



نمونه‌سازی کامپوزیت‌های پیزوسرامیک-پلیمر با روش ریخته‌گری محلولی جهت استفاده در ترانسدیوسرهای آکوستیک

محمد صادقی کیا¹، حمید قاسمی میقانی^{2*}

1- دانشجوی کارشناسی ارشد، مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی اراک، اراک

2- استادیار، دانشکده مهندسی مکانیک، دانشگاه صنعتی اراک، اراک

* اراک، صندوق پستی 381351177، hamid.ghasemi@arakut.ac.ir

چکیده

اطلاعات مقاله

بخش اصلی ترانسدیوسر آکوستیک، المان پیزوالکتریک است. سرامیک‌های پیزوالکتریک متعارف معمولاً شکننده بوده و در برابر شکست ترد آسیب‌پذیر هستند. از طرف دیگر پلیمرها که عموماً سبک و انعطاف‌پذیر می‌باشند، خاصیت ضعیف پیزوالکتریک دارند. به منظور دستیابی به خواص بهینه، کامپوزیت‌های پیزوسرامیک-پلیمر توسعه یافته‌اند. با توجه به اینکه پیزوکامپوزیت‌های با الگوی اتصال 0-3 انعطاف‌پذیری خوبی داشته و در ترانسدیوسرهای آکوستیک کاربرد دارند، این تحقیق ضمن مطالعه روش‌های مختلف ارائه شده جهت ساخت مواد پیزوکامپوزیت که اغلب در مرحله توسعه و نوآوری قرار دارند؛ با بررسی ویژگی‌ها، مزایا و معایب هر روش، روش تلفیقی و کم هزینه‌ای جهت ساخت پیزوکامپوزیت‌های نوع 0-3 با قابلیت استفاده برای طیف وسیعی از مواد پلیمری ارائه کرده است. با استفاده از این روش پیزوکامپوزیت‌های PZT/EP و PZT/EP+TPU با درصد‌های وزنی شامل 30 تا 70 درصد PZT ساخته شد. برای این کار ابتدا پودر PZT با رزین اپوکسی ترکیب و به‌منظور پراکنده‌سازی یکنواخت در زمینه پلیمر، از همزن مغناطیسی استفاده گردید. پس از افزودن هاردنر به محلول، جهت پراکنده‌سازی بهتر و جلوگیری از جسیبندگی ذرات پیزوسرامیک به همدیگر در زمینه پلیمر، از همزن تراسونیک استفاده گردید. پس از افزایش ویسکوزیته محلول، مجدد از همزن مغناطیسی استفاده گردید. سپس محلول را درون قالب ریخته و در ظرف دسیکاتور متصل به پمپ خلأ قرار داده تا فرایند حباب‌زدایی محلول انجام شود. پس از تکمیل فرایند پلیمریزاسیون، نمونه‌ها خشک شده و فرآیند پخت آن‌ها تکمیل گردید. پیزوکامپوزیت‌ها پس از پولیش کاری، با استفاده از لایه مسی الکتروگذاری شدند. در مرحله آخر، فرآیند قطعی‌سازی با استفاده از روش تخلیه کرونا انجام شد. نتایج آنالیزهای XRD، FT-IR و SEM بررسی گردید و پیزوکامپوزیت‌های ساخته شده را به جهت اطمینان از صحت مراحل ساخت، الکتروگذاری، قطعی‌سازی و همچنین عملکرد صحیح خاصیت پیزوالکتریک، به‌صورت متناوب تحت تنش قرار داده و ولتاژ خروجی به‌وسیله اسیلوسکوپ مشاهده گردید.

مقاله پژوهشی کامل
دریافت: 7 خرداد 1400
داوری اولیه: 21 تیر 1400
پذیرش: 7 شهریور 1400

کلیدواژه‌ها:

پیزوالکتریک
پیزوسرامیک
پیزوکامپوزیت
ترانسدیوسر آکوستیک

Prototyping of piezoceramic-polymer composites using Solution Casting method for use in acoustic Transducers

Mohammad Sadeghi Kia, Hamid Ghasemi*

Department of Mechanical Engineering, Arak University of Technology, Arak, Iran.

* P.O.B. 381351177 Arak, Iran, hamid.ghasemi@arakut.ac.ir

Article Information

Original Research Paper
Received: 28 May 2021
First Decision: 12 July 2021
Accepted: 29 August 2021

Keywords:

Piezoelectric
Piezoceramic
Piezocomposite
Acoustic transducer

Abstract

The main part of an acoustic transducer is its piezoelectric element. Conventional piezoelectric ceramics are usually brittle and vulnerable to brittle failure. Polymers, on the other hand, which are generally light and flexible, have poor piezoelectric properties. To achieve optimal properties, piezoceramic-polymer composites have been developed. Since piezocomposites with 0-3 connectivity are flexible and commonly used in acoustic transducers, we review some of their fabrication methods, which are mainly under the development stage, and evaluate cons and pros of each method. We then suggest a budget type solution casting method to prototype 0-3 piezocomposites which can be used with a wide range of polymeric materials. Using this method, we fabricate PZT/EP and PZT/EP+TPU piezocomposites with PZT weight fractions from 30 to 70 percent. First, PZT powder was mixed with the epoxy resin, and a magnetic stirrer was used to achieve a uniform dispersion of PZT particles in the polymer. After adding the hardener to the solution, a sonicator were used to avoid agglomeration of PZT particles and prepare a uniform solution. The solution was then poured into a mold and placed in a desiccator container, connected to a vacuum pump, to perform the degassing process. After the polymerization process was completed, samples were dried to complete the curing process. After polishing, the copper electrode plates were placed on both sides of the piezocomposite elements. Finally, the polarization process was performed using the corona discharge method. The results of XRD, FT-IR and SEM analysis depict the uniform dispersion of the PZT particles within the polymer. The prototyped specimens generate electric charge, measured by an oscilloscope, under a dynamic loading.

