

PLZT 경사 기능 재료를 이용한 세라믹 액츄에이터

최승철^{0, +}, 김한수⁰, 손정호*, 김현재*, 정형진*

⁰아주대학교 공과대학 재료공학과

*한국과학기술연구원 무기재료연구실

+ 동경대학 선단과학기술연구소 미래화학연구실

Ceramic Actuators with PLZT Functionally Gradient Material

Seung Chul Choi^{0, +}, Han Soo Kim⁰, Jeong Ho Sohn*, Hyun Jai Kim*, Hyung Jin Jung*

⁰Dept. of Material Science and Engineering, Ajou University

* Inorganic Materials Laboratory, KIST

+ Frontier Chemistry Laboratory, RCAST, The University of Tokyo

초 록 압전 actuator를 위한 새로운 형태의 재료를 개발하여, 그 특성들을 조사하였다. 이 압전 actuator는 세 층으로 구성되어 있다: 압전 세라믹 층, 조성이 점차로 변하는 중간층, 그리고 또 다른 압전 세라믹 층. 이러한 형태의 재료는 경사 기능 재료(Functionally Gradient Material, FGM)라 불리운다. 경사 기능 재료를 제작하기 위한 재료설계의 개념을 도입하여, FGM화에 있어서 연팽창에 의한 시편의 박리를 막기 위해 (Pb, La)(Zr, Ti)O₃계에서 서로 다른 세라믹스의 조성을 선택하였다. 1300°C, 2시간의 소성에 의해 경사 기능화된 PLZT는 약 20μm 정도의 중간층을 형성하는 미세 구조를 가지고 있었다. 경사 기능 재료에서의 유전 및 압전 등의 여러 특성은 두 집합 조성층 특성의 사이의 값을 나타내었다. 인가 전압에 따른 strain특성은 전반적으로 단일 시편의 특성보다 증가하였으며, 특히 집합 조성층에서 고압전-저유전성 조성과 저압전-고유전성 조성을 경사 기능화하였을 경우에 변위의 증가 정도가 더욱 향상되었다.

Abstract In PLZT system, a new type of material for piezoelectric actuator was developed and its properties were investigated. This material consists of three layers: a piezoelectric ceramic layer, an interlayer which composition changes gradually, and another piezoelectric layer. This kind of material is called Functionally Gradient Material(FGM). The composition of these layers were selected from the (Pb, La)(Zr, Ti)O₃ system through the concept of material design. Sintered FGM at 1300°C, 2hr has an interlayer of about 20μm with no distorted damage. Dielectric and piezoelectric properties of FGM show intervalues of each side composition. The strain-voltage characteristics in FGM system was improved comparison with any single composition. Especially, the FGMs were fabricated which has high piezoelectric-low dielectric composition and low piezoelectric-high dielectric composition. The properties of both FGMs were significantly improved.

1. 서 론

최근에 광학 기기와 정밀 가공 및 전자 산업 등의 분야에서 서브마이크론의 범위로 광로길이나 위치를 제어하는 미소 변위 소자(actuator)⁽¹⁾가 요구되고 있으며, 새로운 actuator 재료로서 압전 세라믹 재료가 연구되고 있다^(2~6). 또한 급속한 기술의 진보에 따

라 이와 같은 미소 변위 제어 소자는 사용 환경 및 물성적 측면에서 여러 가지의 특성의 요구된다. 이러한 요구들의 충족을 위해서는 균질 재료만으로는 한계가 있으므로 복수의 재료의 조합을 필요로 하게 된다.

종래에 복수의 재료를 조합하여 사용하는 전자 부품의 경우 집착제에 의한 집착 또는 납땀이나 용접 등의 방법으로 집착되지만, 모

두 접합면이 존재하여, 그 계면에서는 사용 온도에 따라 열응력이 축적되기 때문에 박리, 연화(softening), 균열 등이 일어난다. 이러한 문제를 해결하기 위하여 유망한 재료로서, 복수의 재료사이에 조성 등의 요소를 서서히 연속적으로 변화시켜 양자간의 계면을 없게 하는 경사 기능 재료(Functionally Gradient Material, FGM)가 대두되고 있다^(7~9).

