

## PZT-고분자 1-3-0형 복합압전체의 압전 및 음향특성

### Piezoelectric and Acoustic Properties of PZT-Polymer 1-3-0 Type Composite

양 윤석\*, 유 영준\*, 최 현일\*, 손 무현\*\*, 사공 건\*

\*동아대학교 전기공학과 \*\*동명대

Yun-Suk Yang\*, Young-Jun Ryu\*, Hun-Il Choi\*, Mu-Hun Shon\*\*, Geon Sa-Gong\*

\*Dong-A Univ, \*\*Dong Meung Coll.

#### Abstract

In this study, the piezoelectric ceramics PZT powder was synthesized by Wet-Dry combination method. And the flexible 1-3-0 type composites were fabricated with piezoceramic PZT and Eccogel polymer matrix embedded 3rd phase. Dielectric constant of 1-3-0 type composites was lower than that of single phase PZT ceramics. Thickness mode coupling factor  $k_t$  which was comparable with single phase PZT ceramics and mechanical quality factor  $Q_m$  were about 0.65 and 6, respectively. These composites are considered as a good candidates for broad-band type transducer applications. The acoustic impedance of 1-3-0 type composites was lower than that of single phase PZT ceramics. Therefore, these composites would be better used for hydrophone applications.

**Key Words(중요용어)** : Wet-Dry Combination Method(습식-건식법), Composites(복합압전체), Mechanical Quality Factor(기계적품질계수), Acoustic Impedance(음향임피던스)

#### 1. 서 론

PbTiO<sub>3</sub>와 PbZrO<sub>3</sub>의 고용체인 PZT(Lead Zirconate Titanate)는 압전특성이 우수하므로 초음파 진동자, 결합 탐상용 초음파 탐촉자, 점화 장치, 세라믹 필터, 가속도 측정장치, 진동 측정장치 및 압력센서 등에 이용되고 있다. 그런데 단일상 재료가 갖는 한계성으로 압전세라믹이 수중청음기(Hydrophone)에 사용될 경우 PZT계 세라믹은 압전정수  $d_{31}$ ,  $d_{33}$ 는 크지만 그들 부호가 서로 반대이므로 수중 압전 전하정수(Hydrostatic Strain Coefficient)  $d_h(=d_{33}+2d_{31})$ 가 작으며, 높은 유전율로 인하여 수중 압전 전압정수(Hydrostatic Voltage Coefficient)  $g_h$ 가 작아서 성능지수(Figure of Merit)가 작다. 또한 매질이 물인 경우 밀도가 높아 수중음향 임피던스와 정합(matching)이 어렵다. 이들 문제점을 개선하기위해 저밀도, 고탄성계수, 유연성(flexibility)을 가져야 한다<sup>1, 2)</sup>.

따라서 본 연구에서는 습식건식법(Wet-Dry combination method)에 의해 제조된 PZT 분말을 사용하여 PZT 소결체를 제조한 다음<sup>3)</sup> 이를 복합압전체 제조용 충전상(filler phase)으로 사용하고, 고분자 매질상(polymer matrix phase)으로는 에폭시 수지계에 제 3상을 체적비별(5~12.5Vol%)로 복합화하여 R. E. Newnham<sup>4)</sup>이 제안한 상접속도 개념

을 이용하여 1-3-0형 복합 압전체를 제조한 후, 이들 복합압전체<sup>4, 5)</sup>에 대한 유전 및 압전특성을 측정하였다.

