

사 공 건 동아대학교 전기공학과 교수
정 형 환 동아대학교 전기공학과 교수
김 점 호* 동아대학교 전기공학과 대학원

1. 서 론

PZT(Lead Titanate Zirconate)는 수중 청음기(Hydrophone) 응용을 위한 Transducer 재료로 널리 사용되고 있지만, 수중 압전정수 d_{31} 와 전압정수 g_{31} 의 계수가 작으므로 불리한 점이 많다.

이러한 PZT 의 단점을 보완하기 위하여 PZT 에 Polymer 를 첨가한 PZT-Polymer Composite 가 제작, 실용화 되고 있다.¹⁾

그리고 Composite 의 이론적 해석을 위한 모델은 Newnham,²⁾ Furukawa,³⁾ Yamada⁴⁾ 그리고 Banno⁵⁾ 등에 의해 여러가지 모델이 제안 되었다.

본 연구에서는 PZT 에 Polymer로서 Eccogel을 사용하여 0-3 Composite를 제작하고, Composite의 비유전율(K_{33}) 및 유전정접($\tan\delta$)을 측정 하였다.

또 Composite의 이론적 해석을 위해 입방모델을 설정하여 측정치와 비교 하였다.

2. 본 론

2-1. 이론적 고찰

0-3 connectivity 를 갖는 PZT(phase 1) 와 Polymer(phase 2)를 도식화하면 그림 1.과 같다.

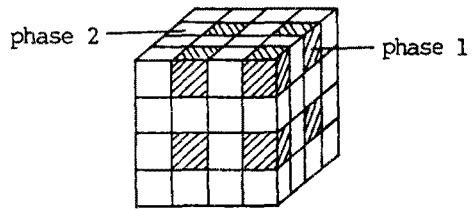


그림 1. 0-3 Composite system

한편 Composite의 접속은 직렬과 병렬로 나뉠 수 있다.⁶⁾ (그림 2.)

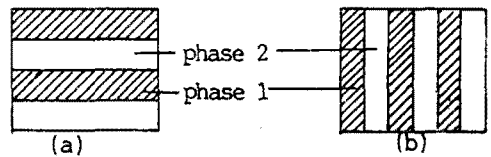


그림 2. 2상 Composite system의 접속

- (a) 직렬 접속
- (b) 병렬 접속

그림 2. 에서 K_{33} 의 값은 다음 식으로 구해 진다.

(a) 직렬 접속

$$\frac{1}{K_{33}} = \frac{1_v}{K_{33}} + \frac{2_v}{2K_{33}} \quad (1)$$

- (b) 병렬 접속

$$\frac{1}{K_{33}} = 1_v \cdot 1_{K_{33}} + 2_v \cdot 2_{K_{33}} \quad (2)$$

본 연구에서는 0-3 Composite 의 해석을 위해 입방모델(Cube Model)을 설정 하였으며 그림 3.은 단위 입방 포(unit cube cell) 와 그 등가회로를 나타내고 있다.

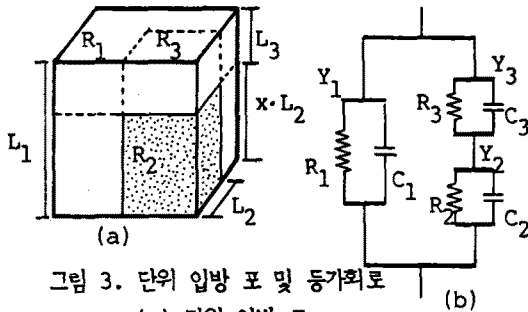


그림 3. 단위 입방 포 및 등가회로
(a) 단위 입방 포
(b) 등가회로

그림 3.(a)에서 Volume fraction 의 n값은

$$n < x < n^{-1/2} \quad (3)$$

이며, Polymer matrix 및 PZT particle 의 비유전율 및 도전율은 K_1, σ_1 와 K_2, σ_2 이다.

또한 그림 3.(b)의 등가회로에서

$$Y = Y_1 + \frac{Y_2 \cdot Y_3}{Y_2 + Y_3} = G + jB \quad (4)$$

$$C = \frac{I_m}{\omega} \quad (5)$$

이 되고, $\tan \delta$ 는 식(4)에서

$$\tan \delta = B/G \quad (6)$$

에서 구해지고, 주파수에 따른 K_{33} 의 값은 식(5)에서 구해진다.

