

TiO₂ 含量对压电纤维复合材料抗拉及驱动应变性能的影响

陈海燕¹, 林秀娟^{1,2}, 陈子琪¹, 周科朝¹, 张斗¹

(1. 中南大学 粉末冶金国家重点实验室, 长沙 410083; 2. 济南大学 材料科学与工程学院, 济南 250022)

摘要: 采用粘稠塑性加工方法制备了锆钛酸铅方形压电纤维复合材料, 研究了环氧树脂中不同 TiO₂ 含量对压电纤维复合材料的电学阻抗、抗拉及驱动应变性能的影响。结果表明: 环氧树脂中 TiO₂ 含量不同, 压电纤维复合材料的谐振频率不同。压电纤维复合材料的抗拉强度及纵向自由应变值均随着环氧树脂中 TiO₂ 含量增大先增加后减小。环氧树脂中 TiO₂ 含量为 3wt% 的压电纤维复合材料的抗拉强度达到了 77.50 MPa, 且在驱动电压为 -500 V~+1500 V 时, 其纵向自由应变值达到了 1783.7 $\mu\epsilon$ 。当环氧树脂中 TiO₂ 含量从 3wt% 增大至 5wt% 时, 压电纤维复合材料的抗拉性能和驱动应变性能均有所降低。在不同的外加驱动频率下, 压电纤维复合材料表现出不同的驱动应变能力。随着频率的增大, 压电纤维复合材料的纵向自由应变幅度表现出明显降低, 当频率超过 5 Hz 后, 其纵向自由应变值略有减小。

关键词: 压电纤维复合材料; TiO₂; 抗拉性能; 驱动应变性能

中图分类号: TQ174 文献标识码: A

Influence of TiO₂ Content on the Tensile and Actuation Properties of Piezoelectric Fiber Composites

CHEN Hai-Yan¹, LIN Xiu-Juan^{1,2}, CHEN Zi-Qi¹, ZHOU Ke-Chao¹, ZHANG Dou¹

(1. State Key Laboratory of Powder Metallurgy, Central South University, Changsha 410083, China; 2. School of Materials Science and Engineering, Jinan University, Jinan 250022, China)

Abstract: Piezoelectric fiber composites (PFCs) composed of lead zirconate titanate (PZT) fibers with interdigitated electrodes (IDEs) were prepared by viscous polymer processing technique. The influence of TiO₂ content in epoxy resin on the electrical impedance, tensile properties and actuation performance of PFCs was investigated and characterized. The experimental results showed that the resonant frequency of PFCs was influenced by TiO₂ content in the epoxy resin heavily. With the increase of TiO₂ content in epoxy resin, tensile strength and longitudinal free strain of PFCs were enhanced firstly and then decreased. When the TiO₂ content in epoxy resin was increased to 3wt%, the tensile strength reached the maximum value, 77.50 MPa. The longitudinal free strain of PFCs reached 1783.7 $\mu\epsilon$ when PFCs with 3wt% TiO₂ in epoxy resin were under the excitation voltage range of -500 V to +1500 V at 0.1 Hz. Both tensile properties and actuation performance of PFCs decreased when TiO₂ content increased from 3wt% to 5wt%. PFCs exhibited different actuation performance when excitation electric field with different frequencies was applied to PFCs. With the increase of excitation frequency, the longitudinal free strain values of PFCs displayed an obvious decrease at first and then decreased slowly when excitation frequency was over 5 Hz.

