

PLZT透明铁电陶瓷晶粒长大的体视学研究*

殷之文 黄丹妮 陈先同 陈显求 周学林

(中国科学院上海硅酸盐所)

摘 要

本工作用热压8/65/35 PLZT陶瓷为原始材料,通过不同热处理过程制备出各种不同晶粒度的陶瓷试样,试样经过热腐蚀后,用Cambridge Instruments Ltd的Quantimet 900对它们进行图像分析和定量体视学研究,获得了很有价值的各种数据。

关键词: PLZT陶瓷, 体视学, 晶粒长大

一、引 言

晶界对陶瓷材料性能的重大影响已是陶瓷工作者所周知的事实。然而,由于一般陶瓷材料均含有一定量的气孔、杂质和玻璃相等异相物质,用这些材料来研究晶界效应很难得出真实的数据,同时研究工具也很重要,由于近年来显微图像自动定量分析仪的发展,才有可能进行这项研究工作^[1~3],从而可直接测量出各项定量体视学的数据。

PLZT透明铁电陶瓷不含气孔,很少杂质,是一种单相体。它们的晶粒呈颗粒状,有较好的圆度,晶界很细,且由于它们是铁电体的一类,通过调节组成可以将其相变温度移至室温附近,这样在室温范围它们对外界条件(温度、应力、电场等)的变化十分敏感,极适合于进行实验^[4~6]。所以,可以认为PLZT透明铁电陶瓷是一种适合于用来研究陶瓷晶界效应的材料。本文将介绍用Quantimet 900显微图像自动定量分析仪对经过不同条件热处理得到的不同晶粒度的PLZT透明陶瓷进行图像分析和定量体视学的一些实验结果。

二、实验结果

用一块直径10mm、高40mm左右的热压8/65/35 PLZT瓷坯作为原始材料,将其分割成No.1、No.2、No.3和No.4四块试样。No.1作为原始热压试样经过抛光和在1160°C热腐蚀5min后,其显微照相如图1(a)所示。将其余No.2, No.3, No.4三块试样在1385°C、氧化铅气氛下保温72h,将No.2试样取出,抛光腐蚀后的显微照相如图1(b)所示。把经过上述热处理的No.3和No.4试样在1390°C氧化铅气氛下再保温48h,取出No.3试样抛光腐蚀后的显微照相如图1(c)所示。最后,把上述经过两次热处理的No.4试样再在1395°C、氧化铅气氛下保温48h,经抛光腐蚀后的显微照相如图1(d)所示。