Please cite this article using:

M. Sadeghi Kia, H. Ghasemi, Prototyping of piezoceramic-polymer composites using Solution Casting method for use in acoustic Transducers, Iranian Journal of Manufacturing Engineering, Vol. 8, No. 5, pp. 14- 22, 2021 (in Persian)

برای ارجاع به این مقاله از عبارت ذیل استفاده نمایید:

1- مقدمه

ترانسدیوسر پیزوالکتریک که یکی از مهم‌ترین انواع ترانسدیوسرهای آکوستیک است، در صنایع مختلفی همچون ناوبری کشتی‌ها و زیردریایی‌ها، نظارت بر منابع آبی، مخابرات زیرآب، آزمون‌های غیرمخرب، سونوگرافی و ... کاربرد دارد. با توجه به کاربردهای فراوان این‌گونه از ترانسدیوسرها، امروزه در کشورهای پیشرفته پژوهش‌های بسیاری در جهت توسعه آنها در حال انجام است. اثر پیزوالکتریک که تنها در مواد با ساختار کریستالی غیرمتمقان نسبت به مرکز¹ وجود دارد به صورت یک وابستگی خطی بین قطبش الکتریکی و کرنش مکانیکی تعریف می‌شود [1]. اثر پیزوالکتریسیته مستقیم همیشه با اثر پیزوالکتریسیته معکوس، که عبارت است از تغییر شکل مکانیکی قطعه پیزوالکتریک به دلیل قرار گرفتن در یک میدان الکتریکی، همراه است. موادی که سلول واحد آنها هیچ‌گونه مرکز تعادلی نداشته باشند، می‌توانند از خود خاصیت پیزوالکتریسیته ارائه دهند. در واقع چنانچه یک تنش خارجی بر قطعه‌ی پیزوالکتریک وارد شود، بارها به‌گونه‌ای جا به جا گشته که تقارن دوقطبی‌ها از میان رفته و در نتیجه یک میدان الکتریکی در اثر شبکه‌ی قطبی شده ایجاد می‌شود [2].

کامپوزیت پیزوسرامیک درون فاز زمینه پلیمر، هم از مزایای فاز پلیمر نظیر خواص خوب مکانیکی، چگالی پایین، امپدانس آکوستیکی زیاد و انعطاف‌پذیری بالا بهره می‌گیرد؛ و هم از مزایای فاز سرامیک، نظیر خواص پیزوالکتریک و پیروالکتریک خوب استفاده می‌کند. بر اساس مفهوم اتصال بین فازها که نیونهام و همکارانش [3] آن را ارائه کردند، این‌گونه کامپوزیت‌ها به‌عنوان کامپوزیت نوع 0-3 شناخته می‌شوند (شکل 1)؛ و بدین معنی است که ذرات پیزوسرامیک به‌صورت یکنواخت و بدون اینکه با یکدیگر تماس داشته باشند، درون فاز پلیمر پراکنده می‌شوند.

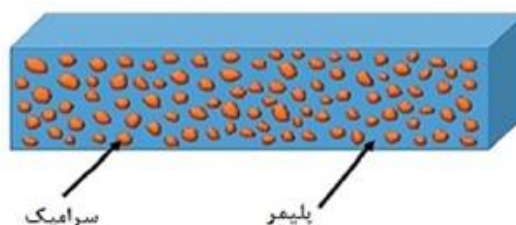


Fig. 1 Schematic representation of 0-3 Piezocomposite [5]

شکل 1 تصویر شماتیک پیزوکامپوزیت نوع 0-3 [5]

از مزایای پیزوکامپوزیت‌های 0-3 نسبت به سایر پیزوکامپوزیت‌ها می‌توان به مواردی همچون روش‌های راحت‌تر و

هزینه کمتر فرایند ساخت و امکان استفاده از درصد‌های مختلف فاز سرامیک درون پلیمر، اشاره نمود [4].

ماهیت شکننده پیزوسرامیک‌های خالص، آنها را نسبت به شکست ترد آسیب‌پذیر کرده و عمر کاری مفید آنها را محدود می‌سازد. چنین خواص ضعیف مکانیکی، کاربردهای این مواد را در دستگاه‌هایی نظیر هیدروفون‌ها، دستگاه‌های جاذب انرژی، میکرو پمپ‌ها، عملگرهای جت ترکیبی و موتورهای خطی که نیاز به شکل‌ها و ساختارهای پیچیده برای بالا بردن حساسیت و قابلیت اطمینان و عمر کاری زیاد دارند، محدود می‌سازد [6].

بانرجی و همکارانش [6] قطعه‌های پیزوکامپوزیت با اتصال 0-3 را از روش پوشش‌دهی دورانی ساختند. آنها پودر PZT و پلیمر اپوکسی را با استفاده از دستگاه همزن التراسونیک ترکیب کرده و محلول حاصل را بر روی بستر فلزی، پوشش‌دهی دورانی داده و پختند. سپس پیزوکامپوزیت را الکتروگذاری و قطبی کردند.

چن و همکارانش [7] فیلم‌های پیزوکامپوزیتی با اتصال 0-3 را به منظور استفاده در ترانسدیوسرهای فرکانس بالا، با استفاده از روش سل-ژل ساختند. آنها پودر PZT و پلیمر را با یکدیگر ترکیب کرده و سپس محلول حاصل را روی بستری ریخته و پوشش‌دهی دورانی دادند. سپس محلول را خشک کرده و به‌منظور از بین بردن منافذ و رسیدن به فیلم‌های با چگالی بالاتر، از خلأ استفاده کردند. فیلم‌های پیزوکامپوزیتی را پخته و در مرحله آخر، پیزوکامپوزیت‌ها را الکتروگذاری و سپس قطبی کردند. فیلم‌های کامپوزیتی که با این روش ساخته شدند، با چگالی بالا، صاف و تخلخل کم گزارش شده‌اند. حضور منافذ زیاد، می‌تواند به مقدار پایین ثابت دی‌الکتریک و شکسته شدن لایه‌های کامپوزیت در هنگام اعمال ولتاژ بالا در فرایند قطبی‌سازی، منجر شود. این منافذ برای رسیدن به فرکانس‌های بالا، بسیار مضر می‌باشند.