收稿日期: 2014-05-22; 收到修改稿日期: 2014-07-28

基金项目: 国家自然科学基金(51072235); 国防基础科研项目(A1420133028); 湖南省科技计划项目(2014FJ3092)

National Natural Science Foundation of China (51072235); Defense Industrial Technology Development Program (A1420133028); Science-Technology Plan of Hunan Province (2014FJ3092)

作者简介: 陈海燕(1991-), 女, 硕士研究生. E-mail: chenhyh@foxmail.com

通讯作者: 张斗, 教授. E-mail: dzhang@csu.edu.cn

Key words: piezoelectric fiber composites (PFCs); TiO_2 ; tensile properties; actuation performance

压电纤维复合材料(Piezoelectric Fiber Composites, PFCs)是 1993 年由美国麻省理工学院智能材料和结构实验室首次提出的新型压电复合材料结构。该复合材料通过采用两片呈镜面对称的交叉指形电极(Interdigitated Finger Electrode, IDEs)对单向压电陶瓷纤维进行封装所得^[1]。压电纤维复合材料整体厚度较薄,并且封装用环氧树脂为复合材料提供了比压电陶瓷更好的柔性,可应用于各类复杂形状主体结构中;交叉指形电极中诱导电场在复合材料中沿纤维长度方向分布,提高了复合材料的驱动力,并使其具有各向异性驱动特性。近几年来,压电纤维复合材料在智能结构控制^[2-4]、能量采集^[5-7]、结构健康监测^[8]及稳定状态维护^[9]等领域有着广泛的应用前景。

压电纤维复合材料以其独特的结构特点和性能优势,受到科研工作者的广泛关注。许多研究者基于压电纤维复合材料的结构模型,对其结构及其外部条件进行优化,以获得更加优良的抗拉及驱动应变性能。Wilkie 等^[10]和林秀娟等^[11]研究了环氧树脂固化过程中封装压力大小对压电纤维复合材料应变能力的影响;Rossetti 等^[12]研究了交叉指形电极指间距对圆形压电纤维复合材料驱动性能的影响;Williams 等^[13]通过有限元分析法和经典层合板理论,研究了温度对压电纤维复合材料热弹性性能的影响;林秀娟等^[14]研究了不同外加驱动电场对压电纤维复合材料驱动性能的影响。

尽管科研工作者围绕压电纤维复合材料制备工艺的控制及其结构参数的优化开展了大量工作,但大多数研究均未考虑各组成相材料的性能及其相互间的匹配性,因此没有从根本上解决压电纤维复合材料中 PZT 压电陶瓷纤维与环氧树脂之间介电常数不匹配的问题。PZT 作为压电纤维复合材料中最为常用的压电陶瓷,其介电常数 ϵ_r 约为 1780^[15]。环氧树脂介电常数比压电陶瓷通常小 2~3 个数量级^[16],它在压电纤维复合材料的整体结构中起电容器作用,大部分外加电场被该电容器所吸收,仅有小部分电场可穿过环氧树脂层施加于压电纤维上,从而降低了压电纤维复合材料的应变性能。因此,减少环氧树脂层厚度或提高环氧树脂的介电常数成为提高压电纤维复合材料的有效途径^[17]。据报道, TiO_2 介电常数约为 114,环氧树脂/ TiO_2 复合材料的介电常数随着 TiO_2 的增加而增大,且添加适量的 TiO_2 粉末可对其起到增强增韧的作用,并且不会影响环氧树脂的固化进程^[18-20]。

目前针对 PZT 及环氧树脂介电常数不匹配而对压电纤维复合材料进行优化的报道很少。本工作通过在环氧树脂中添加不同含量的 TiO_2 ,制备出方形压电纤维复合材料,研究环氧树脂中 TiO_2 含量对其阻抗、抗拉以及驱动应变性能的影响。

1 实验方法

1.1 PZT 纤维阵列结构的制备

所用 PZT-51 粉为山东淄博宇海电子陶瓷有限公司通过喷雾造粒生产的球形预烧粉, TiO_2 为广东光华化学厂有限公司生产的分析纯粉末。将 PZT-51 粉或炭黑、适量粘结剂、溶剂及增塑剂混合均匀后,采用粘稠塑性加工工艺制备得到压电陶瓷生坯和炭黑生坯,经干燥后在富铅气氛中埋烧,烧结工艺制度:首先以 $1\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 升温至 $325\text{ }^\circ\text{C}$ 保温 1 h 进行脱脂;然后以 $1\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 升温至 $650\text{ }^\circ\text{C}$ 保温 1 h 进行脱碳处理;最后以 $5\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 升温至烧结温度并保温 1 h 。

