

## Dice & Fill 방식을 이용한 1-3 복합재 압전진동자 개발 및 압전특성 평가

### Development of 1-3 Piezo-Composites made by the method of "Dice & Fill" and Estimation of Their Piezoelectric Characteristics

김영덕, 정우철, 김광일, 김홍락, 김동수.

Young-Deog Kim, Woo-Cheol Jung, Kwang-il Kim, Heung-Rak Kim, Dong-Su Kim

#### Abstract

The aim of present work was to fabricate the piezoelectric composite materials of low megahertz applications such as non-destructive testing of materials. Among all the various composites, those with PZT rods embedded in Spurr's epoxy with regular periodicity (1-3 connectivity) was fabricated by dice and fill method. The fabricated size of the PZT cell were 0.18X0.18, 0.28X0.28mm<sup>2</sup>, respectively. And the volume ratio of the PZT cell were 52, 64%, respectively.

The resonant frequency and anti-resonant frequency of the composites were 3.5 MHz and 4.3MHz, respectively. The piezoelectric coupling coefficient were about 38 and 37% and the mechanical quality factor were about 12.7 and 22. These value were very different from those of bulk PZT plate.

**Key Words(중요어) :** PZT, Polymer, Piezoelectric, Ultrasonic, Piezoelectrics

#### 1. 서 론

지금까지 비파괴 검사와 의료산업 등에 PZT 세라믹을 이용한 초음파 변환자(Transducer)가 널리 사용되어왔다. 비파괴검사에서 초음파를 응용할 때 액체(Coupling agent)나 물을 중간 매질로 사용하므로<sup>1)</sup>, 이때 PZT 압전 세라믹소자와 중간 매질로 사용되는 액체와의 음향임피던스 차이로 인하여 감도와 초음파 진행방향으로의 분해능이 나빠지게 된다. 이러한 문제점을 해결하기 위하여 PZT 압전 세라믹소자 전면에  $\lambda/4$  두께의 임피던스 정합층을 설치하여 감도와 분해능을 높일 수 있는 방법들이 제시되었다.<sup>2),3)</sup>

재료적인 측면에서는 고분자 압전체를 개발하

여 응용하고 있으며 이 경우 압전전하상수가 상대적으로 낮아 초음파 송신 효율이 적지만 중간 매질과의 임피던스 정합이 용이한 관계로 세라믹 압전체와 비슷한 초음파 송, 수신 효율을 얻을 수 있다.<sup>4)</sup>

최근 들어서는 압전 세라믹을 임피던스가 낮은 고분자와 복합재를 제조하여 초음파 효율이 높고, 넓은 주파수 대역을 갖는 압전재료를 얻을 수 있어 관련된 연구가 많이 진행되고 있다. 기존의 연구에 의하면 1-3 구조를 갖는 복합재가 초음파 응용에 가장 뛰어난 효율을 갖는 것으로 보고되고 있다.<sup>5)</sup> 1-3 복합재 제조방법은 "Dice & Fill" 방법과 Honey Comb 구조물을 이용하는 방법 그리고 LIGA 공정 등의 여러 방법이 있다.<sup>6),7),8)</sup>

1-3 복합재를 PZT 세라믹의 중형비가 3 이상

이 되도록 제조하면 Thickness Mode의 효율이 최대가 되도록 할 수 있고, 체적비를 조정하여 임피던스를 원하는 대로 조정할 수 있으므로 초음파 송신과 수신 감도를 동시에 향상시킬 수 있다. 그러므로 본 연구에서는 1-3 복합재 제조에 가장 용이한 방법인 "Dice & Fill" 방법에 의한 1-3 복합재 제조공정을 개발하여, 중횡비가 각각 3.1과 2를 가지는 두 가지 재료를 제작하여 압전 특성을 관찰하고 응용 가능성을 조사하여 보았다.