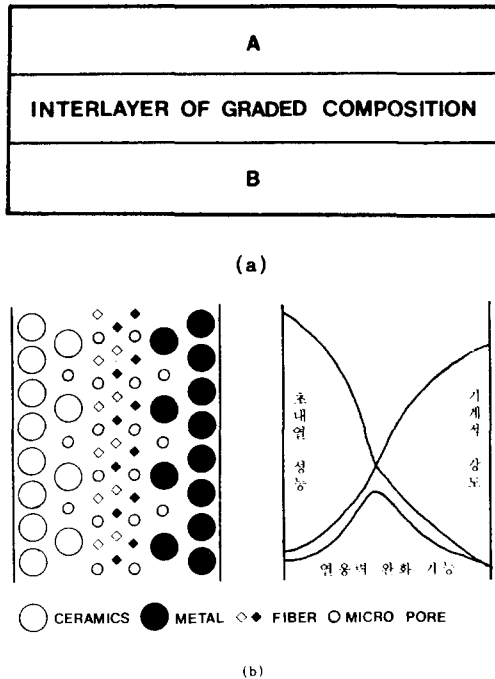


Fig. 1. (a)Concept and (b) function⁽⁸⁾ of Functionally Gradient Material.

경사 기능 재료가 새로운 개념의 재료로서 연구되기 시작한 것은 1986년으로 우주 왕복선의 연소실과 기체 등에서의 큰 온도차로 인한 열응력을 해결하는 재료로서 연구되었다⁽¹⁰⁾. 복합 재료의 진화적 관점에서 보면 섬유 강화 재료(fiber reinforced material), 하이브리드화 재료(hybrid material), 나노 복합 재료(nano-composite)에 이어서 나타난 것이 경사 기능 재료라 할 수 있다. 거시적으로 보면 종래의 복합 재료는 이종 소재가 분산되므로써 균질하다고 볼 수 있으나 경사 기능 재료는 불균질하며, 종래의 재료에서는 나타나지 않는 기능의 경사화가 가능하다. 경사기능

재료에 대한 개념과 기능을 도식적으로 Fig. 1에 나타내었다⁽⁸⁾. 1989년경부터 Kawai등은 이러한 경사 기능 재료의 개념을 압전 actuator에 응용하여 연구를 하였다^(11~12). 경사 기능의 개념은 계면에 기인한 많은 문제의 해결 수단으로서, 또한 경사 조성 자체가 새로운 기능을 발휘하는 재료로서 무한한 가능성을 가지고 있어 항공 우주 분야, 일렉트로닉스 분야, 의료 분야 등에서 광범위한 응용이 기대된다.

본 연구에서는 복수의 재료를 조합하는 미소 변위 소자(actuator)로서 사용되기에 적합하도록 PLZT로 경사 기능 재료를 제작함으로써 온도 안정성을 향상시키며, 제작된 경사 기능재료에서 충분한 변위량을 얻는데 그 목적이 있다. PLZT는 조성에 따라 tetragonal, rhombohedral, relaxor cubic등의 여러 상들을 가지므로, 조성을 변화시켜 소결 특성과 전기적 특성을 조절하여 경사 기능 재료로서 제조할 수 있기 때문에 이 재료를 선택하였다^(13~15). PLZT계 내에서 단일 조성의 소결 특성 및 전기적 특성을 연구하고, 이를 토대로 경사 기능의 개념을 이용한 적층체의 시편으로 제작하여 그 특성들을 조사하였다.

2. 실험방법

2.1 시편의 제조

본 실험에서 사용한 원료 시약은 순도 99% 이상의 고순도 특급 시약이었으며, Fig. 2와 같이 일반적인 산화물 합성법에 의하여 PLZT시편을 제작하고, FGM시편은 성형 과정에서 적층 성형함으로써 제조하였다. 조성식은 $Pb_{1-x}La_x[(Zr,Ti_{1-x/4})O_3]$ 이며, 선택된 단일조성과 FGM재료로 제조하기 위한 접합 조성은 Table 1과 Table 2에 나타내었다.