1.2 方形压电纤维复合材料的制备

采用环氧树脂对烧结所得压电陶瓷纤维阵列进行填充得到 PZT/环氧树脂阵列结构,并将其减薄至 $200\text{ }\mu\text{m}$,在一定温度和压力下采用环氧树脂对交叉指形电极和 PZT/环氧树脂阵列结构进行封装即可得到压电纤维复合材料。将压电纤维复合材料置于硅油中极化,极化电压和保压时间分别为 $4\text{ kV}/\text{mm}$ 和 15 min ,极化后的压电纤维复合材料放置 24 h 即可进行性能测试。

1.3 性能测试

采用 FEI 公司制造型号为 Nova Nano SEM 230 的场发射扫描电子显微镜(SEM)对压电纤维复合材料断面形貌进行观察,并利用其自带的能谱仪对材料的元素组成分布进行分析;采用 INSTRON 3369 型拉伸试验机测试压电纤维复合材料的抗拉性能,每种 TiO_2 添加量的样品均测试两个,加载速率为 $0.3\text{ mm}/\text{min}$;采用 Agilent 4294A 阻抗仪进行阻抗分析,并采用西格马综合测试仪 V 0.7 测量压电纤维复合材料沿纤维长度方向的纵向自由应变性能。

2 结果与讨论

2.1 TiO_2 含量对压电纤维复合材料显微结构的影响

图 1(a)和(b)所示分别为压电纤维复合材料中平

行于纤维长度方向及垂直于纤维长度方向的断面 SEM 照片, 其中较为亮白部分为 PZT, 灰暗部分为环氧树脂区域, 如图中箭头所示。从图 1 中可以看出, 上下两片镜面对称的交叉指形电极对齐状况良好, 电极指与压电陶瓷纤维紧密接触, 单根压电纤维保持良好的完整性和平直度, 并且处于电极和压电纤维之间的环氧树脂粘结层厚度较小。环氧树脂粘结层厚度越小, 被其充当电容器吸收的电压越小, 作用于压电纤维的电场强度越大, 越有利于压电纤维复合材料的驱动变形。图 1(c) 是环氧树脂中 TiO_2 含量为 1wt% 时, 环氧树脂区域断面 SEM 照片, 可以看出, TiO_2 比较均匀地分散于环氧树脂当中, 没有出现团聚现象。这是因为实验中添加有 TiO_2 的环氧树脂经过了足够时间的超声分散, 从而使 TiO_2 较好地分散在环氧树脂中。

2.2 TiO_2 含量对压电纤维复合材料抗拉性能的影响

图 2 所示为环氧树脂中添加有不同 TiO_2 含量压电纤维复合材料的拉伸应力-位移曲线, 由图可知, 压电纤维复合材料在变形初期表现出弹性变形特征, 拉伸应力随着拉伸位移的增大而线性增长; 达到弹性极限后, 拉伸应力的增大速度逐渐减缓而发生缓慢的弹塑性变形, 直至达到复合材料的断裂极限。图 2 所示压电纤维复合材料的断裂特性与 Williams 等^[21]报道的复合材料抗拉性能测试结果的变化趋势一致。由图 2 还可看出, 随着环氧树脂中 TiO_2 含量的增加, 复合材料的最大拉伸应力先增大后减小, 这是因为, 随着 TiO_2 含量的增加, TiO_2 与环氧树脂的接触几率增大, 界面键合增强, TiO_2 与环氧树脂的相互作用增强。在外界应力下, TiO_2 与环氧树脂之间的界面层发生界面脱粘现象, 高聚物分子链纤维化, 产生局部屈服, 需消耗更多能量破坏界面作用力, 从而提高压电纤维材料的抗拉性能, 表现为抗拉强度的提高。当环氧树脂中不添加 TiO_2 时, 压