ونکاتراگواراج و همکارانش [8] با استفاده از روش ریخته‌گری محلولی پیزوکامپوزیت‌های 0-3 ساختند. در این روش مقداری پلیمر PVDF را در حلال، حل کرده و سپس مقدار متناسبی از پودر PZT را در محلول پلیمر پراکنده کردند و محلول حاصل را تا زمانی که به یک محلول ویسکوز تبدیل شود، حرارت دادند. سپس محلول حاصل را بر روی یک صفحه شیشه‌ای ریخته تا حلال موجود تبخیر شده و پیزوکامپوزیت مورد نظر ساخته شود. سیما و همکارانش [9] با استفاده از روش پرس گرم پیزوکامپوزیت‌های 0-3 ساختند. در این روش مقداری پلیمر PVDF را در حلال، حل کرده و سپس مقدار متناسبی از پودر

¹ Non-centrosymmetric

ریخته‌گری نواری پیزوکامپوزیت‌های 0-3 ساختند. در این روش مقداری پلیمر PVDF را در حلال، حل کرده و سپس مقدار متناسبی از پودر PZT را در محلول پلیمر پراکنده کرده و محلول حاصل را تا زمانی که به یک محلول ویسکوز تبدیل شود، حرارت دادند. سپس محلول حاصل را بر روی یک صفحه شیشه‌ای ریخته و با یک تیغه یکنواخت، محلول را ریخته‌گری نواری کردند. در نهایت محلول را خشک کرده و پیزوکامپوزیت مورد نظر را ساختند. طرح‌واره مراحل این روش را می‌توان در شکل 2 مشاهده نمود. آنها نتیجه گرفتند که با روش پرس گرم، توزیع یکنواخت ذرات پیزوسرامیک در زمینه پلیمری نسبت به روش ریخته‌گری نواری، بهتر خواهد شد. ثابت دی‌الکتریک نیز، در روش پرس گرم نسبت به روش ریخته‌گری نواری، نتایج بهتری داشته و با افزایش درصد پیزوسرامیک، ثابت دی‌الکتریک نیز افزایش خواهد یافت.

را در محلول پلیمر پراکنده کرده و محلول حاصل را تا زمانی که به یک محلول ویسکوز تبدیل شود، حرارت دادند. حرارت‌دهی را بیشتر کرده تا پلیمر به حالت مذاب تبدیل شود، سپس این پلیمر مذاب بین دو دیسک فلزی فشرده شده و ورقه‌های پیزوکامپوزیت با ضخامت 1-2 میلی‌متر ساخته شدند [8، 9]. طرح‌واره مراحل این روش را می‌توان در شکل 2 مشاهده نمود. ونکاتراگواراج و همکارانش [8] با استفاده از روش پرس گرم پیزوکامپوزیت‌های 0-3 ساختند و نتیجه گرفتند که روش ریخته‌گری محلولی احتیاج به اصلاح داشته، به گونه‌ای که نمونه ساخته شده یکنواختی بهتر و تخلخل کمتری داشته باشد. آنها نشان دادند کامپوزیت‌هایی که با روش پرس گرم ساخته می‌شوند، مقدار d (ضریب کرنش پیزوالکتریک) بالاتر و پایداری بهتری نسبت به زمان داشته و بیشترین مقدار d را از همین روش و با نسبت 50 درصد به دست آوردند. سیما و همکارانش [9] همچنین با استفاده از روش

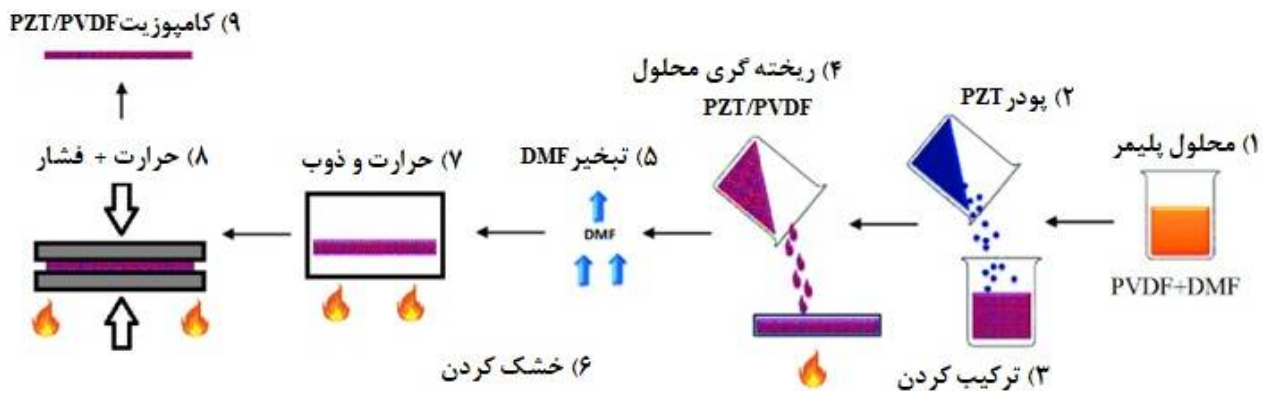


Fig. 2 Schematic representation of the steps involved in the hot press method

شکل 2 طرح‌واره مراحل روش پرس گرم

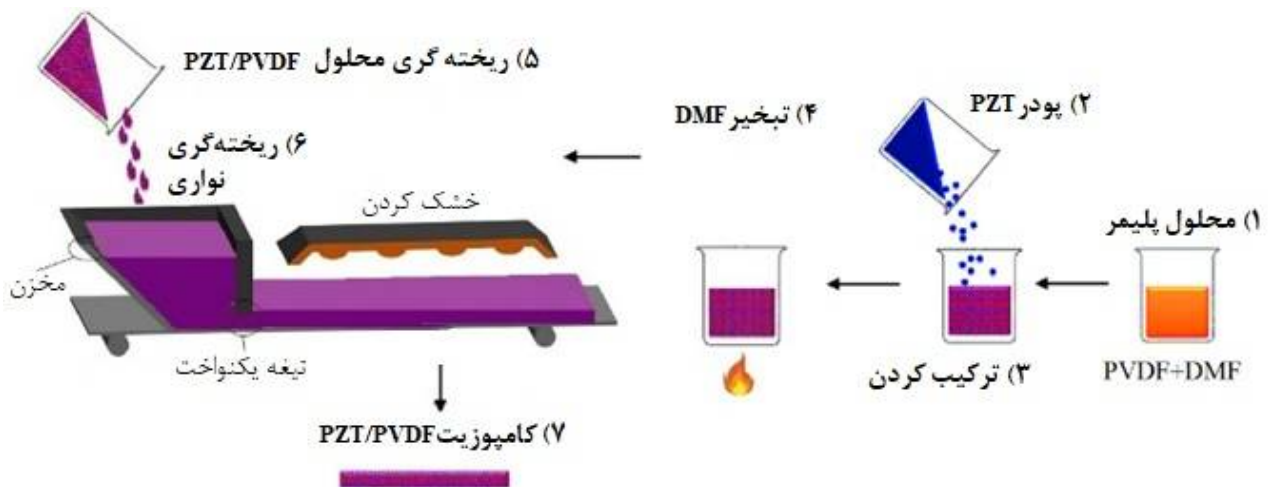


Fig. 3 Schematic representation of the steps involved in the tape casting method

شکل 3 طرح‌واره مراحل روش ریخته‌گری نواری

¹ Piezoelectric strain coefficient

الکتریکی اعمال شده باعث ایجاد گشتاور دوقطبی می‌شود، که آرایش تصادفی سلول‌های PZT را در جهت میدان تغییر می‌دهد. دوقطبی‌های مرتب شده می‌توانند پس از حذف میدان اعمال شده نیز، هم‌جهت بمانند.

