

각종 Matrix를 이용한 Ceramic/Polymer 3-3 Composites의 제작 및 특성

박 정학*

사공 건 (동아대학교 전기공학과)

Preparation and Property of Ceramic/Polymer 3-3 Composites with Matrices

J. H. Park*

G. Sa-Gong(Dong-A Univ., Electrical Eng)

(Abstract)

In this study, piezoceramics/polymer composites with 3-3 connectivity were made by BURPS(Burnout Plastic Sphere) technique with PZT ceramics and PVA sphere. And physical and dielectric properties dependent on the PVA wt.% were investigated. The density of porous piezoceramic and piezoceramic/polymer composites were decreased almost linearly with increasing the PVA wt.%.

1. 서론

지금까지 PZT계 압전 세라믹이 압전성 및 전기 기계 결합 특성이 우수하여 압전 트랜스듀서 재료로 광범위하게 사용되고 있으나, 단일상 재료가 갖는 한계성으로 응용 및 기능적인 측면에서 어려움이 있다. 압전 세라믹과 고분자가 단일상 재료로 다방면에 사용되기 위해서, 음향 임피던스 정합(Matching) 및 성능지표(figure of merit)를 극대화하기 위해 밀도가 낮고 유연성을 가져야 한다. 이에 부응하기 위하여 압전 Filler相과 Polymer매질相을 복합화한 각종 복합 壓電體(Ceramics/Polymer Composites)가 개발되고 있다.^{1),2)}

본 연구에서는 相 接觸圖(Phase Connectivity)³⁾의 개념을 도입하여 PZT 세라믹상과 고분자 매질상이 3차원적으로 상호 연결된 3-3형의 접속도를 갖는 복합 압전체를 제작하였다. 특히 Polymer Matrix의 종류를 달리하여 복합 압전체를 제조한 후 그들에 대한 각종 특성을 측정하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서 세라믹 Filler로는 Flux법에 의해 제조된 PZT 분말⁴⁾을 사용하였다. 다공질 세라믹을 제조하기 위해

Plastic Sphere는 PVA를 사용하여 압전 세라믹과 Sphere가 이중량비를 적정비로 하여 건식 혼합한 다음 등압 성형하였다. 그 후 20(°C/hr)의 승온률로 승온, 500(°C)에서 Plastic Sphere를 휘발시킨 다음 1,200(°C)에서 1시간 소결하여 다공질 시편을 얻었다.

3-3형 복합 압전체를 제작하기 위한 제조공정은 그림 1과 같으며, 고분자 매질 재료로 Epoxy 수지계의 Spurr Epoxy와 Eccogel 1365-80을 사용하였다. 제작된 복합 압전체의 양면에 상온 건조용 은전극을 도포하고 鍍전극의 유기 용매를 완전히 휘발시키기 위하여 60(°C)에서 30분동안 열처리를 행하였다. 분극은 70(°C)의 실리콘 기름 중에서 30-35 (kV/cm)의 전계를 10분 인가함으로써 분극 처리하였으며, 24시간 이상 Aging한 후 각종 특성을 측정하였다. 유전율은 LF Impedance Analyzer(HP4192A)를 사용하여 1(KHz)의 주파수에서 측정하였다.

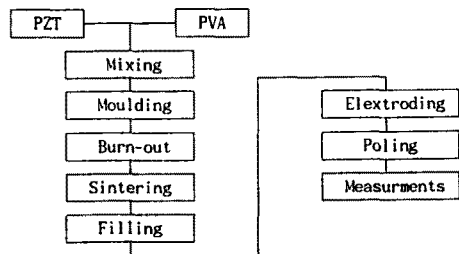


그림 1. 복합 압전체의 제조 공정도

3. 실험 결과

그림 2은 다공질 세라믹 시편을 제작하기 위하여 혼합한 Plastic Sphere의 휘발 온도를 결정하기 위한 PVA의 TG분석 결과이다. TG곡선의 변화에서 250(°C)부근에서 PVA가 휘발되기 시작하여 450(°C)부근에서 휘발이 거의 완료됨을 볼 수 있다.

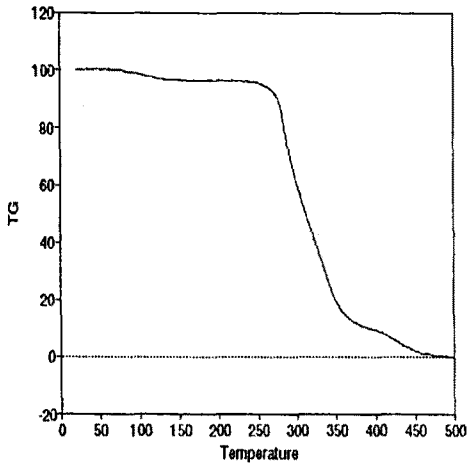
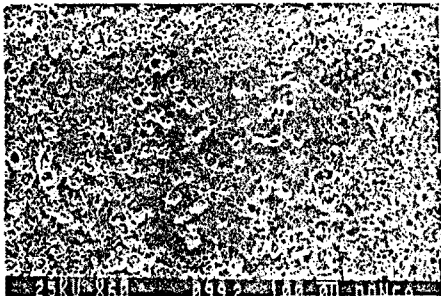


그림 2. PVA의 TG분석

그림 3(A)(B)는 다공질 PZT시편의 표면을 관찰한 전자현미경 사진으로서 소결체내에 PVA Sphere의 열분해로 생긴 기공이 균일하게 분포되어 있으며, 3차원적으로 양호하게 접속되어 있음을 알 수 있다.