电纤维复合材料的最大拉伸应力为 66.90 MPa; 当环氧树脂中 TiO_2 含量为 3wt% 时, 压电纤维复合材料的拉伸应力达到最大值 77.50 MPa, 比环氧树脂中不添加 TiO_2 的压电纤维复合材料增大了 15.45%。当 TiO_2 含量增大至 5wt% 时, 压电纤维复合材料最大拉伸应力为 69.12 MPa, 仍大于环氧树脂中不添加 TiO_2 的压电纤维复合材料。添加过多 TiO_2 容易发生团聚, 在外力作用下, 环氧树脂基体容易产生宏观裂纹, 导致压电纤维复合材料的抗拉强度降低, 抗拉性能下降^[20]。

2.3 TiO_2 含量对压电纤维复合材料电学阻抗性能的影响

图 3 所示为环氧树脂中 TiO_2 添加量分别为 0、1wt%、3wt% 和 5wt% 时, 压电纤维复合材料的电学阻抗性能及相位角与频率之间的关系。由图 3(a) 可以发现, 当环氧树脂中不添加 TiO_2 时, 压电纤维复合材料中在谐振频率为 70.3 kHz 下, 此时复合材料的阻抗值和相位角分别为 4.04 Ω 和 -67.557°。临近横向振动峰的存在是由于复合材料中电极指与压电纤维长度方向未完全呈现 90° 分布, 导致横向机电效应较为明显。对比环氧树脂中不同的 TiO_2 含量, 压电纤维复合材料仍表现出谐振现象, 但其电学阻抗性能和相位角均会发生变化。当 TiO_2 添加量分别为 1wt%、3wt% 和 5wt% 时, 压电纤维复合材料的谐振频率分别为 72.78、71.71 和 68.49 kHz, 在谐振频率下的阻抗值分别为 4.059、3.93 和 3.816 Ω 。谐振频率与阻抗值呈现相同的变化规律, 阻抗值越高, 其压电纤维复合材料的谐振频率越大。

2.4 TiO_2 含量对压电纤维复合材料压电性能的影响

图 4 所示为 TiO_2 含量对压电纤维复合材料纵向自由应变性能的影响, 所用驱动电压为 -500 V~+1500 V、驱动电场频率为 0.1 Hz。由图 4 可知, 环氧树脂中 TiO_2 含量不同的压电纤维复合材料均表

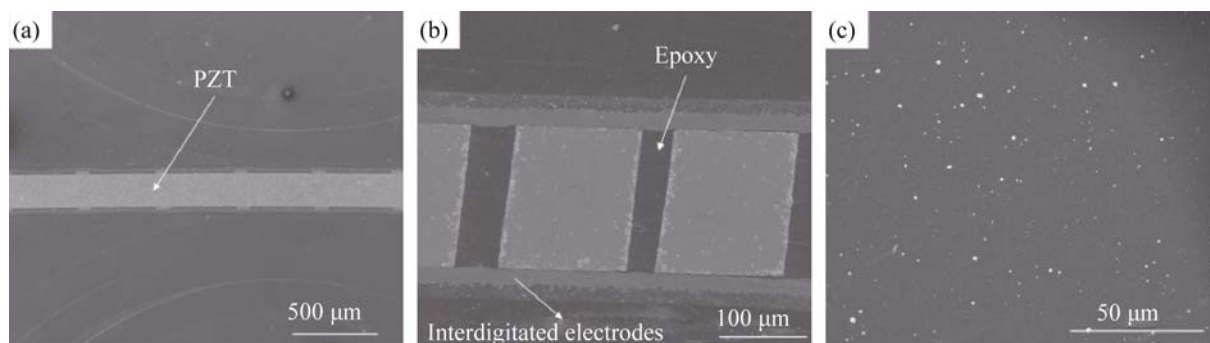


图 1 压电纤维复合材料断面 SEM 照片

Fig. 1 SEM micrographs of the microstructure of PFCs

(a) Parallel to the fiber length; (b) Perpendicular to the fiber length; (c) Epoxy region with 1wt% TiO_2