در تحقیق حاضر ابتدا مقالات پژوهشی مشابه مورد مطالعه قرار گرفت، سپس با توجه به امکانات آزمایشگاهی موجود و تلفیق دیگر روش‌ها، روشی کم‌هزینه و مشابه روش ریخته‌گری محلولی انتخاب گردید. نمونه‌های ساخته شده با این روش دارای چگالی بالا و تخلخل کم هستند. از جمله نوآوری‌های این تحقیق می‌توان به استفاده از ترکیب دو پلیمر اپوکسی و پلی‌اورتان در ساخت کامپوزیت پیزوسرامیک-پلیمر با اتصال نوع 0-3 و همچنین بومی‌سازی این گونه پیزوکامپوزیت‌ها در کشور اشاره نمود.

2- مواد و روش‌ها

2-1- ساخت نمونه‌ها

برای ساخت کامپوزیت‌های پیزوسرامیک-پلیمر از پودرهای PZT 5H و PZT 8 به‌عنوان ماده پرکننده، رزین اپوکسی و پلی‌اورتان به‌عنوان ماده زمینه کامپوزیت و همچنین از DMF و استون به‌عنوان حلال استفاده گردید. از AXSON EPOLAM 2017 ساخت کشور فرانسه با ویسکوزیته 2850 میلی‌پاسکال ثانیه و با سختی SHORE.D86 به‌عنوان رزین و از هاردنر EPOLAM 2018 با ژل‌تایم 6 ساعت استفاده گردید. همچنین از EAPAFLEX 665A86 ساخت کشور ایتالیا با سختی SHORE.A65 به‌عنوان پلی‌اورتان استفاده شد. رزین اپوکسی ذکر شده با توجه به خواص خوب مکانیکی، ویسکوزیته نسبتاً پایین و به جهت کاهش حباب در فرایند ساخت انتخاب گردید. ساخت نمونه‌ها با استفاده از تلفیق دیگر روش‌های ساخت و با توجه به امکانات آزمایشگاهی موجود صورت پذیرفت. مراحل این روش به ترتیب شامل محلول‌سازی، هم‌گن‌سازی، حباب‌زدایی، پخت، الکتروگذاری و قطبی‌کردن می‌باشند.

2-1-1- ساخت پیزوکامپوزیت PZT/EP

بر طبق این روش، نمونه‌هایی با نسبت وزنی 30، 40، 50، 60 و 70 درصد از PZT 5H و PZT 8 ساخته شدند. بدین منظور در ابتدا پودر PZT پس از توزین، با رزین اپوکسی ترکیب و به‌منظور پراکنده‌سازی یکنواخت‌تر پودر پیزوسرامیک در زمینه پلیمر به مدت 60 دقیقه از همزن مغناطیسی استفاده گردید. سپس هاردنر را با محلول حاصل ترکیب کرده و به جهت پراکنده‌سازی

ساتیش و همکارانش [10] با استفاده از روش پرس گرم پیزوکامپوزیت‌های نوع 0-3 حاوی 10 تا 70 درصد پیزوسرامیک در زمینه پلیمری ساخته و نتیجه گرفتند کامپوزیت‌هایی که با فشار بالاتر ساخته می‌شوند، ثابت دی‌الکتریک کمتر و ϵ (ضریب ولتاژ پیزوالکتریک)¹ بالاتری داشته و بیشتر برای کاربردهایی نظیر ترانسیدوسر مناسب هستند.

اسلینگر و همکارانش [11] نمونه‌های پیزوکامپوزیتی با اتصال 0-3 را از روش چرخش ناپیوسته ساختند. آنها پودر PZT را در محلول اتصال‌دهنده پراکنده کرده، تا دوغاب همگن سرامیک تشکیل شود. این دوغاب را در یک کارتریج ریخته و به‌وسیله فشار گاز، از طریق یک نازل درون سیلندر دستگاه اکستروژن کردند. دانه‌های کروی به وجود آمده با قطر 1200 میکرومتر را خشک کرده و پختند. سپس اپوکسی را روی دانه‌های PZT ریخته، تا کاملاً با اپوکسی پوشیده شوند. در مرحله آخر نمونه‌ها را الکتروگذاری و سپس قطبی کردند.

روتان و همکارانش [12] پیزوسرامیک‌های PZT، BCZT و KNN را ساختند و تحت پارامترهای مختلف از روش تخلیه کرونا قطبی کردند و ضریب بار پیزوالکتریک (d_{33}) نمونه‌ها را با یکدیگر مقایسه کردند. در بین این سه پیزوسرامیک، PZT بالاترین میزان قطبش، بالاترین کرنش و همچنین بالاترین پاسخ پیزوالکتریک در دمای اتاق را نشان داد. تأثیر قطبی‌سازی تخلیه کرونا در ضریب پیزوالکتریک به پارامترهای مختلفی بستگی دارد که از جمله این پارامترها می‌توان به ولتاژ، فاصله الکتروژن، شعاع نوک الکتروژن، ضخامت نمونه، دما و زمان قرار گرفتن نمونه تحت روش کرونا اشاره نمود. آنها بیان داشتند که پس از 3 دقیقه در ولتاژ 20 کیلوولت میدان مؤثر² به وضوح از میدان وادارندگی³ فراتر رفته و اشباع در قطبش اتفاق می‌افتد. در این محدوده، تمام پتانسیل‌های بالای پتانسیل وادارندگی، منجر به اشباع d_{33} بعد از 1 دقیقه خواهد شد.

