

수정진동자의 임피던스 분석을 이용한 LB막의 전기적 특성

진철남^{*}, 박재철^{**}, 권영수^{*}
^{*}동아대 전기공학과, ^{**}영진전문대 전자과

Electric properties of LB Films Using Impedance Analysis of Quartz Crystal

Chel-Nam Jin^{*}, Jae-Chul Park^{**}, Young-Soo Kwon^{*}
^{*}Dept. of Electrical Eng., Dong-A University, ^{**}Dept. of Electronic, Yeungjin Junior College

Abstract - Quartz crystal in contact with viscoelastic medium is described directly in terms of the electrical equivalent circuit of the system. Stearic acid is used as viscoelastic medium and deposited on the surface of quartz crystal using the Langmuir-Blodgett(LB) method. Impedance properties of quartz crystal coated with LB films which were investigated and the possibility of applying the technique to chemical sensing introduced.

1. 서 론

최근에 수정진동자 표면에 점탄성을 가지는 유기박막이 누적될 경우에 Sauerbrey식의 수정이 제안되어지고 있으며[1], 또한 수정진동자를 해석하기 위한 새로운 분석변수를 발견하기 위한 연구가 활발하게 진행되고 있다 [2]. 수정진동자 표면의 질량변화는 수정진동자의 공진 주파수의 변화를 유발하며, 이러한 주파수의 변화는 표면의 질량변화에 반비례한다. 수정진동자에 대한 질량의 변화뿐만 아니라 표면의 화학적, 물리적 성질을 더 상세히 이해하기 위하여 수정진동자에 대한 전기·기계적 등가회로 모델에 근거한 시스템의 공진특성에 대한 연구가 중요하다[3].

본 연구는 LB막을 누적인 수정진동자를 Impedance Analyzer를 이용하여 수정진동자의 표면에 누적층수가 다른 LB막에 대해서 전기적 파라미터의 변화를 어드미턴스 다이아그램(admittance diagram)[4], Z-θ 플롯(Z-θ plot)[5], 그리고 인덕턴스 L₁과 커패시턴스 C₁의 변화를 이용하여 LB막의 누적특성을 해석하였다.

2. 이론 및 실험방법

수정진동자의 기계적 모델과 전기적 등가회로는 일반적으로 그림 1과 같다. 그림 1에서 커패시턴스 C₁은 수정진동자의 기계적인 탄성을 나타내고, 인덕턴스 L₁은 수정진동자의 전체질량을 나타내며, 저항 R₁은 주위의 매질에서 소비되는 기계적 에너지 손실에 해당되며, 병렬 커패시턴스 C₀는 전극의 정전용량을 나타낸다.

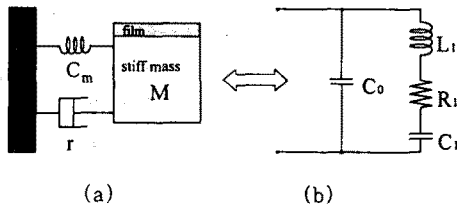


그림 1. 수정진동자의 기계적 모델 (a)과 전기적 등가회로 (b).

그림 1(b)의 전기적 등가회로에서 수정진동자의 어드미턴스는 식 (1)과 같이 나타낼 수 있다. 그리고, 식 (1)을 풀이하여 정리하면, 어드미턴스는 실수부인 콘덕턴스 G와 허수부인 서셉턴스 B로 구분할 수 있다. 식 (2)는 콘덕턴스 G를 나타내며, 식 (3)은 서셉턴스 B를 나타낸다.

$$Y = G + jB = \frac{1}{R_1 + j\omega L_1 + \frac{1}{j\omega C_1}} + j\omega C_0 \quad (1)$$

$$G = \frac{R_1}{R_1^2 + (\omega L_1 - \frac{1}{\omega C_1})^2} \quad (2)$$

$$B = \omega C_0 - \frac{(\omega L_1 - \frac{1}{\omega C_1})}{R_1^2 + (\omega L_1 - \frac{1}{\omega C_1})^2} \quad (3)$$

직렬회로에서의 공진조건인 식 (4)를 식(2)와 (3)에 대입하면, 식 (5)와 (6)이 된다.

$$f_s = \frac{1}{2\pi\sqrt{L_1 C_1}} \quad (4)$$

$$G - \frac{1}{2R_1} = \frac{1}{2R_1} \quad (5)$$

$$B - \omega C_0 = 0 \quad (6)$$

그림 1의 등가회로에 대한 콘덕턴스 G와 서셉턴스 B의 상호관계식은 식 (7)과 같다.

$$(G - \frac{1}{2R_1})^2 + (B - \omega C_0)^2 = (\frac{1}{2R_1})^2 \quad (7)$$

식 (7)은 중심이 (1/2R₁, ωC₀)이고, 반경이 1/2R₁인 원을 나타내고 있다. 이것을 어드미턴스 다이아그램(admittance diagram)이라고 한다. 그리고, 식 (7)에서 원의 직경은 직렬 공진에서의 저항의 역수에 해당된다. 수정진동자의 표면에 LB막을 누적했을 때, 어드미턴스 다이아그램의 직렬 공진에서의 저항 R₁과 주파수 f_s의 변화 때문에 발생하는 원의 직경의 변화를 통해 LB막의 누적특성을 조사하였다.