(A)



(B)

그림 3. 다공질 세라믹의 미세구조

그림 4는 다공질 세라믹의 기공율 및 밀도와 고분자의 종류별 복합 압전체의 밀도를 나타낸 것이다. 다공질 세라믹의 밀도를 KSL3114 규격으로 측정된 후 기공율은 다음의 식(1)을 이용하여 구하였다.

$$\rho^* = \rho^*(p) = \rho(1-p) \quad (1)$$

여기서 ρ^* 는 다공질 세라믹의 측정 밀도, ρ 는 PZT소결체의 밀도이며, p 는 기공율을 나타낸다.

복합 압전체의 밀도($\bar{\rho}$)는 세라믹 Filler상과 Polymer Matrix상의 밀도를 각각 ρ_1, ρ_2 라 하고 각 상의 체적비(v_1, v_2)를 사용하여 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\bar{\rho} = \rho_1 v_1 + \rho_2 v_2 \quad (2)$$

PZT의 측정 밀도는 7.5(gm/cc)이었으며, Data File에서 얻은 Spurr epoxy 및 Eccogel 1365-80의 밀도 1.1 및 1.02(gm/cc)를 대입하여 계산한 결과는 그림 4에서와 나타낸 바와 같이 PVA의 wt.%의 증가에 따라 12(wt.%)까지는 밀도가 감소하다가 15(wt.%)에서 증가하고 있는 데 이는 다공질 세라믹의 제조시 체적의 감소에 기인된 것으로 사료되나 이에 대한 기구는 계속 연구가 되어야 할 것으로 생각된다.

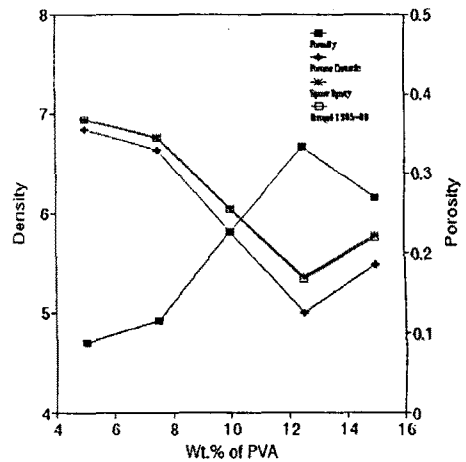


그림 4. 다공성 세라믹의 기공율 및 밀도와 고분자의 종류별 복합 압전체의 밀도

그림 5는 분극한 시편의 PVA wt.%의 변화에 대해 Polymer 매질의 종류에 따른 유전율을 나타낸 것으로, Polymer 매질이 Spurr Epoxy 및 Eccogel 1365-80 모두가 PVA의 wt.%가 증가함에 따라 유전율은 선형적으로 감소하였다. 반면 PZT/Eccogel 1365-80의 유전율이 PVA가 12.5(wt.%)에서 약간 증가하는 것은 다공질 세라믹 제조시 체적의 감소 및 고분자의 점성의 차이에 의한 영향으로 생각된다.

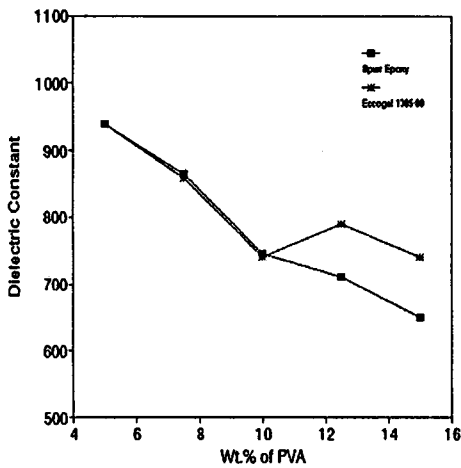


그림 5. 복합 압전체의 유전율

4. 결론

트랜스듀서용 압전 세라믹/고분자 3-3형 복합 압전체를 제작하고 그들의 특성을 연구하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. PVA Sphere는 250(°C) 전후에서 휘발되기 시작하여 450(°C)부근에서 휘발이 거의 완료되었다.
2. 혼합시의 PVA Sphere의 wt.%가 증가할 수록 소결된 시편의 밀도는 점차 감소하였다.
3. 혼합시의 PVA Sphere의 wt.%가 증가할 수록 유전율은 감소하였으며 15(wt.%)에서 약간 증가하였다.

참고문헌

1. D.P. Skinner, R.E. Newnham & L.E. Cross, Mat. Res. Bull., 13, p.599(1978)
2. T.R. Shrout, W.A. Schulze & J.V. Biggers, Mat. Res. Bull., 14, p.1553(1979)
3. R.E. Newnham, D.P. Skinner & L.E. Cross: Connectivity and Piezoelectric-Pyroelectric Composite, Mat. Res. Bull., 13, p.525(1978)
4. 이 수호, 박 준범, 사공 건 : Flux에 의해 제조된 압전 세라믹(PZT)의 유전 및 압전 특성, 대한전기학회 하계학술대회 논문집, pp.721-723 (1992).