## 2. 본 론

### 2.1 1-3 복합재의 제조

여기서는 초음파 응용을 위한 세라믹-에폭시 1-3 복합재를 제조하기 위한 세라믹 가공 공정과 에폭시 몰딩 공정을 제시하였다. PZT 세라믹 Cell의 크기는  $0.18 \times 0.18 \text{mm}^2$ 과  $0.28 \times 0.28 \text{mm}^2$ 로, PZT Cell 사이 에폭시가 채워지는 부분은  $0.07 \text{mm}$ 로 가공하였다. PZT 세라믹 분말(EDO Corp., EC-64)은 복합재로 제조했을 때 특성의 변화를 용이하게 관찰할 수 있도록 상용으로 쉽게 구할 수 있는 제품 중에서 비교적 유연성과 압전전하상수 값이 높은 재료를 선택하였다. PZT 세라믹 분말을 직경 30mm의 몰드(Mold)를 이용하여 유압 프레스로 성형하였고, 성형된 시편을 PbO 분위기 하에서 소성이 되도록 하였다. 소성은  $1250^\circ\text{C}$ 에서 2시간 유지하였으며, 이때 승온속도는  $3^\circ\text{C}/\text{min}$ 으로 하였다. 소결된 시편은 Diamond Saw(Büher Co.)를 사용하여 2mm 두께로 자른 후 양면 연마기를 이용하여 1.5mm 두께로 연마하였다. 연마된 PZT 세라믹 Plate에 Dicing Saw(Disco Co.)로 바둑판 줄 모양으로 가공하였다. 이때 가공 Line의 폭은  $0.07 \text{mm}$ 였다. 가공 시 회전하는 Blade로 분출되는 냉각용 수압이 약  $2 \text{kg}/\text{cm}^2$  이므로 PZT Cell이 가공 중에 파손될 우려가 있어, 한 방향의 Sawing이 완료된 후 Photo Resist를 PZT Plate의 가공된 면에 도포하고  $90^\circ\text{C}$ 에서 1시간 건조시켜 가공된 Line을 채운 다음 수직 방향으로 Line을 가공할 때 구조물이 넘어지는 것을 방지하였다.

가공이 완료된 PZT Plate에 Spurrs 에폭시를 진공용 주입장치를 이용하여 PZT Plate의 가공된 Line에 주입하였다. 이때 진공은  $5 \times 10^{-3} \text{ torr}$ 를 유지하였고, 에폭시 경화조건은  $70^\circ\text{C}$ 에서 2시간 유지하였다. 제작된 시편의 양면을 연마하여 PZT 에폭시가 연속적으로 나타나도록 한 다음 양면에 상온 전극을 도포하여  $3 \text{ kV}/\text{mm}$ 의 전압을 인가하여 분극하였다. 그림 1에는 1-3 복합재 제조 모식도를 나타내었고, 표 1에는 제작된 시편의 크기와 중횡비 및 두 상의 체적비를 나타내었다. 그림 2는 연마가 끝난 시편의 표면사진으로써 밝은 부분이 에폭시 상이고, 짙게 나타난 부분이 PZT 세라믹 상이다. 시편의

체적비는 52%와 64%, 중횡비는 각각 3.1과 2였다.

표 1. 제조된 복합재의 Dimension

구 분	시험편 1	시험편 2
PZT( $\text{mm}^3$ )	$0.18 \times 0.18 \times 0.55$	$0.28 \times 0.28 \times 0.55$
에폭시(mm)	0.07	0.07
중횡비	3.05	1.96
PZT 체적	52%	64%

### 2.2 1-3 복합재의 압전특성

복합재의 음속은 PZT 세라믹과 Spurrs 에폭시의 밀도와 음속으로부터 각각의 탄성상수를 계산하고 Voigt Average를 적용하여 복합재의 탄성상수를 구한 다음 계산하였고, 복합재의 밀도는 물 속에서의 시료무게와 공기 중에서의 무게를 측정 후 다음 식을 이용하여 계산하였다.

$$\rho = \frac{W_d}{W_d - W_s} \quad (1)$$

여기서,  $W_d$ 는 시편의 건조시 무게,  $W_s$ 는 시편의 현수무게를 나타낸다. 제조된 1-3 복합재의 밀도는 Bulk에 비하여 각각 44%, 32% 감소되었고, 음향 임피던스 값은 Bulk에 비하여 각각 51%, 41% 정도 낮아졌다.

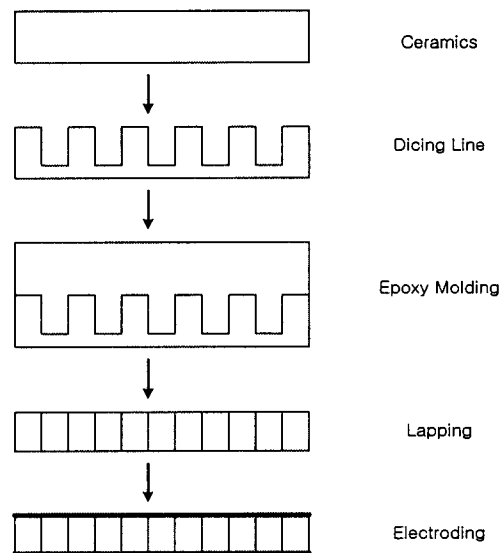


그림 1. 1-3 복합재 제조 모식도

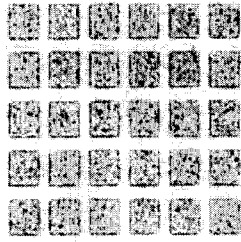


그림 2. 제조된 1-3 복합재의 표면 사진

이러한 음향 임피던스 값의 감소는 비파괴 검사 시 매질로 사용하는 물과의 음향임피던스 (1.5MRyal) 정합이 Bulk보다는 우수하게 되므로, 감도가 뛰어난 센서의 제작이 가능하게 된다. 복합재의 압전전하상수( $d_{33}$ )와 압전전압상수( $g_{33}$ ) 값은 다음의 식으로 주어진다.