#### 2. 실험 방법

##### 2.1 PZT 소결체의 제조

먼저, 압전세라믹 filler로 사용될 PZT소결체를 제

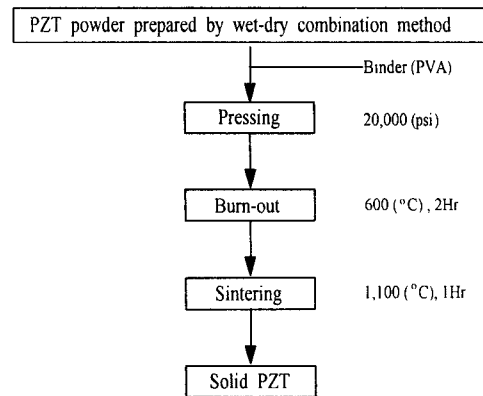


그림 1. PZT 소결체의 제조

Fig 1. Flow chart for sintered PZT

조하기 위해 그림 1과 같이 하소된 분말에 binder로 20(wt.%) PVA(Polyvinyl Alcohol) 수용액을 6.54(wt.%) 첨가하여 80mesh sieve로 선별한 후 20,000(psi)의 압력으로 직경 15(mm)의 disc형태로 시편을 제작한 다음 600(°C)에서 2시간 동안 burn-out을 시키고 300(°C/Hr)의 비율로 1,100(°C)까지 승온시켜 1시간 동안 공기중에서 소결하였다. 소결은 기억용 콘트롤러(SHIMADEN FP21, JAPAN)를 사용하여 고온전기로중에서 가열하였으며, 승온률과 같은 비율로 냉각하여 PZT소결체를 제조하였다. 이때 측정된 PZT의 평균밀도는 약 7.65(g/cm<sup>3</sup>)로 이론밀도 7.9(g/cm<sup>3</sup>)에 비해 조금 낮은 값을 나타내었다.

## 2.2 1-3-0형 복합압전체의 제조

PZT소결체를 filler로 사용하여 1-3-0형 복합압전체를 제조하기 위한 공정도를 그림 2에 나타내었으며, 먼저 소결된 PZT를 dice-filling법을 사용하여<sup>6)</sup> diamond saw로 일정하게 자른 후 Epoxy Resin계(Eccogel 136-45:Emerson & Cuming Inc.)에 제 3상을 체적비에 따라 혼합한 Matrix를 90(°C)에서 2시

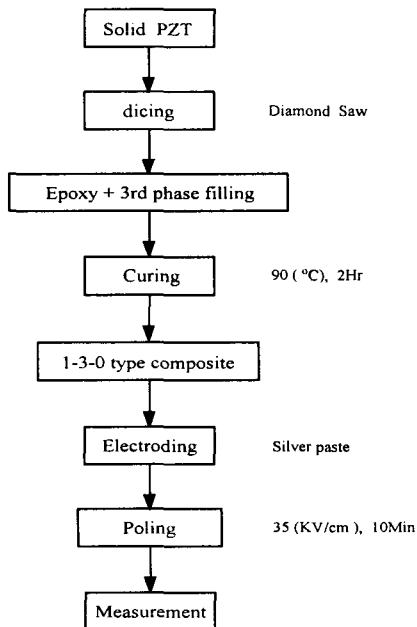


그림 2. 1-3-0형 복합압전체의 제조공정  
Fig 2. Flow chart for 1-3-0 Type Composite

간 동안 경화시킴으로서 유연성이 있는 1-3-0형 복합압전체를 제조하였다. 그리고 다시 diamond saw로서 적정 두께로 자른 후, 표면을 잘 연마하여 초음파 세척기로 세척한 다음 상온용 은전극(silver paste:Dotite #D-550)을 도포하고 80(°C)의 실리콘 기름중에서 35[kV/cm]의 전계를 10분동안 인가하여 분극을 행하였다.

## 3. 특성치의 측정

비유전율은 LF Impedance Analyzer(HP4192A)를 사용하여 측정된 정전용량값으로부터 계산하였으며, 압전정수 d<sub>33</sub>는 Berlincourt Piezo d<sub>33</sub>-meter로 측정하였다. 또한 공진특성은 Network Analyzer(HP4194A)와 X-Y plotter(HP7475A)를 이용하여 구하였다.

## 4. 결과 및 고찰

그림 3은 제 3상의 체적비에 따른 비유전율의 변화를 나타낸 것으로 체적비가 증가함에 따라 약 220~230으로 거의 일정한 값을 나타내고 있는데, 이는 유전율이 낮은 고분자와 제 3상의 조합으로 단일상 PZT의 비유전율(1600)에 비해 상당히 작아졌으며, 이로 인해 성능지수가 향상될 것임을 알 수 있다.