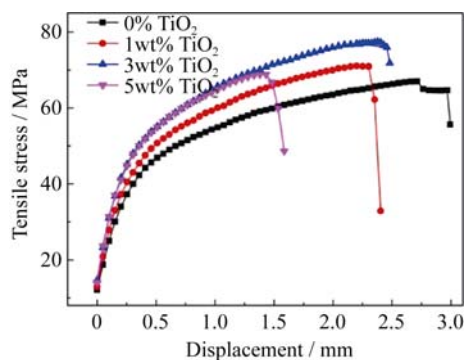


图 2 环氧树脂中添加不同 TiO_2 的压电纤维复合材料的拉伸应力-位移曲线

Fig. 2 Tensile stress-displacement curves for PFCs with different mass fractions of TiO_2 in epoxy resin

现出明显的非线性滞回特性, 且 TiO_2 含量不同时, 滞回曲线面积不同。当环氧树脂中不添加 TiO_2 时, 压电纤维复合材料的纵向自由应变值为 $1418.7 \mu\epsilon$ 。环氧树脂中 TiO_2 添加量为 3wt% 时, 复合材料的纵向自由应变值为 $1783.7 \mu\epsilon$ 。当环氧树脂中 TiO_2 添加量分别为 1wt% 和 5wt% 时, 压电纤维复合材料的纵向自由应变值分别为 1462.7 和 $1104.1 \mu\epsilon$ 。对比上述数据可知, 随着环氧树脂中 TiO_2 含量的增大, 压电纤维复合材料的驱动应变性能表现出先增大后减小的趋势。环氧树脂中加入 TiO_2 提高了环氧树脂/ TiO_2 的介电常数, 降低了 PZT 压电纤维与环氧树脂的介

电常数的不匹配度, 提高可供压电纤维驱动变形时利用的电场强度, 使得压电纤维复合材料的驱动应变性能提高。环氧树脂中 TiO_2 含量由 3wt% 继续增大时, 虽然环氧树脂的介电常数仍会增大, 但同时使得环氧树脂的刚度增大、柔韧性降低, 不利于压电纤维复合材料的变形, 导致压电纤维复合材料的驱动应变能力减弱。

图 5 所示为环氧树脂中 TiO_2 添加量为 0 和 3wt% 时, 压电纤维复合材料的纵向自由应变性能与驱动电场频率之间的关系, 其中所用驱动电压为 $-500 \text{ V} \sim +1500 \text{ V}$ 。本实验采用的交叉指形电极, 其结构参数指间距和电极指宽分别为 530 和 $27.82 \mu\text{m}$ 。由图 5 可知, 压电纤维复合材料的纵向自由应变性能对驱动频率有着强烈的依赖关系。当驱动频率低于 5 Hz 时, 压电纤维复合材料的纵向自由应变值随着驱动频率的增大急剧下降; 当驱动频率超过 5 Hz 时, 压电纤维复合材料纵向自由应变值的下降速度随着驱动电场频率的增大而逐渐变缓, 这与林秀娟等^[14]的测试结果变化是一致的。当外界驱动电压在 $-500 \text{ V} \sim +1500 \text{ V}$ 时, 对于环氧树脂中不添加 TiO_2 的压电纤维复合材料, 当驱动电场频率为 0.1 和 5 Hz 时, 其纵向自由应变值分别为 1418.7 和 $1182.7 \mu\epsilon$, 下降幅度为 16.60% ; 当驱动电场频率为 30 和 50 Hz 时, 其纵向自由应变值分别为 1009.4 和 $963.3 \mu\epsilon$,

