此选择适当的材料、空间结构及夹杂形状是设计复合材料的关键。

参考文献:

[1] 郑占申，曲远方，马卫兵，等. 陶瓷/聚合物复合材料的电性能及应用 [J]. 复合材料学报，1998，15(4)：14.
Zheng Zhanshen, Qu Yuanfang, Ma Weibing, *et al*. Electric properties and applications of ceramic-polymer composites [J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 1998, 15(4): 14.

[2] Newnham R E, Skinner D P, Cross L E. Connectivity and piezoelectric-pyroelectric composites [J]. *Mat Res Bull*, 1993, 33(2): 289.

[3] Jayasundere N, Smith B V. Dielectric constant for binary piezoelectric 0-3 composites [J]. *J Appl Phys*, 1993, 73(5): 2462.

[4] Banno H. Theoretical equations for dielectric, piezoelectric and elastic properties of flexible composite consisting of polymer and ceramic powder of two different materials [J]. *Ferroelectrics*, 1989, 95: 111.

[5] Chan H L W, Unsworth J. Simple model for piezoelectric ceramic/polymer 1-3 composites used in ultrasonic transducer applications [J]. *IEEE UFFC*, 1989, 36(4): 4345.

[6] Zeng R, Kwok K W, Chan H L W, *et al*. Longitudinal and transverse piezoelectric coefficients of lead zirconate titanate/vinylidene fluoride-trifluoroethylene composites with different polarization states [J]. *J Appl Phys*, 2002, 92(3): 2674-2679.

[7] 黄世峰，常　钧，徐荣华. 0-3 型压电陶瓷-硫铝酸盐水泥复合材料的压电性能 [J]. 复合材料学报，2004，21(3)：73.
Huang Shifeng, Chang Jun, Xu Ronghua, *et al*. Piezoelectric properties of sulphoaluninate cement-based piezoelectric composites [J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2004, 21(3): 73.

[8] Eshelby J D. The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems [J]. *Proc R Soc Lond A*, 1957, 241: 376.

[9] Mori T, Tanaka K. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusion [J]. *Acta Meta*, 1973, 21(2): 571.

[10] Lothe J, Barnett D M. Integral formalism for surface waves in piezoelectric crystals existence considerations [J]. *J Appl Phys*, 1976, 47(5): 1799.

[11] Mikata Y. Determination of piezoelectric Eshelby tensor in transversely isotropic piezoelectric solids [J]. *Inter J Engin & Sci*, 2000, 38(6): 605.

[12] Dunn M L, Taya M. An analysis of piezoelectric composite materials containing ellipsoidal inhomogeneities [J]. *Proc R Soc Lond*, 1993, 443: 265.

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net