* 1986年1月9日收到。

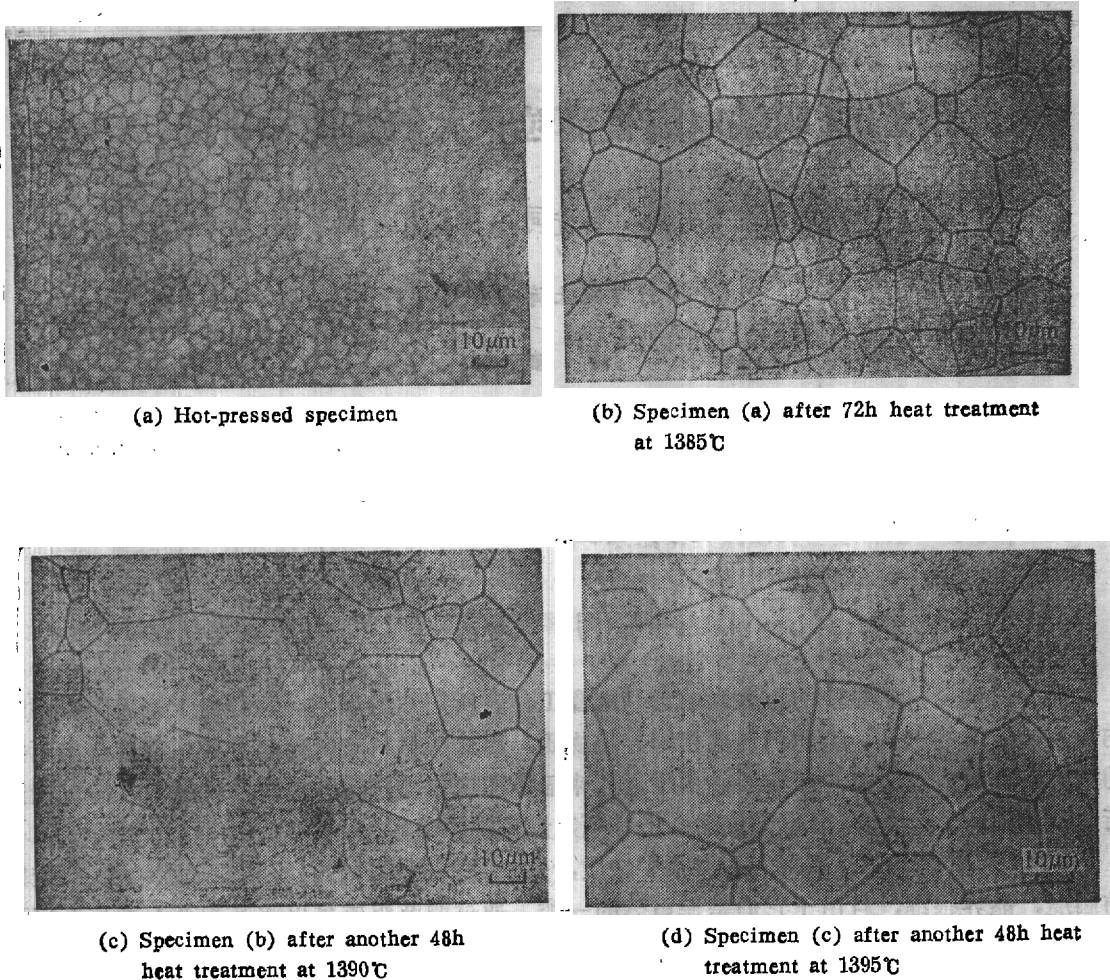


图1. 不同条件热处理后, 8/65/35 PLZT陶瓷的显微照相

Fig.1. Microphotographs of 8/65/35 PLZT ceramics after different process of heat treatment

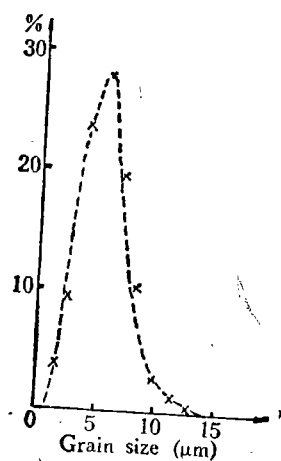
三、图像分析

用英国Cambridge Instruments Ltd的Quantimet 900显微图像自动定量分析仪对上述试样进行图像分析和体视学研究, 所测量的参数是与晶粒尺寸有关的长度分布(L)和宽度分布(B), 与晶粒形态有关的圆度分布(F)和单位陶瓷体积中的晶界面积(S_V)等, 对测量长度分布、宽度分布和圆度分布, 所得的结果取自不同的视场2800—8000颗晶粒的数据; 对 S_V 测量, 所得数据为二十多次对不同视场测量的平均数。表1列出了上述四个试样所反映晶粒长大的图像分析的统计结果。图2和图3分别示出这四个试样的颗粒尺寸分布曲线和颗粒尺寸累计分布曲线。

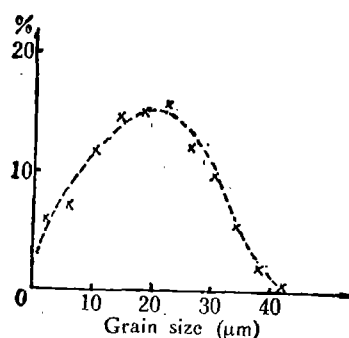
表 1. 不同晶粒度的PLZT陶瓷试样的图象分析数据

Table 1. Image analysis data of PLZT ceramic specimens with different grain size

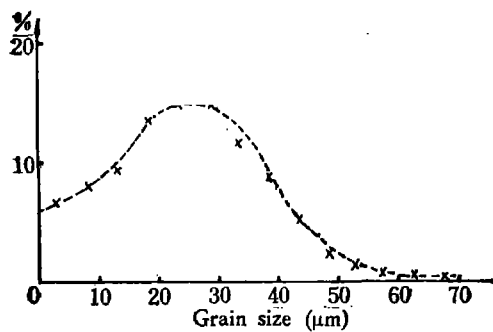
Specimen No.	Total number counted	Grain length (μm)		Grain breadth (μm)		Roundness		S_v (mm^2/mm^3)	
		Mean	Std. Dev.	Mean	Std. Dev.	Mean	Std. Dev.	Mean	Std. Dev.
1	400	5.35	2.25	3.86	1.68	1.39	0.228	0.658	0.014
2	7914	19.0	9.21	13.9	7.52	1.35	0.188	0.159	0.033
3	4456	25.4	13.5	18.6	9.90	1.41	0.351	0.130	0.003
4	2866	31.1	15.1	23.0	12.2	1.36	0.232	0.103	0.0035