$$d = \frac{V_1 d_1 s_2 + V_2 d_2 s_1}{V_1 s_2 + V_2 s_1} \quad (2)$$

$$g = \frac{V_1 d_1 s_2 + V_2 d_2 s_1}{(V_1 s_2 + V_2 s_1)(V_1 \epsilon_2 + V_2 \epsilon_1)} \quad (3)$$

여기서  $V$ ,  $s$ ,  $\epsilon$ ,  $d$  그리고  $g$ 는 각각 체적비, 탄성율의 역수, 투자율, 압전전하상수, 압전전압상수를 나타내고, 첨자 1은 PZT 세라믹 상을, 2는 에폭시 상을 나타낸다. 전기기계결합계수와 기계적 품질계수 값을 비교하기 위하여 Impedance Analyzer (HP 4194A)를 이용하여 1kHz에서의 정전용량과 임피던스 곡선을 측정하여 임피던스 값이 최대와 최소일 때의 주파수 값을 각각 반공진 주파수와 공진 주파수로 결정하였다. 이들 값으로부터 두께 모드 전기기계결합계수(Thickness Mode Coupling Constant)는 다음 식으로 주어진다.

$$k_t = \frac{\pi}{2} \frac{f_r}{f_a} \tan\left(\frac{\pi}{2} \frac{f_a - f_r}{f_a}\right) \quad (4)$$

여기서,  $f_a$ 와  $f_r$ 는 각각 측정된 반공진 주파수와 공진 주파수를 나타낸다.

초음파 응용에서 주파수 대역과 관계가 되는 값인 기계적 품질계수(Mechanical Quality factor)는 다음 식으로 주어지며

$$Q_m = \frac{f_a^2}{2\pi |Z_{11}| C_0 f_a (f_a^2 - f_r^2)} \quad (5)$$

여기서,  $|Z_{11}|$ 은 공진 주파수에서의 임피던스 값이고,  $C_0$ 는 낮은 필드를 인가하고 1kHz의 주파수에서 측정된 정전용량 값이다. 이상의 방법으로 측정된 복합재의 압전특성을 표 2에 정리하여 나타내었다. 상대 유전율은 PZT 세라믹의 체적비가 감소함에 따라 증가하는 것으로 나타났

다. 그림 3에는 체적비에 따른 압전전압상수 값의 변화를 나타낸 것으로써 압전전압상수 값은 PZT 세라믹의 체적비가 줄어들어 따라 증가하여 PZT 세라믹의 체적비가 52%일 때 Bulk에 비하여 약 2.4배 증가한 값을 가졌다.

그림 4에는 PZT 세라믹의 중횡비에 따른 전기기계결합계수와 기계적 품질계수 값을 나타내었다.

$k_t$  값은 중횡비가 증가함에 따라 커짐을 알 수 있고, 기계적품질계수는 반대로 중횡비가 커지면 줄어드는 경향을 나타내었다. 초음파 센서의 분해능과 관계되는 기계적 품질계수의 값이 Bulk에 비하여 78% 정도 감소되어 분해능이 훨씬 뛰어난 센서의 제조가 가능할 것으로 판단된다.  $k_t$  값은 Bulk에 비하여 27%와 23% 크게 나타나 초음파 효율이 향상되었음을 관찰할 수 있었다.