한편, 주파수의 변화에 대한 임피던스와 임피던스의 저항성분과 리액턴스 성분이 이루는 위상각의 변화를 나타낸 것이 Z-θ 플롯이다. 임피던스 Z와 위상각 θ는 전기적 등가회로의 어드미턴스 값에 역수를 취한 것으로 식 (8), (9)로 표시될 수 있으며, LB막의 누적특성을 평가하기 위해 수정진동자 표면에 LB막의 누적층수를 다르게 할 경우, 병렬 공진일 때의 주파수 f_s와 그 때의 임피던스 Z₁의 변화를 나타내는 Z-θ 플롯을 이용하였다.

$$Z = R + jX = \frac{1}{G + jB}$$

$$= \frac{G}{G^2 + B^2} + j \frac{-B}{G^2 + B^2} \quad (8)$$

$$\theta = \tan^{-1}\left(\frac{X}{R}\right) \quad (9)$$

본 논문에서는 수정진동자의 전기적 등가회로에서 주파수의 변화에 대한 직·병렬 임피던스의 값의 변화를 수식적으로 정의하고자 하였다. 식 (10)과 (11)은 각각 직렬 공진에서의 임피던스와 위상각 θ 를 나타낸다.

$$|Z_s| = \frac{R_1}{\sqrt{1 + (\omega C_0 R_1)^2}} \quad (10)$$

$$\theta = \tan^{-1}(-\omega C_0 R_1) \quad (11)$$

식 (11)에서 분모항의 $\omega C_0 R_1 \approx 0$ 이기 때문에, 식 (12)와 같이 간단하게 된다.

$$\therefore |Z_s| = R_1, \quad \theta = 0^\circ \quad (12)$$

또한, 병렬 공진 임피던스 Z_p 와 위상각 θ 를 나타낸 것이 식 (13)이다.

$$|Z_p| = \frac{1}{(\omega C_0)^2 R_1}, \quad \theta = 0^\circ \quad (13)$$

직·병렬 임피던스와 위상각 θ 에 대한 식 (12)와 (13)에서 볼 수 있듯이, 직·병렬 공진일 때의 위상각은 0 이고, 직렬 공진에서의 임피던스 Z_s 의 값이 증가할수록 병렬 임피던스 Z_p 의 값이 감소함을 알 수 있다.

본 실험에서는 9 [MHz]의 AT-cut 수정진동자의 표면에 Langmuir-Blodgett(LB)법을 이용하여 지방산계 물질인 stearic acid를 수정진동자의 표면에 층수별(bare, 4, 8, 12, 16, 20)로 양호하게 누적하였다. 또한, Impedance Analyzer(HP4192A)를 이용하여 공진 주파수의 부근에서 10[Hz] 단위로 주파수를 변화하면서 수정진동자의 전기적 파라미터의 값들을 측정하여 어드미턴스 다이어그램, Z- θ 플롯, 그리고 인덕턴스 L_1 과 커패시턴스 C_1 의 변화를 측정하였다.

3. 결과 및 검토

그림 2는 Impedance analyzer로 LB막의 누적층수를 다르게 하였을 경우의 수정진동자의 콘덕턴스 G와 서셉턴스 B를 측정하여 나타낸 어드미턴스 다이어그램이다. 그림 2에서 볼 수 있듯이, 누적층수가 증가할수록 원의 반경이 감소함을 알 수 있다. 원의 반경이 감소한다는 것은 식 (7)에서와 같이 직렬 공진에서의 저항의 증가를 의미하는 것이다. 이것을 확인하기 위해 같은 조건에서 Impedance analyzer를 이용하여 직렬 공진주파수의 변화(Δf_s)와 그 때의 임피던스의 변화(ΔZ_s)를 조사하여 나타낸 것이 그림 3이다.