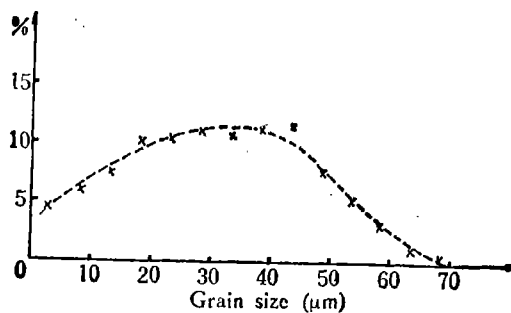
(a) No.1 Specimen



(b) No.2 Specimen



(c) No.3 Specimen



(d) No.4 Specimen

图2. 不同晶粒度PLZT陶瓷的颗粒尺寸分布曲线

Fig. 2. Grain size distribution curves of PLZT ceramics with different grain size

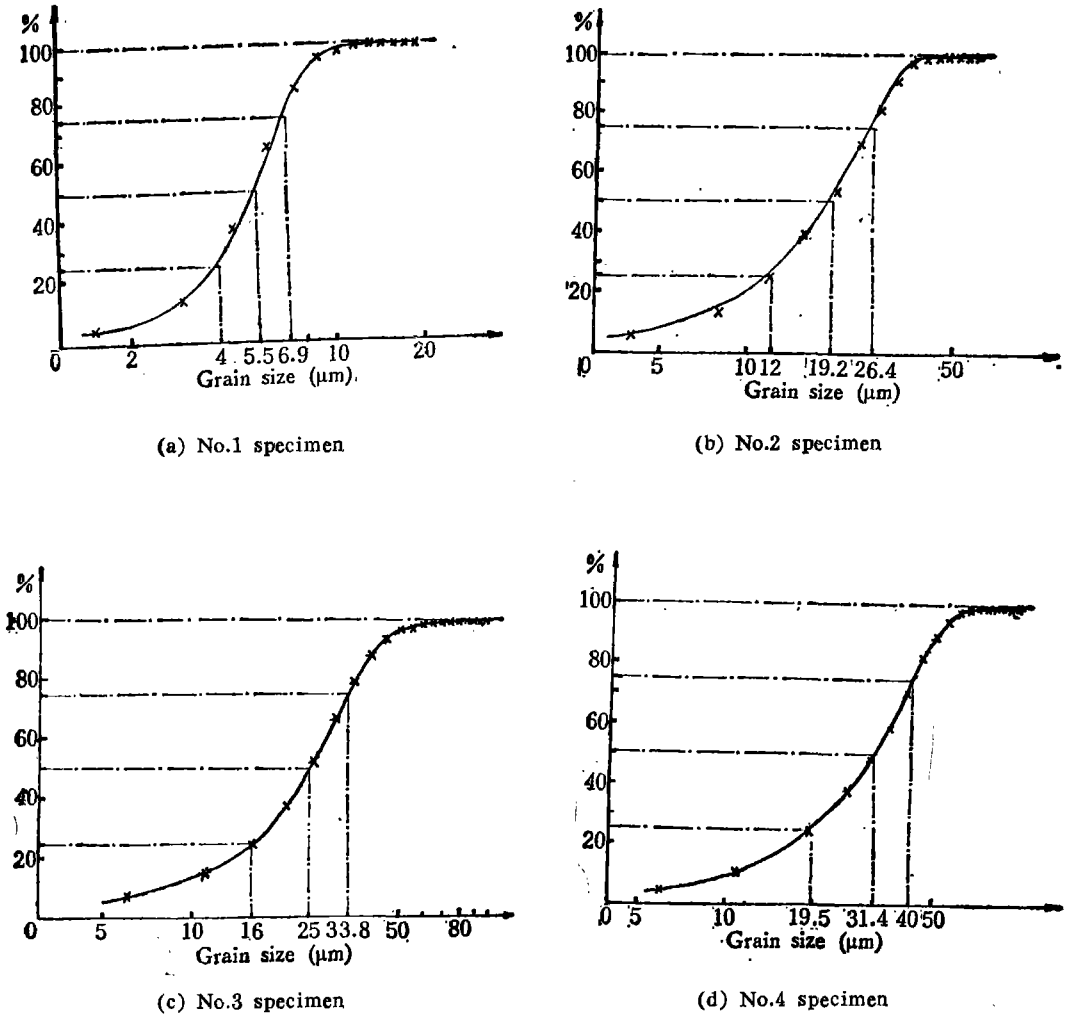


图3. 不同晶粒度PLZT陶瓷的颗粒尺寸累积分布曲线

Fig. 3. Cumulative grain size distribution curves of PLZT ceramics with different grain size