چنگ و همکارانش [13] فیلم‌های پیزوکامپوزیتی با اتصال 0-3 را از روش سل-ژل ساختند و تأثیر ولتاژ قطبی‌سازی را بر خواص پیزوالکتریک فیلم‌ها بررسی کردند. آنها نمونه‌ها را از روش قطبش کرونا با ولتاژهای 10، 15، 20 و 25 کیلوولت قطبی کردند و به ترتیب مقادیر 342، 384، 440 و 455 را برای ثوابت دی‌الکتریک اندازه‌گیری کردند. ثابت دی‌الکتریک فیلم‌های PZT با افزایش ولتاژ قطبی‌سازی، با نرخ افزایشی 7/92 بر هر کیلوولت افزایش یافت. این امر به این دلیل است که میدان

¹ Piezoelectric voltage coefficient

² Effective field

³ Coercive field

پلی‌اورتان پس از توزین، در حلال DMF بر روی همزن مغناطیسی با دمای 80 درجه سانتی‌گراد به مدت 6 ساعت حل شدند. سپس پودر PZT و رزین اپوکسی پس از توزین به محلول پلی‌اورتان افزوده شد و به‌منظور ترکیب کردن و پراکنده‌سازی یکنواخت پودر پیزوسرامیک در زمینه پلیمر به مدت 60 دقیقه از همزن مغناطیسی استفاده گردید. در ادامه، فرایند ساخت نمونه‌ها مانند بخش 1-1-2 انجام پذیرفت.

2-1-3- ساخت نمونه‌های پیزوکامپوزیت با طرح هرم ناقص

با استفاده از روش تلفیقی، دو نمونه با نسبت وزنی 60 درصد از PZT 5H و 8 PZT ساخته شد. پس از مرحله پخت، دو طرف نمونه‌ها را با استفاده از کاغذ سنباده نرم پولیش زده تا سطح صاف و یکنواختی ایجاد گردد. نمونه‌ها را خط‌کشی کرده و الگوهای هرمی شکل با استفاده از اره‌مویی و سوهان سه‌گوش بر روی نمونه‌ها ایجاد گردید. سپس نمونه‌ها مانند شکل 5 به‌صورت مربع بریده شدند. هر قطعه پیزوکامپوزیت، از 49 هرم متصل به هم تشکیل شده است.

بهتر و جلوگیری از چسبندگی ذرات پیزوسرامیک به همدیگر در زمینه پلیمر، به مدت پنج دقیقه از همزن التراسونیک استفاده شد. در ادامه محلول به مدت 90 دقیقه با استفاده از همزن مغناطیسی یکنواخت گردید. زمانی که ویسکوزیته محلول به حد کافی بالا رفت، آن را درون قالب ریخته و قالب را در ظرف دسیکاتور که به یک پمپ خلأ متصل است، به مدت 10 دقیقه قرار داده تا فرایند حباب زدایی محلول انجام شود. جهت تکمیل فرایند پلیمریزاسیون و پخت، نمونه‌ها به مدت 20 ساعت در دمای اتاق، 2 ساعت در دمای 45 درجه سانتی‌گراد، 2 ساعت در دمای 60 درجه سانتی‌گراد و 8 ساعت در دمای 80 درجه سانتی‌گراد قرار گرفتند. طرح واره این روش در شکل 4 نشان داده شده است.

2-1-2- ساخت پیزوکامپوزیت PZT/EP+TPU

در این بخش، نمونه‌هایی با نسبت وزنی 30، 40، 50، 60 و 70 درصد از PZT 5H و 8 PZT ساخته شدند. پلیمر مورد استفاده در این نوع پیزوکامپوزیت به‌صورت ترکیبی از دو پلیمر اپوکسی و پلی‌اورتان با نسبت وزنی 80 به 20 بود. در ابتدا گرانول‌های



Fig. 4 Schematic representation of the steps involved in the present solution casting method

شکل 4 طرح‌واره روش ریخته‌گری محلولی استفاده شده

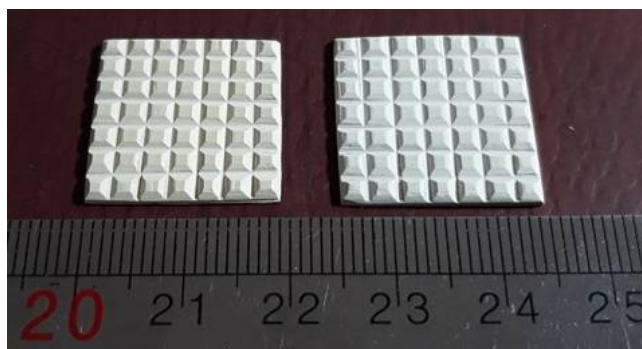


Fig. 5 Truncated pyramid specimens before placement of electrodes

شکل 5 نمونه‌های هرم ناقص قبل از الکتروگذاری

9 نشان داده شده است. یک پیک در $82/609\text{cm}^{-1}$ دیده می‌شود که مربوط به ارتعاشات Zr-O و Ti-O است.

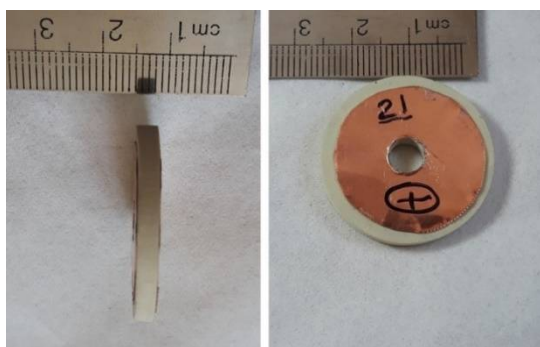


Fig. 6 A piezocomposite sample after electrode placement

شکل 6 نمونه پیزوکامپوزیت پس از الکتروگذاری



Fig. 7 The high-voltage setup for polarization of the samples

شکل 7 تجهیزات ولتاژ بالای استفاده شده در مرحله قطبی‌سازی نمونه‌ها

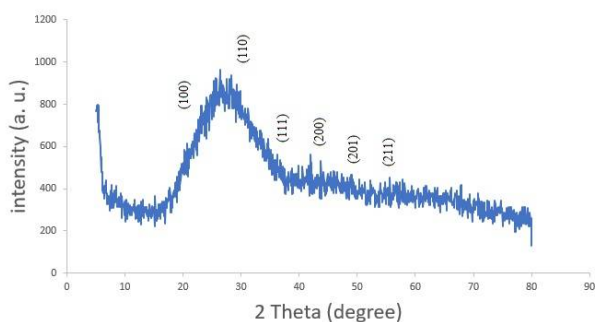


Fig. 8 XRD pattern of PZT powder

شکل 8 الگوی XRD پودر PZT

با توجه به تصاویر SEM نشان داده شده در شکل 10، اندازه دانه‌های PZT در حدود $0/2-1/5$ میکرومتر است. در شکل 10-الف که سطح پیزوکامپوزیت حاوی 50 درصد از PZT 5H را با بزرگنمایی 1000 برابر نشان می‌دهد، مقداری انباشته شدن و چسبندگی ذرات پیزوسرامیک در زمینه پلیمر مشاهده می‌شود، همچنین اندازه گرانول‌های PZT بین 20-70 میکرومتر است.