2-2. 실험

(1) 시편 제작

시판용 PZT Powder(PZT-501A) 와 Polymer 인 Eccogel(Eccogel series #1365-0)을 70:30 의 Volume % 로 잘 섞은 다음, 7500 psi 의 압력하에서

1 CmX1 CmX0.1 Cm 의 크기로 시편을 만들고, 70°C 에서 8시간 동안 경화(Cured) 시켰다.⁷⁾

이들 시편의 양면에 silver paste 전극을 부착 시켜 silicon oil 속에서 120°C, 35 KV/Cm 의 조건으로 30분 동안 Poling 시켰다.^{8),9)}

Poling 후 24시간 이상 Aging 시켰다.

(2) 측정

Composite의 도전율은 Poling 시키기 전에 Keithley Electrometer (Model 606) 로 측정 하였으며, K_{33} 및 $\tan \delta$ 는 LCR Meter(HP 4774 A, B) 를 사용하여 주파수를 변화 시키면서 측정 하였다.

2-3. 결과 및 고찰

그림 4.는 PZT 와 Eccogel 의 Volume fraction 에 따른 직, 병렬 결합의 K_{33} 값을 입방모델 에서 계산한 값과 실제 측정한 값을 비교한 것이다.

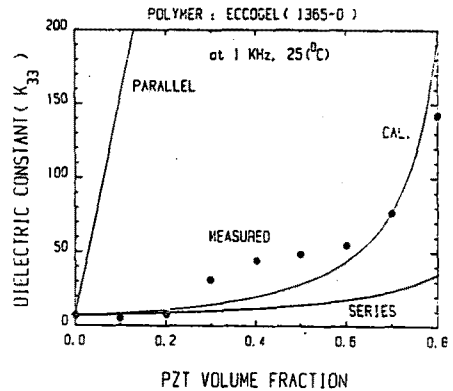


그림 4. PZT-Eccogel의 Vol.Fraction에 따른 이론치와 실측치의 비교

그림 5.,6. 은 PZT 와 Eccogel 이 70:30 의 Volume fraction, 25°C, $x = 1.06$ 에서의 주파 수의 변화에 따른 K_{33} 와 $\tan \delta$ 의 이론치와 실측치를 나타 내고 있다.

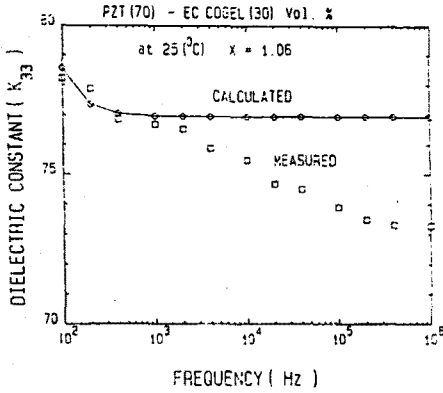


그림 5. 주파수의 변화에 따른 K_{33} 의 이론치와 실측치의 비교

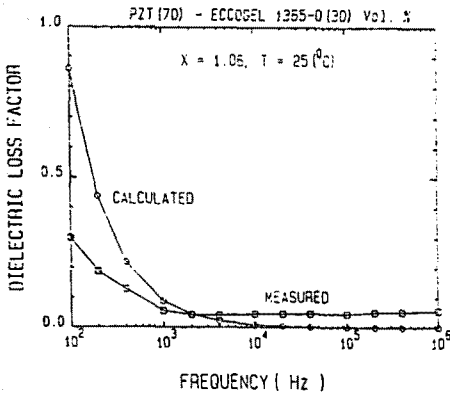


그림 6. 주파수의 변화에 따른 $\tan\delta$ 의 이론치와 실측치의 비교

그림 7.은 온도와 주파수의 변화에 따른 K_{33} 값의 변화를 나타 낸다. 0°C 부근에서 K_{33} 값이 작은 것은 쌍극자 배향이 방해 를 받기 때문이며, 온도가 증가 할 수록 Polymer 인 Eccogel 의 점성(Viscosity)이 증가하여 쌍극자 배향이 쉽게 되어 K_{33} 값이 온도의 증가와 더불어 증가하는 것으로 생각 된다.

그리고 주파수가 증가 할 수록 K_{33} 값이 감소하는 것은 주파수가 높을 수록 전계의 교번이 빨라지므로 쌍극자 배향이 이에 응하지 못하기 때문에 거의 직선으로

나타난 것으로 보여 진다.