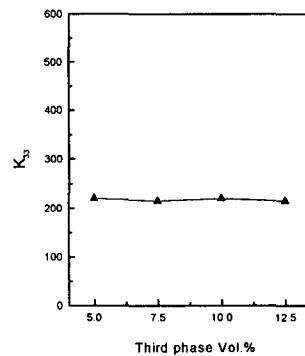


그림 3. 제 3상의 체적비 변화에 따른 비유전율  
Fig. 3. Dielectric constant as a function of 3rd phase Vol.%

그림 4는 제 3상의 체적비에 따른 전기기계결합계수(k<sub>t</sub>)를 나타낸 것으로 이 값은 공진주파수 f<sub>r</sub>과 반공진주파수 f<sub>a</sub>를 측정한 후 이론식에 의해 계산하였다<sup>7)</sup>. 전기기계결합계수는 공진주파수와 반공진주

과수가 일정한 관계로 제 3상의 체적비에 따라 거의 일정하였으며, 단일상( $k_t=0.72$ )에 가까운 0.65정도의 값이 얻어져 전기음향 변환능률이 양호할 것임을 짐작할 수 있다.

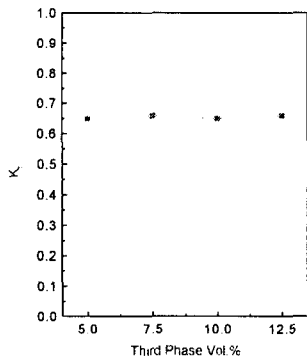


그림 4. 제 3상의 체적비에 따른 결합계수  
Fig 4. Electromechanical coupling factor  $k_t$  as a function of 3rd phase Vol.%

그림 5는 제 3상의 체적비에 따른 기계적 품질계수를 나타내었으며, 그 값이 약 4정도이다. 이는 PZT 단일상의 기계적 품질계수값(80)에 비하여 상당히 작아져 Pulse 상승시간이 빠르고 Pulse-echo 진폭이 상용 트랜스듀서의 값과 비교하여 상당히 크므로 광대역 트랜스듀서, 특히 수중청음기에 응용될 것으로 기대된다.

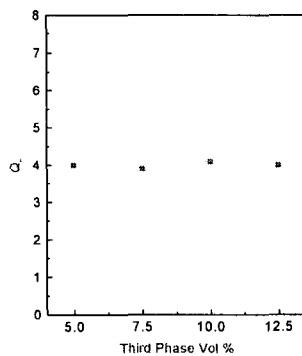


그림 5. 제 3상의 체적비에 따른 품질계수  
Fig 5. Mechanical quality factor  $Q_m$  as a function of 3rd phase Vol.%

그림 6은 1-3-0형 복합압전체의 제 3상의 체적비에 따른 종속도( $V_3^D$ )를 나타낸 것으로 약 2,400~2,500(m/s)정도의 값을 나타내었다. 따라서 단일상

PZT의 종속도(약 4,600m/s)에 비해 상당히 낮출 수 있어 물을 매질로 한 종속도(약 1,500m/s)에 근접시킬 수 있었다.

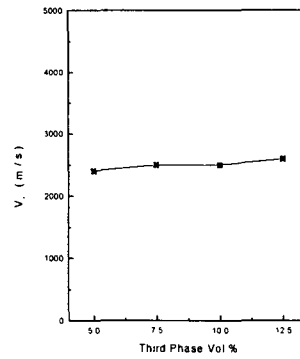


그림 6. 제 3상의 체적비에 따른 종속도  
Fig 6. Longitudinal velocity as a function of 3rd phase Vol.%

그림 7은 1-3-0형 복합압전체에 있어서 제 3상의 체적비에 따른 음향임피던스( $Z_{ac}$ )를 나타낸 것으로 제 3상의 체적비의 증가에 따라 감소되었다. 이는 음향임피던스가 낮은 고분자와 제 3상을 복합화함으로써 음향임피던스의 값이 6.7~5.3(Mrayl)정도인 복합압전체를 얻을 수 있었으며, 이는 PZT 단일상(약 31Mrayl)에 비해 상당히 작은 값으로 물(1.5Mrayl)의 음향임피던스에 보다 접근함으로써 수중청음기로서의 응용가능성이 더욱 높아짐을 알 수 있다.