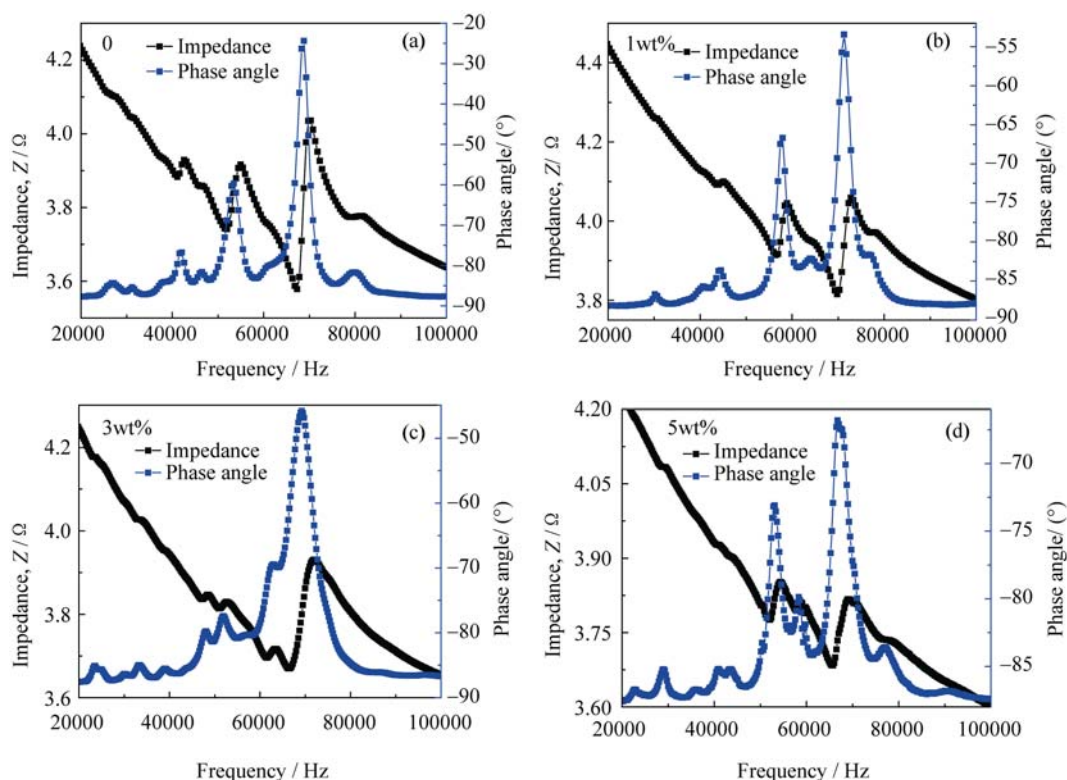


图 3 含有不同 TiO_2 含量的压电纤维复合材料电学阻抗性能表征

Fig. 3 Electrical impedance of PFCs with different mass fractions of TiO_2

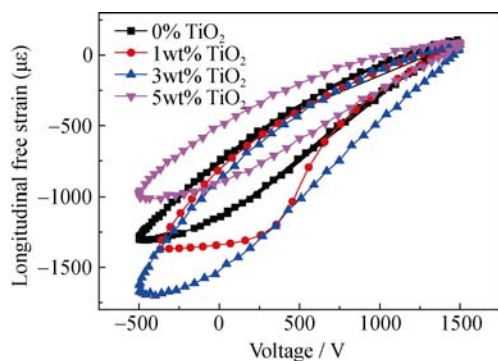


图4 添加有不同 TiO_2 含量的压电纤维复合材料的纵向自由应变曲线

Fig.4 Longitudinal free strain of PFCs with different mass fraction of TiO_2

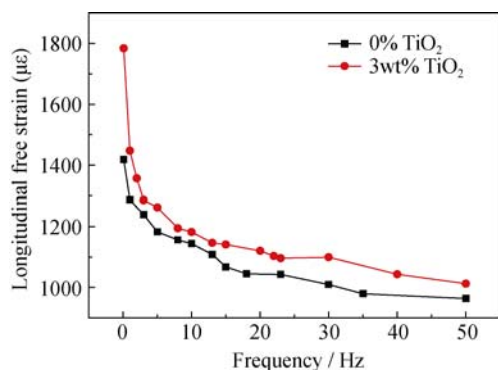


图5 不同频率下压电纤维复合材料的纵向自由应变

Fig.5 Longitudinal free strain of PFCs under different frequencies

下降幅度为 4.58%。对于环氧树脂中 TiO_2 添加量为 3wt% 时的压电纤维复合材料, 当驱动电场频率分别为 0.1 和 5 Hz 时, 其纵向自由应变值分别为 1783.7 和 1262.6 $\mu\epsilon$, 下降幅度为 29.21%; 当驱动电场频率为 30 和 50 Hz 时, 其纵向自由应变值分别为 1099.4 和 1012.2 $\mu\epsilon$, 下降幅度为 7.93%。两者均表现为在驱动电场频率较低时, 压电纤维复合材料的纵向自由应变值下降程度较大; 在驱动电场频率较高时, 纵向自由应变值下降程度较小。处于准静态条件下和驱动电场频率为 50 Hz 时, 环氧树脂中 TiO_2 添加量为 3wt% 的压电纤维复合材料, 其纵向自由应变值比环氧树脂中不添加 TiO_2 的分别要高出 365.0 和 48.9 $\mu\epsilon$, 表明环氧树脂中 TiO_2 的含量对压电纤维复合材料在准静态条件下的作用比较明显。根据 Seshadri^[22] 和 Masys^[23] 等的研究结果分析, 压电纤维复合材料的纵向自由应变性能与驱动电场频率之间的相关性, 可以通过 PZT 纤维中电畴对交变电场的响应速度进行解释。当驱动电场频率较低时, 晶体内部的畴壁有足够的时间进行反转, 同向

电畴增多, 宏观表现为压电纤维复合材料的变形量增大; 而驱动电场频率较高时, 晶体内部的畴壁来不及进行反转, 同向电畴比例减小, 导致压电纤维复合材料纵向自由应变值降低。

3 结论

采用粘稠塑性加工方法制备了压电纤维复合材料, 研究了环氧树脂中不同 TiO_2 含量对其抗拉、阻抗及其驱动应变性能的影响:

1) 压电纤维复合材料中电极指对齐状况以及单根纤维平直度良好, TiO_2 在环氧树脂中分散较为均匀。

2) 压电纤维复合材料的抗拉强度随着环氧树脂中 TiO_2 含量的增大, 先增大后减小, 并在环氧树脂中 TiO_2 添加量为 3wt% 时达到最大值, 为 77.50 MPa。

3) 环氧树脂中 TiO_2 的添加量不同, 压电纤维复合材料表现出不同的谐振频率和阻抗值。