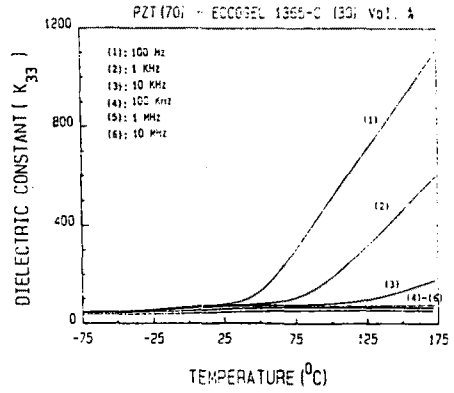


그림 7. 온도와 주파수의 변화에 따른 K_{33} 의 변화

그림 8. 은 온도와 주파수의 변화에 따른 $\tan\delta$ 의 변화를 나타 낸다.

온도가 증가 할 수록 $\tan\delta$ 의 최대값이 높은 주파수 쪽으로 이동함을 알 수 있으며,¹⁰⁾ 쌍극자 배향과 자유 전하의 이동이 쉬워지므로 이것이 $\tan\delta$ 의 값이 증가 하는 주요한 원인으로 생각 된다.

온도가 더욱 증가하면 열교란과 Polymer의 재결정¹¹⁾으로 손실이 다시 감소하는 것으로 생각 된다.

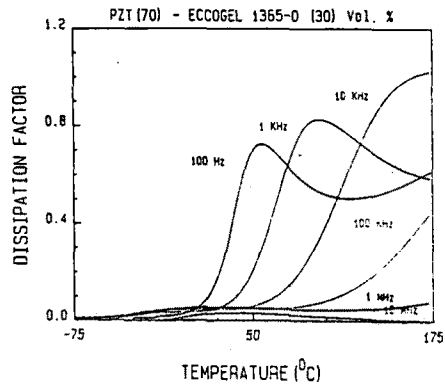


그림 8. 온도와 주파수의 변화에 따른 $\tan\delta$ 의 변화

3. 결 론

- (1) 설정한 입방모델에서 25°C, $x = 1.06$ 일때의 K_{33} 와 $\tan\delta$ 의 값이 이론치와 실측치가 비교적 잘 일치 하였다.
- (2) Composite 의 온도와 주파수 의존성은 Debye 의 이론식¹²⁾ 과 잘 일치 하였다.

4. 참 고 문 헌

- (1) T.R.Shrout, W.A.Schulze and J.V.Biggers, Simplified Fabrication of PZT/Polymer Composites, Mat.Res.Bull., Vol.14, p1553, 1979
- (2) R.E.Newnham, D.P.Skinner and L.E.Cross, Connectivity and Piezoelectric/Pyroelectric Composites, Mat.Res.Bull., Vol.13, P525, 1978
- (3) T.Furukawa, K.Ishida and E.Fukada, Piezoelectric Properties in the Composite System of Polymers and PZT Ceramics, J.Appl.Phys., Vol.50, No.7, p4904, 1979
- (4) T.Yamada, T.Ueda and T.Kitayama, Piezoelectricity of a High-Content Lead Zirconate Titanate/Polymer Composite, J.Appl.Phys., Vol.53, No.6, p4328, 1982
- (5) H.Banno, Recent Developments of Piezoelectric Ceramic Products and Composites of Synthetic Rubber and Piezoelectric Ceramic Particles, Ferroelectrics, Vol.50, p3, 1983
- (6) D.P.Skinner, R.E.Newnham and L.E.Cross, Flexible Composite Transducers, Mat.Res. Bull., Vol.13, p599, 1978
- (7) G.Sa-Gong, A.Safari, S.J.Jang and R.E.Newnham, Poling Flexible Piezoelectric Composite, Ferroelectrics Lett., Vol.5, p131, 1986
- (8) R.E.Newnham, A.Safari, G.Sa-Gong and J.Giniewicz, Flexible Composite Piezoelectric Sensors, Proc.of IEEE Ultras. Symp., p501, 1986
- (9) H.Banno and S.Saito, Piezoelectric and Dielectric and Dielectric Properties of Synthetic Rubbers and $PbTiO_3$ and PZT, Japan.J.Appl.Phys., Vol.22, No.2, p67, 1983
- (10) R.Baltnikas, Dielectric Loss in Solids, ASTM Tech.Publ., 1982, Chap.1
- (11) P.Cotterill and P.R.Mould, Recrystallization and Grain Growth in Metals, Wiley, 1976, Chap.4, 5
- (12) 일본 전기학회, 유전체 현상론(4판), 일본 전기학회, 1977, pp. 120-143