四、讨 论

根据以上的实验结果，进行以下讨论：

1. 对 8/65/35 PLZT 热压试样用高出热压温度(1200°C)200°C的高温进行长时间的热处理。晶粒生长正常，无任何过烧(如产生气孔、晶界变粗、密度降低等)现象出现，晶粒的平均真实尺寸从原来的 6.32μm 逐步长大到36.09μm，最大晶粒尺寸达到80μm，陶瓷的透明度基本不变，这实际上是创造了一种制备大晶粒PLZT透明陶瓷的方法。

2. 在晶粒长大过程中，一般地讲降低界面能和减小应变能是使晶界移动的两种推动力，对常压下烧结的陶瓷来说，存在于陶瓷中的应变能比较小，晶界一般按正常规律朝着曲率中心移动，然而，对于热压试样，特别是那些在冷却过程中有相变而产生体积变化的陶瓷，存在于其中的应变能极大。热压 PLZT陶瓷就属于这一类。当将它在高温下进行热处理时，晶

界移动受到降低表面能和释放应变能两种驱动力的影响,这就使一部分晶界背向曲率中心移动,但在第二次进行热处理时,这种现象减少了。

3. 从图像分析可以看到,同一热压样品经过一次、二次和三次热处理(最长时间达168h)后,晶粒的平均长度从 $5.35\mu\text{m}$ 增大到 $31.1\mu\text{m}$,平均宽度从 $3.66\mu\text{m}$ 增大到 $23.0\mu\text{m}$, S_V 则从0.658减小到0.103,然而代表形貌的结构参数圆度 F 保持不变,约为1.4。这说明在此工艺条件下的晶粒生长保持了它们的结晶习性。晶粒与略带长形的立方体等效(按计算,二维的正方形, $F=1.3$)。以上这些变化肯定会给陶瓷的电性和光性带来影响,目前我们正在进行这方面的工作。

4. 从图2和图3能够看到,经过热处理的陶瓷的晶粒长大了,同时颗粒的尺寸分布也变宽了。如果以累计曲线的第一和第三、四分位线的颗粒来衡量其分布扩展的程度时,则四个试样的差值 $\Delta\mu$ 分别约为3,14,18和20。看来随着保温时间延长,此值渐趋饱和。但太宽的晶粒尺寸分布对某些应用并不理想,这还得从生长工艺上予以改进。

5. 对于晶界移动和晶粒长大的规律,不仅应该从单颗晶粒个体来考虑,而且应该采用统计的方法,根据数千个个体组成的晶粒群体的发育来研究它们的生长。这种更加合理的方法已经有人用过了^[7],因为某些晶粒的长大,必需消耗掉同体积的那些细小晶粒。图3(d)的曲线左端正说明本文的生长方法和工艺,已经使原来的 $5.5\mu\text{m}$ 晶粒在最后热处理阶段已所剩无几了。

致谢:本工作的8/65/35 PLZT热压试样由郑鑫森同志提供,唐源森、倪焕尧同志在样品制备过程中提供了很多帮助,特此致谢。

参 考 文 献

- [1] Underwood, E. E.: *Microscope*, 22, 1974:69
- [2] Jesse, A.: *ibid.*, 22, 1974:89
- [3] Ondracek, G. and Thummlu, F.: *Radex Rundschau*, (1/2) 1980:76
- [4] Huang, D. N. and Yin, Z. W.: "Dielectric, Ferroelectric and Electrooptical Properties of PLZT Ceramics", to be pub.
- [5] Yin, Z. W. et al.: *Proc. First China-U.S. Seminar on Microstructure and Properties of Ceramic Materials*, Beijing, Science Press, 1985:410
- [6] Chu, B. H. et al.: *ibid.*, 1985:192
- [7] Carpay, F. M. A. and Kurtz, S. K.: "Processing of Crystalline Ceramics", *Materials Science Research*, vol.11, Ed. by H. Palmour III, R. F. Davis, and T. M. Hare, N. Y., Plenum Press, 1978:217

Studies on Stereology of the Grain Growth in PLZT Transparent Ferroelectric Ceramics

Yin Zhiwen, Huang Danni, Chen Xiantong, Chen Xianqiu and Zhou Xuelin
(Shanghai Institute of Ceramics, Academia Sinica)

Abstract

In present work, hot-pressed 8/65/35 PLZT ceramic slug was used as original material. Through different process of heat treatment, ceramic specimens with different grain size distribution were prepared. After thermal etching, image analyses and quantitative stereology were studied for these specimens by means of a Quantimet 900 Micro-Image Automatic Quantitative Analyser. Various valuable results were obtained.

Keywords: PLZT ceramic; Grain Growth; Stereology