4) 压电纤维复合材料在交变驱动电压下均表现出明显的非线性滞回特性, 且纵向自由应变值随着 TiO_2 含量增多先增加后减小, 并在环氧树脂中 TiO_2 含量为 3wt% 时达到最大, 为 1783.7 $\mu\epsilon$ 。

参考文献:

- [1] BOWEN C R, NELSON L J, STEVENS R, *et al.* Optimization of interdigitated electrodes for piezoelectric actuators and active fiber composites. *Journal of Electroceramics*, 2006, **16**(4): 263–269.
- [2] KIM H S, SOHN J W, CHOI S B. Vibration control of a cylindrical shell structure using macro fiber composite actuators. *Mechanics Based Design of Structures and Machines*, 2011, **39**(4): 491–506.
- [3] TARAZAGA P A, INMAN D J, WILKIE W K. Control of a space rigidizable inflatable boom using macro-fiber composite actuators. *Journal of Vibration and Control*, 2007, **13**(7): 935–950.
- [4] SOJH J W, CHOI S B, KIM H S. Vibration control of smart hull structure with optimally placed piezoelectric composite actuators. *International Journal of Mechanical Sciences*, 2011, **53**(8): 647–659.
- [5] LEFEUVRE E, BADEL A, RICHARD C, *et al.* Piezoelectric energy harvesting device optimization by synchronous electric charge extraction. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 2005, **16**(10): 865–876.
- [6] YANG Y W, TANG L H, LI H Y. Vibration energy harvesting using macro-fiber composites. *Smart Materials and Structures*, 2009, **18**(11): 115025.
- [7] SONG H J, CHOI Y T, WERELEY N M, *et al.* Energy harvesting