그림 3에서 볼 수 있듯이, 누적층수가 증가할수록 직렬 공진주파수 f_s 는 선형적으로 감소하여 질량과 주파수의 변화와의 상관관계를 나타내는 Sauerbrey의 이론식을 만족하였다(6). 또한, 그 때의 임피던스 Z_s 는 증가를 하고 있다. 이것은 그림 2의 어드미턴스 다이어그램에서의 누적층수가 증가할수록 원의 반경이 감소하는 것과 일치하는 결과이며, 누적층수가 증가할수록 누적물질의 점성과 밀도가 변화하여 저항 R_1 이 변화하는 상관관계와 거의 일치하는 결과이다(7). 따라서, Stearic acid LB막이 수정진동자의 표면에 누적되었을 때, 누적층수가 증가함에 따라 누적물질의 점성과 밀도가 증

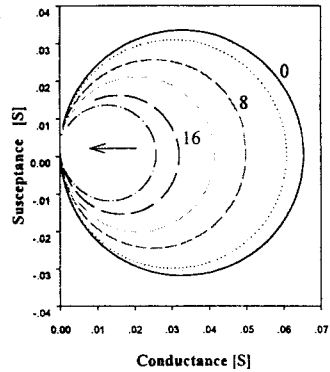


그림 2. 누적층수에 대한 어드미턴스 다이어그램.

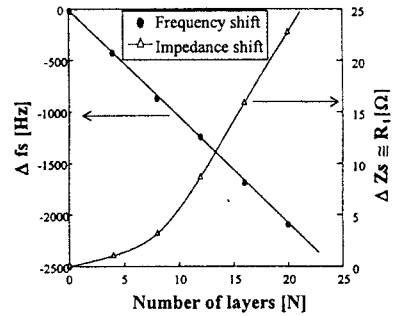


그림 3. 누적층수에 대한 직렬 공진주파수(f_s)와 임피던스(Z_s)의 변화.

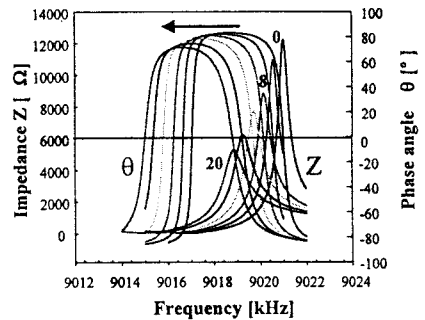


그림 4. 누적층수에 대한 Z- θ 플롯.

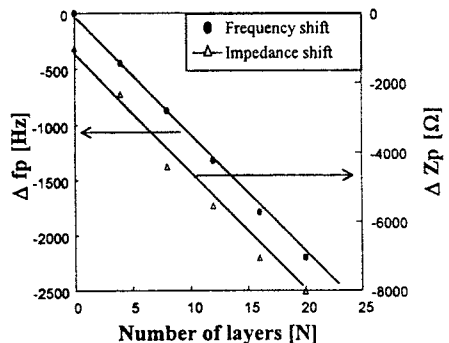


그림 5. 누적층수에 대한 병렬 공진주파수(f_p)와 임피던스(Z_p)의 변화.

가함을 알 수 있고, Stearic acid LB막이 점탄성막인 것을 확인할 수 있었다.

LB막의 누적 특성을 조사하기 위해 전기적 해석방법으로서 주파수 변화에 대한 LB막의 누적층수를 다르게 하였을 경우 임피던스 Z 와 임피던스의 저항성분과 리액턴스 성분이 이루는 위상각 θ 의 변화를 그림 4에 나타내었다.

그림 4의 $Z-\theta$ 플롯을 이용하여 누적층수가 증가할 때의 병렬 공진주파수 f_p 와 그 때의 임피던스 Z_p 의 변화를 확인하였다. 즉, 누적층수가 증가할수록 병렬 공진주파수 f_p 는 누적된 LB막의 질량에 반비례하여 변화하였다. 이 주파수의 감소는 직렬 공진주파수 f_s 의 변화와 거의 일치하였으며, Sauerbrey의 공식을 만족하였다. 또한, 병렬 공진임피던스 Z_p 는 누적층수가 증가할수록 감소하였다. 즉, 누적층수가 증가할수록 LB막의 밀도와 점성이 증가하기 때문에 저항 R_1 이 증가한다. 따라서, 식 (13)에 의해 병렬 공진임피던스 Z_p 는 누적층수가 증가할수록 감소하였다. $Z-\theta$ 플롯에 의한 누적 특성 결과를 확인하기 위해 동일한 조건에서 누적 층수에 대해서 수정진동자의 병렬 공진주파수 f_p 와 그 때의 임피던스 Z_p 의 변화를 나타낸 것이 그림 5이다. 그림 5에서 누적층수가 증가할수록 병렬 공진주파수 f_p 와 그 때의 임피던스 Z_p 는 감소함을 확인하였다.