2-1-4- ساخت پیزوکامپوزیت با استفاده از روش ریخته‌گری نواری
با استفاده از این روش، فیلم‌های نازک پیزوکامپوزیت PZT/EP با نسبت وزنی 60 درصد از PZT 5H و PZT 8 ساخته شدند. بدین منظور در ابتدا محلول پیزوکامپوزیت مانند بخش 1-1-2 آماده شد. زمانی که ویسکوزیته محلول به حد معینی رسید، آن را بر روی یک صفحه شیشه‌ای ریخته و با یک تیغه فلزی یکنواخت که لبه‌های برجسته آن دارای ارتفاع معینی بود، محلول ریخته‌گری نواری گردید. صفحه شیشه‌ای را درون ظرف دسیکاتور که به یک پمپ خلأ متصل هست، به مدت 10 دقیقه قرار داده تا فرایند حباب زدایی محلول انجام شود. سپس نمونه به مدت 20 ساعت در دمای اتاق، 2 ساعت در دمای 45 درجه سانتی‌گراد، 2 ساعت در دمای 60 درجه سانتی‌گراد و 8 ساعت در دمای 80 درجه سانتی‌گراد قرار گرفت تا پخته شود.

2-2- الکتروگذاری و قطبی‌سازی

دو طرف نمونه‌ها با استفاده از کاغذ سنباده نرم پولیش زده شد تا سطح یکنواختی جهت الکتروگذاری ایجاد گردد. ضخامت نمونه‌ها 3 میلی‌متر در نظر گرفته شد. سپس مرکز نمونه‌ها با استفاده از دستگاه تراشکاری و مته 6 میلی‌متر سوراخ گردید. برای الکتروگذاری نمونه‌ها، رزین اپوکسی را به جهت بالا بردن خاصیت رسانایی الکتریکی با پودر آلومینیوم ترکیب کرده و لایه‌های نازک مسی، با استفاده از این محلول به نمونه‌های پیزوکامپوزیت چسبانده شد (شکل 6). در مرحله آخر هر یک از نمونه‌های الکتروگذاری شده، با استفاده از روش تخلیه کرونا به مدت 3 دقیقه در دمای اتاق و ولتاژ 20 کیلوولت قطبی شدند (شکل 7).

3- نتایج و بحث

پودر PZT به جهت شناسایی فاز، تحت پراش پرتو ایکس قرار گرفت که نتیجه آن در شکل 8 نشان داده شده است. با توجه به مکان و شدت پیک‌ها، از جمله پیک 110 که دارای بیشترین شدت است، نشان دهنده ساختار پروسکایت پودر پیزوالکتریک می‌باشد.

آنالیز FT-IR برای پودر PZT در محدوده $400-4000\text{cm}^{-1}$ انجام شد که نتایج آن در شکل 9 نشان داده شده است. در گراف FT-IR بیشینه‌های مختلفی دیده می‌شود که هر کدام مربوط به یک گروه عاملی می‌باشد. در ساختار ABO_3 پروسکایت، به‌طور معمول در بازه $400-750\text{cm}^{-1}$ یک پیک بلند با بازه‌ی گسترده مشاهده می‌شود که این پیک مربوط به ارتعاشات B-O است. در گراف مربوط به پودر PZT که در شکل

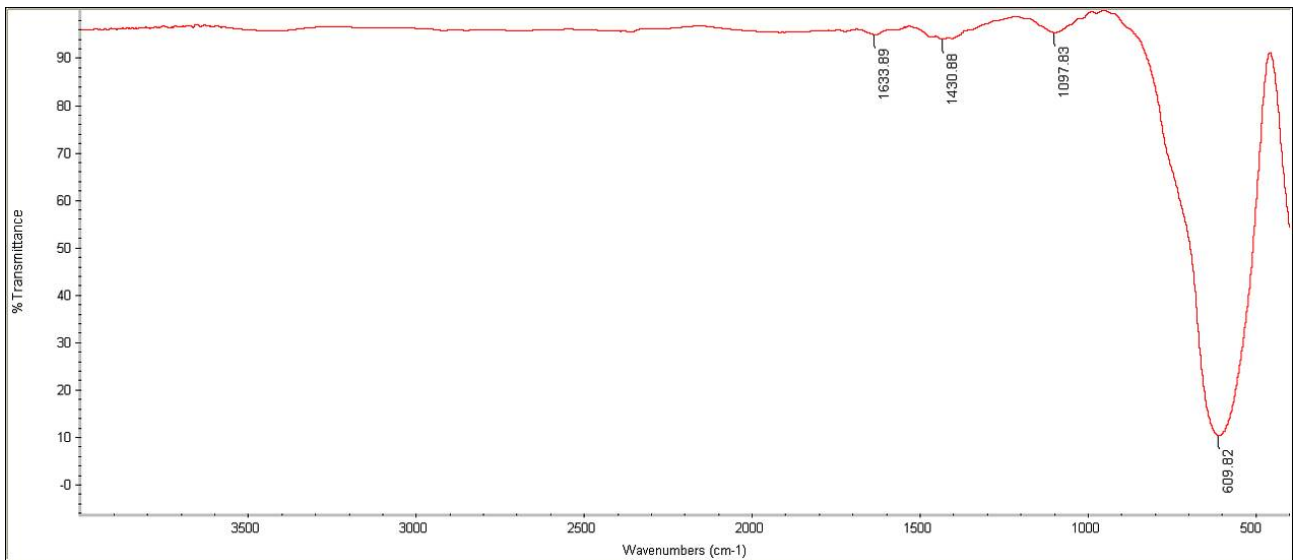


Fig. 9 FT-IR analysis for PZT powder

شکل 9 آنالیز FT-IR برای پودر PZT

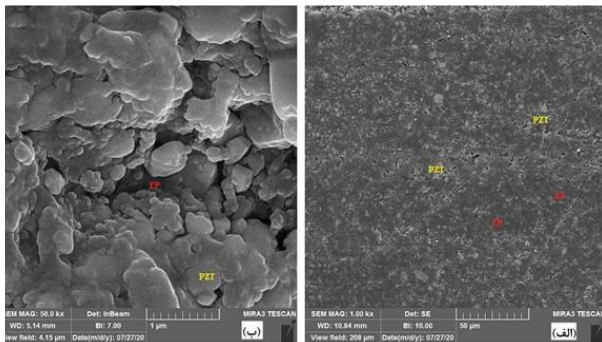


Fig. 11 SEM images of piezocomposite containing 50% PZT 8 powder
شکل 11 تصاویر SEM پیزوکامپوزیت حاوی 50% پودر PZT 8

با توجه به تصاویر SEM که نشان‌دهنده توزیع یکنواخت همراه با اندکی چسبندگی ذرات پیزوسرامیک در زمینه پلیمر می‌باشد، می‌توان نتیجه گرفت که این پراکندگی همگن ذرات سرامیک به دلیل استفاده از همزن التراسونیک است. از دیگر دلایل یکنواخت بودن کامپوزیت‌ها می‌توان به بالا بودن ویسکوزیته سوسپانسیون هنگام قالب‌گیری اشاره نمود که باعث تعلیق و عدم ته‌نشینی ذرات پیزوسرامیک در زمینه پلیمر می‌شود. همچنین در ارزیابی تصاویر، خلل و فرجی در کامپوزیت مشاهده نشد که این امر به دلیل استفاده از محفظه خلأ در فرایند ساخت پیزوکامپوزیت است.