- devices using macro-fiber composite materials. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 2010, **21**(6): 647–658.
- [8] BRUNNER A J, BIRCHMEIER M, MELNYKOWYCZ M M, *et al.* Piezoelectric fiber composites as sensor elements for structural health monitoring and adaptive material systems. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 2009, **20**(9): 1045–1055.
- [9] WOOD R J. The first takeoff of a biologically inspired at-scale robotic insect. *Robotics. IEEE Transactions on*, 2008, **24**(2): 341–347.
- [10] WILKIE W K, BRYANT R G, HIGH J W, *et al.* Low-cost Piezo-composite Actuator for Structural Control Applications. SPIE 7th Annual International Symposium on Smart Structures and Materials, Newport Beach, CA, 2000: 323–334.
- [11] LIN X J, ZHOU K C, BUTTON T W, *et al.* Fabrication, characterization, and modeling of piezoelectric fiber composites. *Journal of Applied Physics*, 2013, **114**(2): 027015.
- [12] ROSSETTI JR G A, PIZZOCHERO A, BENT A A. Recent advances in active fiber composites technology. *Applications of Ferroelectrics*, 2000, **2**: 753–756.
- [13] WILLIAMS R B, INMAN D J, WILKIE W K. Temperature-dependent thermoelastic properties for macro fiber composite actuators. *Journal of Thermal Stresses*, 2004, **27**(10): 903–915.
- [14] LIN X J, ZHOU K C, ZHU S, *et al.* The electric field, dc bias voltage and frequency dependence of actuation performance of piezoelectric fiber composites. *Sensors and Actuators A: Physical*, 2013, **203**: 304–309.
- [15] 徐磊, 周静, 唐耀波, 等. PMnS-PZN-PZT 压电纤维的制备与铁电性能. *硅酸盐学报*, 2010, **38**(8): 1411–1414.
- [16] BENT A A, HAGOOD N W. Piezoelectric fiber composites with interdigitated electrodes. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 1997, **8**(11): 903–919.
- [17] NELSON L J. Smart piezoelectric fiber composites. *Materials Science and Technology*, 2002, **18**(11): 1245–1256.
- [18] ZHANG H, QI R, TONG M, *et al.* *In situ* solvothermal synthesis and characterization of transparent epoxy/TiO₂ nanocomposites. *Journal of Applied Polymer Science*, 2012, **125**(2): 1152–1160.
- [19] HUANG K S, NIEN Y H, CHEN J S, *et al.* Synthesis and properties of epoxy/TiO₂ composite materials. *Polymer composites*, 2006, **27**(2): 195–200.
- [20] 陈宇飞, 张旭, 孙佳林, 等. 二氧化钛改性环氧树脂胶黏剂的性能. *江苏大学学报(自然科学版)*, 2013, **34**(3): 335–339.
- [21] WILLIAMS R B, INMAN D J, Schultz M R, *et al.* Nonlinear tensile and shear behavior of macro fiber composite actuators. *Journal of Composite Materials*, 2004, **38**(10): 855–869.
- [22] SESHADRI S B, PREWITT A D, STUDER A J, *et al.* An *in situ* diffraction study of domain wall motion contributions to the frequency dispersion of the piezoelectric coefficient in lead zirconate titanate. *Applied Physics Letters*, 2013, **102**(4): 042911.
- [23] MASYS A J, REN W, YANG G, *et al.* Piezoelectric strain in lead zirconate titanate ceramics as a function of electric field, frequency, and dc bias. *Journal of Applied Physics*, 2003, **94**(2): 1155–1162.