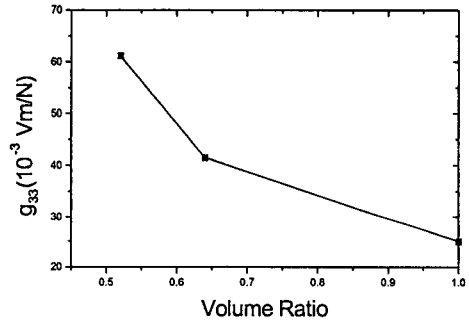


그림 3. PZT 세라믹 체적비에 따른 압전전압상수

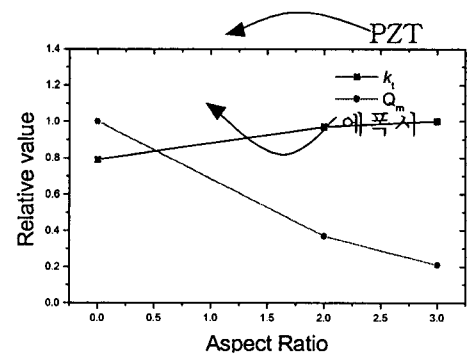


그림 4. PZT 세라믹의 중횡비에 따른 기계적 품질계수와 전기기계 결합계수

표 2. 제조된 1-3 복합재의 압전특성

구 분	에폭시	시험편1	시험편2	PZT
t(mm)		0.55	0.55	0.4
$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	1.1	4.2(4.43)	5.1(5.2)	7.5
v(m/sec)	2060	3434	3426	3958
Z(MRyal)	2.27	14.42	17.47	29.69
$\epsilon_r$		520	781	1333
f <sub>r</sub> (MHz)		3.52	3.87	5.01
f <sub>a</sub> (MHz)		4.3	4.7	5.82

### 3. 결 론

PZT 세라믹과 Spurr's 에폭시의 2상으로 이루어진 1-3 구조의 복합재를 제조하여 기본물성과 압전특성을 측정된 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

- (1) "Dice & Fill" 방법을 이용하여 중형비가 3.1을 가지는 1-3 복합재를 제조할 수 있었고, 이때 PZT rod의 크기는  $0.18 \times 0.18 \times 0.55 \text{mm}^3$  였다.
- (2) 음향임피던스가 각각 14.4MRyal과 17.5MRyal로써 Bulk(26.7MRyal)보다 훨씬 낮은 값을 가지는 1-3 복합재 압전진동자를 얻어 물과의 임피던스 정합이 Bulk에 비하여 훨씬 우수한 초음파센서의 개발이 가능하게 되었다.
- (3) 압전전하상수값은 Bulk와 거의 비슷한 값을 가졌으나 유전율이 낮은 관계로 초음파센서의 수신감도와 관계되는 압전전압상수 값이 Bulk에 비하여 아주 커 수신감도가 아주 뛰어난 초음파센서의 제조가 가능할 것으로 판단된다.
- (4) Electric Coupling Coefficient는 각각 38%과 37%로써 Bulk의 30%에 비하여 향상된 값을 나타내었고 중형비가 커짐에 따라 증가하는 경향을 나타내었다. 기계적 품질계수는 각각 12.7과 22의 값을 가져 Bulk의 59.8보다 줄어들었으며, 중형비의 증가에 따라 감소하는 경향을 나타내었다.

### 감사의 글

본 연구를 수행할 수 있도록 연구비를 지원하여 준 포스코신기술 연구조합과 (주)POSCON에 감사드립니다.

### 참고 문헌

- [1]Josef Krautkramer, Herbert Krautkramer, "Ultrasonic Testing of Materials", Springer-Verlag, pp.274~278, 1990
- [2]Charles S. Desilets, John D. Fraser,

and Grodon S.Kino, "The Design of Efficient Broad-Band Piezoelectric Transducers", IEEE Transactions and Ultrasonics, Vol. SU-25, NO.3, pp.115~125,1978

[3]Jeffrey H.Goll, "The Design of Broad-Band Fluid-Loaded Ultrasonic Transducers", IEEE Transactions and Ultrasonics, Vol. SU-26, NO.6, pp.385~393, 1979

[4]M.G.Silk, "Ultrasonic Transducers for Non-destructive Testing", Adam Hilger Ltd, Bristol, pp.8~9, 1984

[5]S.Sheritt, H.D.Wiederick, and B.K.Mukherjee, "The Complete Matrix of the Piezoelectric Ceramic/Polymer Composites", SPIE Vol.3241, pp.327~337, 1998

[6]Victor F.Janas, Thomas F.McNulty, Francis R. Walker, Robert P.Schaeffer, and Ahmad Safari, "Processing of 1-3 Piezoelectric Ceramic/Polymer Composites", J. Am. Ceram. Soc., 78(9), pp. 2425~2430, 1995

[7]Thomas F. McNulty, Victor F.Janas, and Ahmad Safari, "Novel Processing of 1-3 Piezoelectric Ceramic/Polymer Composites for Transducer Applications", J. Am. Ceram. Soc., 78(11), pp. 2913~2916, 1995

[8]Yoshihiro Hirata, Hiroshi Okuhama, Seiji Ogino, Toshiyuki Numazawa, and Hiroshi Takada, "Piezoelectric Composites for Micro-Ultrasonic Trnasducers Realized with Deep-Etch X-Ray Lithography", IEEE MEMS 95, pp. 191~195, 1995