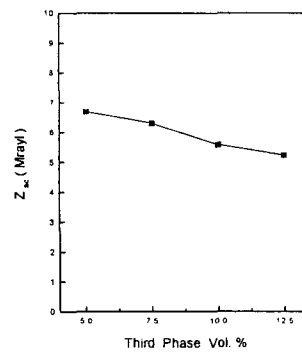


그림 7. 제 3상의 체적비에 따른 음향 임피던스  
Fig 7. Acoustic impedance as a function of 3rd phase Vol.%

그림 8은 PZT 체적비가 25Vol.%이고 제 3상의 체

적비가 12.5wt.%인 1-3-0형 복합압전체 시편에서 제 3상의 체적비에 따른 공진특성을 plot한 것으로 시편의 두께를 반파장으로 하는 공진에 의해 주파수가 780(kHz)정도의 두께공진이 나타남을 알 수 있었다.

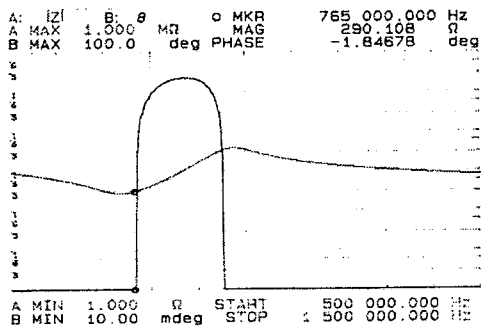


그림 8. 제 3상의 체적비가 12.5wt.%일 때 공진곡선  
 OFig. 8. Impedance variation vs. frequency

#### 4. 결 론

1. 비유전율은 220~230으로 제 3상의 체적비의 변화에도 거의 일정한 값을 나타내었다.
2. 전기기계결합계수는 단일상( $k_t=0.72$ )에 가까운 0.65정도의 값이 얻어져 전기음향 변환능률이 양호함을 알 수 있었다.
3. 기계적 품질계수는 약 4로서 PZT 단일상의 기계적 품질계수(80)에 비하여 상당히 작은 값을 얻었다.
4. 1-3-0형 복합압전체의 제 3상의 체적비에 따른 종속도는 약 2,400~2,500(m/s)정도이었다.
5. 음향임피던스는 6.7~5.3(Mrayl)정도의 낮은 값을 얻을 수 있었다.

#### 참 고 문 헌

1. R.E.Newnham, A.Safari, G.Sa-Gong & I.G.iniewicz, "Flexible Composites Piezoelectric Sensors", IEEE Proc., Int'l Ultrason. Sympo., p.501, 1984
2. G.Sa-Gong, A.Safari, S.J.Jang &

R.E.Newnham, "Poling Flexible Piezoelectric Composites", Ferroel. Lett., 5(5), p.131, 19851.

3. 최현일, 사공 건, "사전분극처리된(Prepoled) 유연한 1-3 세라믹/고분자 복합압전체의 PZT 체적비에 따른 전기적 특성", 대한전기학회 논문지, 42권 11호, pp.100~106, 1993.
4. R.E. Newnham, D.P. Skinner & L.E. Cross, "Connectivity and Piezoelectric - Pyroelectric Composite", Mat. Res. Bull., 13, p.525, 1978.
5. T.R. Shrout, W.A. Schulze & J.V. Biggers, "Simplified Fabrication of PZT/Polymer Composites", Mat. Res. Bull., 14, p.1553, 1979.
6. 사공 건, 최현일, "압전세라믹/Polymer 1-3 Composites의 압전 및 음향특성", 대한전기학회 학술대회 논문집, 1992.7, pp.727~729.
7. 尾上, 十文字, "高結合セラミックス振動子測定法" 信學社, 1967.