그림 6은 일정한 주파수(9018.00[kHz])에서의 LB막의 누적 층수에 대한 인덕턴스 L_1 과 커패시턴스 C_1 의 변화를 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이, 누적층수가 증가할수록 수정진동자의 전체질량이 증가하기 때문에, 인덕턴스 L_1 은 비선형적으로 증가하였고, 커패시턴스 C_1 은 비선형적으로 감소하였다.

그림 7은 그림 6의 일정한 주파수(9018.00[kHz])에서 누적층수를 증가하였을 때, 인덕턴스 L_1 과 커패시턴스 C_1 의 측정값을 식 (4)에 의해 역으로 계산된 주파수의 변화이다. 결과로서, 누적층수에 상관없이 주파수가 거의 9018.00[kHz]를 나타내고 있다.

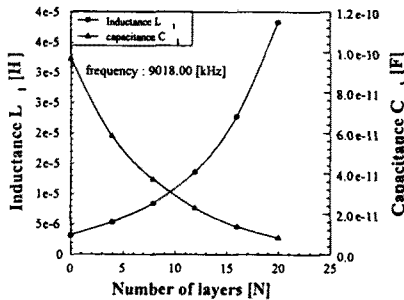


그림 6. 누적층수에 대한 인덕턴스 L_1 과 커패시턴스 C_1 의 변화.

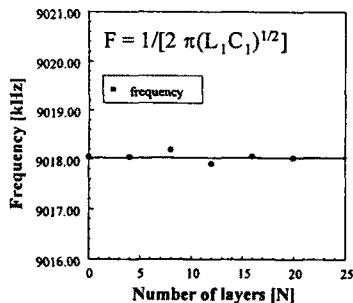


그림 7. 누적층수에 대한 계산된 인덕턴스 L_1 과 커패시턴스 C_1 의 변화.

4. 결 론

본 연구는 지방산 LB막이 누적된 수정진동자의 기본 물성을 Impedance analyzer를 이용하여 측정하였다. LB막의 누적층수를 변화하였을 때, 수정진동자의 등가 회로의 파라미터의 값의 변화를 이용하여 LB막의 누적 특성을 평가하였다.

어드미턴스 다이아그램에 의해, 수정진동자의 표면에 LB막의 누적층수가 증가할수록 저항 R_1 의 증가 때문에 원의 반경이 감소하였고, 직렬 공진주파수 f_s 는 Sauerbrey의 이론식과 거의 일치하는 결과로서 선형적으로 감소하였다.

$Z-\theta$ 플롯에 의해, LB막의 누적층수가 증가할수록 직렬 공진주파수와 경우와 같이 수정진동자 표면의 질량 변화 때문에 병렬 공진주파수가 선형적으로 감소하였고, 직렬공진 임피던스의 증가 때문에 병렬 공진임피던스도 감소하였다.

그리고, 일정한 주파수(9018.00[kHz])에서, LB막의 누적층수가 증가할수록 수정진동자의 전체질량의 증가 때문에 인덕턴스 L_1 은 증가하였고, 커패시턴스 C_1 은 감소하였다.

본 연구는 1997년도 한국학술진흥재단 대학부설 연구소 과제 연구비에 의하여 연구되었음.

(참 고 문 헌)

1. V. M. Mecca et al., "Extensions of the quartz crystal microbalance technique". Sensor and Actuators A, Vol.53, pp.371-378, 1996.
2. C. E. Reed, K. Keiji Kanazawa, and J. H. Kaufman, "Physical description of a viscoelastically loaded AT-cut quartz resonator". J. Appl. Phys., Vol.68, pp.1993-2001, 1990.
3. H. Muramatsu, "Computation of Equivalent Circuit Parameters of Quartz Crystal in contact with Liquid and Study of Liquid Properties" Anal. Chem., Vol.60, pp.2142, 1988.
4. D. A. Buttry, M. D. Ward, "Measurement of Interfacial Processes at Electrode Surfaces with the Electrochemical Quartz Crystal Microbalance". Chem., Rev. Vol.92, pp.1355-1379, 1992.
5. David M. Soares, "Impedance Analysis of the Quartz Crystal Microbalance Signal" Ber. Bunsenges. Phys. Chem., Vol.97, pp.475-478, 1993.
6. G. Sauerbrey, "Use of a quartz crystal vibrator from weighing thin films on a microbalance". Z. Phys., Vol.155, pp.206-210, 1959.
7. H. Muramatsu, et al., "Viscosity monitoring with a piezoelectric quartz crystal and its application to determination of endotoxin by gelation of limulus ameocyte lysate" Anal. Chim. Acta, Vol.215, pp.91-98, 1988.