نمونه پیزوکامپوزیت‌های ساخته شده را به جهت اطمینان از صحت مراحل ساخت، الکتروگذار، قطبی‌سازی و همچنین عملکرد صحیح خاصیت پیزوالکتریک، به صورت متناوب تحت تنش قرار داده و ولتاژ خروجی به وسیله اسیلوسکوپ مشاهده گردید. ولتاژ تولید شده متأثر از ضربه‌های نوسانی به صورت

از اندازه گرانول‌ها و دانه‌های PZT می‌توان نتیجه گرفت که یکی از دلایل ته‌نشینی ذرات پیزوسرامیک در برخی نمونه‌ها، عدم استفاده از همزن فراصوت بوده است بگونه‌ای که بزرگ بودن ذرات و گرانول‌ها باعث تسریع فرایند ته‌نشینی در حین فرایند پلیمریزاسیون شده است.

با توجه به تصاویر SEM نشان داده شده در شکل 11، اندازه دانه‌های PZT در حدود 1-10 میکرومتر است. شکل 11-الف سطح پیزوکامپوزیت حاوی 50 درصد وزنی از پودر PZT 8 را در بزرگنمایی 1000 برابر نشان می‌دهد. همچنین پراکندگی یکنواخت ذرات پیزوسرامیک در زمینه پلیمر مشاهده می‌گردد که بیانگر برقراری الگوی اتصال 3-0 در پیزوکامپوزیت است. در شکل 11-ب نیز که سطح پیزوکامپوزیت با بزرگنمایی 50000 برابر نمایش داده شده است، پراکندگی یکنواخت ذرات پیزوسرامیک در زمینه پلیمر مشاهده می‌گردد. همچنین تخلخل بسیار کمی در نمونه‌ها مشاهده می‌گردد.

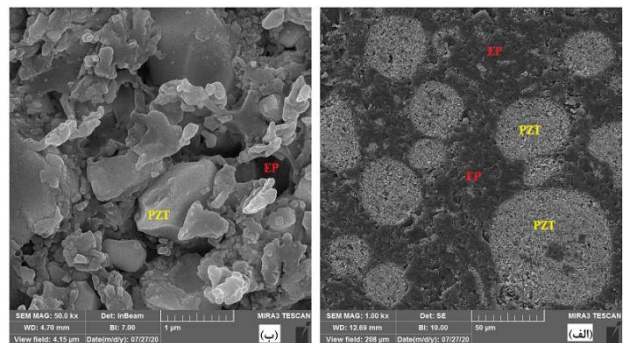


Fig. 10 SEM images of piezocomposite containing 50% PZT 5H powder

شکل 10 تصاویر SEM پیزوکامپوزیت حاوی 50% پودر PZT 5H

حباب‌های ایجاد شده در حین فرایند پلیمریزاسیون خود به خود خارج می‌شوند؛ ولی اگر ویسکوزیته محلول زیاد باشد، حباب‌ها درون محلول باقی می‌مانند، برای خارج کردن حباب‌های ایجاد شده در محلول‌های ویسکوز، باید قبل از تکمیل فرایند پلیمریزاسیون، آنها را در ظرف دسیکاتور که به پمپ خلأ متصل است، قرار داد.

پلی‌اورتان به دلیل بالا بردن انعطاف‌پذیری و خاصیت الاستیکی گزینه مناسبی برای ساخت کامپوزیت‌های پیزوالکتریک است. در نمونه‌ای که پلیمر آن 100 درصد از پلی‌اورتان ساخته شده بود، در حین فرایند خشک کردن و پخت، میزان تبخیر زیادی مشاهده گردید و بخش اعظم پلیمر تبخیر شد. در نمونه دیگر که پلیمر آن حاوی 50 درصد پلی‌اورتان و 50 درصد اپوکسی بود، مشکل تبخیر مقدار زیاد پلیمر که در نمونه قبلی وجود داشت، برطرف گردید و انعطاف‌پذیری بالایی مشاهده شد. مقدار بهینه پلی‌اورتان در پلیمر با توجه به منابع مطالعاتی و نمونه‌های ساخته شده، 20 درصد تعیین گردید.

برای گذار از این چالش‌ها و ساخت پیژوکامپوزیت‌های با کیفیت نوع 0-3، روش تلفیقی کم‌هزینه‌ای بر پایه روش ریخته‌گری محلولی ارائه گردید. محلول‌سازی، همگن‌سازی، حباب زدایی، پخت، الکتروگذاری و قطبی کردن، مراحل این روش پیشنهادی می‌باشند. عدم نیاز به دستگاه‌های گران قیمت و پیشرفته، سرعت بالا، امکان ترکیب مواد مختلف پلیمری و همچنین کنترل مؤثر بر تمامی پارامترهای فرایندی از جمله ویژگی‌های روش پیشنهادی می‌باشند. همچنین چگالی بالا، عدم چسبندگی و ته‌نشینی ذرات پیزوسرامیک در زمینه پلیمری و تخلخل کم از ویژگی‌های پیژوکامپوزیت‌های ساخته شده به این روش می‌باشند. بررسی‌های انجام گرفته با استفاده از SEM این ویژگی‌ها را تصدیق می‌کند.

5- قدردانی

این کار تحقیقاتی در قالب گرنت فناوری طرح جوانه انجام شده است. حمید قاسمی و محمد صادقی کیا از حمایت‌های مالی وزارت علوم، تحقیقات و فناوری و همچنین پارک علم و فناوری استان مرکزی در قالب کد اعتباری 29-99-01-000092 قدردانی می‌نمایند.

6- مراجع

[1] Butler, J.L. and C.H. Sherman, *Transducers and arrays for underwater sound*. 2016: Springer.

بیک‌های نمایش داده شده در شکل‌های 12 و 13 مشاهده گردید.

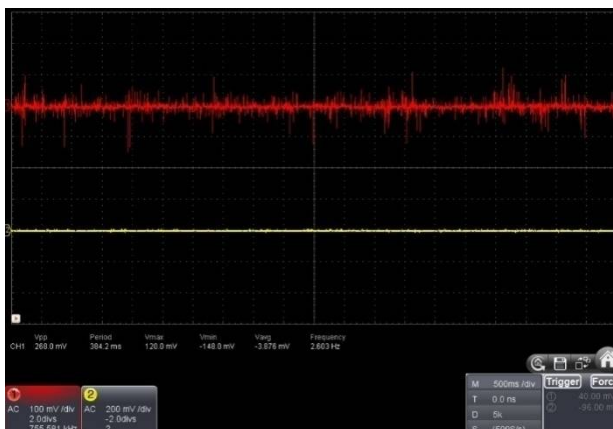


Fig. 12 The voltage generated in a disk type specimen containing 70% PZT

شکل 12 ولتاژ تولید شده در نمونه حاوی 70 درصد PZT

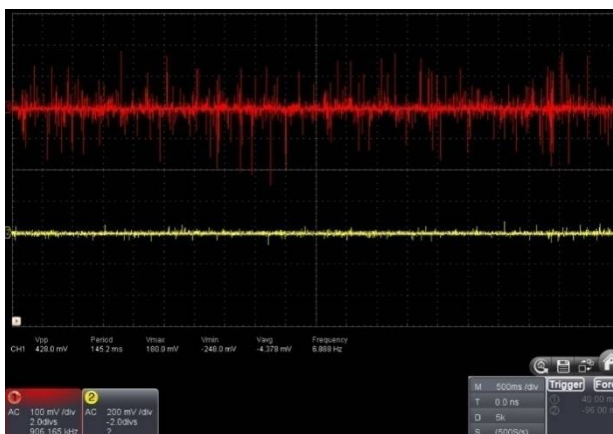


Fig. 13 The voltage generated in a truncated pyramid specimen containing 60% PZT

شکل 13 ولتاژ تولید شده در نمونه هرمی حاوی 60 درصد PZT

4- نتیجه‌گیری

در این تحقیق، ابتدا روش‌های مختلف ساخت پیژوکامپوزیت‌های نوع 0-3 به همراه مزایا و معایب هر روش مورد ارزیابی و نیز چالش‌های ساخت از قبیل ته‌نشینی ذرات پیزوسرامیک در زمینه پلیمر، ایجاد حباب در نمونه‌های پیژوکامپوزیت، ترکیب پلی‌اورتان با اپوکسی در فاز زمینه و قطبی‌سازی نمونه‌ها مورد بررسی قرار گرفتند. ته‌نشینی ذرات پیزوسرامیک در زمینه پلیمر می‌تواند به دلیل پایین بودن ویسکوزیته سوسپانسیون هنگام قالب‌گیری باشد و می‌توان با افزایش ویسکوزیته سوسپانسیون در هنگام قالب‌گیری این مشکل را رفع نمود. با بالا بردن ویسکوزیته سوسپانسیون در هنگام قالب‌گیری مشکل ته‌نشینی تا حدود زیادی رفع می‌گردد، ولی مشکل جدیدی مانند حباب در کامپوزیت ایجاد می‌گردد. اگر ویسکوزیته محلول پایین باشد،

- [8] Venkatragavaraj, E., B Satish, P R Vinod and M S Vijaya, *Piezoelectric properties of ferroelectric PZT-polymer composites*. Journal of Physics D: Applied Physics, 2001. 34(4): p. 487.
- [9] Seema, A., K. Dayas, and J.M. Varghese, *PVDF/PZT/5H composites prepared by hot press and tape casting techniques*. Journal of applied polymer science, 2007. 106(1): pp. 146-151.
- [10] Satish, B., K. Sridevi, and M. Vijaya, *Study of piezoelectric and dielectric properties of ferroelectric PZT-polymer composites prepared by hot-press technique*. Journal of Physics D: Applied Physics, 2002. 35(16): p. 2048.
- [11] Sophia Eßlinger, Sirko Geller, Kai Hohlfeld, Sylvia Gebhardt, Alexander Michaelis, Maik Gude, Andreas Schönecker, Peter Neumeister, *Novel poling method for piezoelectric 0-3 composites and transfer to series production*. Sensors and Actuators A: Physical, 2018. 270: pp. 231-239.
- [12] Rotan, M., M. Zhuk, and J. Glaum, *Activation of ferroelectric implant ceramics by corona discharge poling*. Journal of the European Ceramic Society, 2020. 40(15): pp. 5402-5409.
- [13] Cheng, C.-C., *Voltage effect of corona poling on characteristics of PbZrxTi1-xO3 (PZT) film*. Ceramics International, 2016. 42(11): pp. 12751-12755.
- [2] Kim, K., *Piezoelectric Polymer Nanocomposite Materials: Device Design and Fabrication Methods*. 2015, UC San Diego.
- [3] Newnham, R., D. Skinner, and L. Cross, *Connectivity and piezoelectric-pyroelectric composites*. Materials Research Bulletin, 1978. 13(5): pp. 525-536.
- [4] M. Dietze, J. Krause, C.-H. Solterbeck, and M. Es-Souni, *Thick film polymer-ceramic composites for pyroelectric applications*. Journal of Applied Physics, 2007. 101(5): p. 054113.
- [5] Mahdi, R. and W.A. Majid, *Piezoelectric and pyroelectric properties of BNT-base ternary lead-free ceramic-polymer nanocomposites under different poling conditions*. RSC advances, 2016. 6(84): pp. 81296-81309.
- [6] Banerjee, S., W. Du, L. Wang, K. A. Cook-Chennault, *Fabrication of dome-shaped PZT-epoxy actuator using modified solvent and spin coating technique*. Journal of Electroceramics, 2013. 31(1-2): pp. 148-158.
- [7] Xiaoyang Chen, Chunlong Fei, Zeyu Chen, Ruimin Chen, Ping Yu, Zhongping Chen, K. Kirk Shung, and Qifa Zhou, *Simulation and fabrication of 0-3 composite PZT films for ultrahigh frequency (100-300 MHz) ultrasonic transducers*. Journal of Applied Physics, 2016. 119(9): pp. 094103.