각각의 조성비에 따라 칭량한 원료 분말을 습식 혼합하고 900°C에서 2시간 하소하여, 직경 18mm 금형에서 1 ton/cm²의 압력으로 성형하였다. 특히 FGM은 이때 접합조성중 한 조성의 하소분말을 먼저 약간의 압력으로 성형한 다음 다른 조성을 동일한 양만큼 그 위에 적층하여 1ton/cm²의 압력으로 성형하였다. 소결은 알루미나 도가니를 사용하여 시간당 300°C로 1200~1325°C의 온도 범위에서 2

시간씩 행하였다.

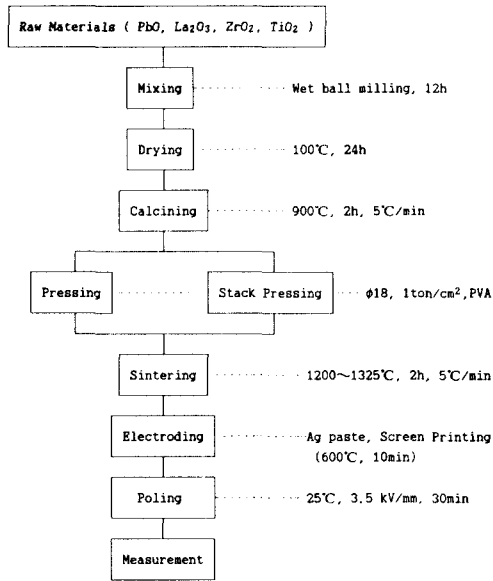


Fig. 2. Flow chart of experiment.

Table 1. Composition of the PLZT Specimens
 $Pb_{1-x}La_x(Zr_{1-y}Ti_y)_{1-(x/4)}O_3$

Specimen	Batch Composition(mole ratio)			
	PbO	La ₂ O ₃	ZrO ₂	TiO ₂
A (7/60/40)	0.93	0.07	0.60	0.40
B(11/60/40)	0.89	0.11	0.60	0.40
C (7/65/35)	0.93	0.07	0.65	0.35
D (7/70/30)	0.93	0.07	0.70	0.30
E(10/70/30)	0.90	0.10	0.70	0.30

Table 2. Composition of the FGM Specimens

Specimens	Composition(La/Zr/Ti mol ratio)
A / B	7/60/40 - 11/60/40
A / C	7/60/40 - 7/65/35
A / D	7/60/40 - 7/70/30
D / E	7/70/30 - 10/70/30

2. 2 측 정

시편의 밀도 및 기공율을 ASTM STANDARD(C373-72)에 준하여 측정하고 소결 특성을 평가한 후, 시편의 조성에 따른 과단면의 미세 구조를 SEM(ETEC. Co.)으로 관찰하였다.

유전 특성은 분극 처리 전·후에 LF

Impedence Analyzer(HP 4192)를 이용하여 상온 및 온도 변화 시의 유전율과 tan δ를 1kHz에서 측정하였다.

분극 처리된 시편의 압전 특성은 IRE Standard(1957)에 근거한 공진-반공진 방법에 의하여 Network Analyzer(HP 3577A)로 측정하였다. 또한 strain특성은 비접촉 정전 용량형 gap sensor를 사용한 Accumeasure System 1000으로 인가 전압에 대한 변위를 측정하여 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

3. 1 소결 특성

PLZT시리즈인 A, B, C, D, E조성의 소결 온도(1200~1325°C)에 따른 소결 밀도의 변화를 Fig. 3에 나타내었다. 소결 온도가 증가함에 따라 소결 밀도는 증가하다가 A와 E조성의 시편은 1250°C이상에서, B, C, D조성의 시편은 1300°C이상에서 소결 밀도는 감소하였다.

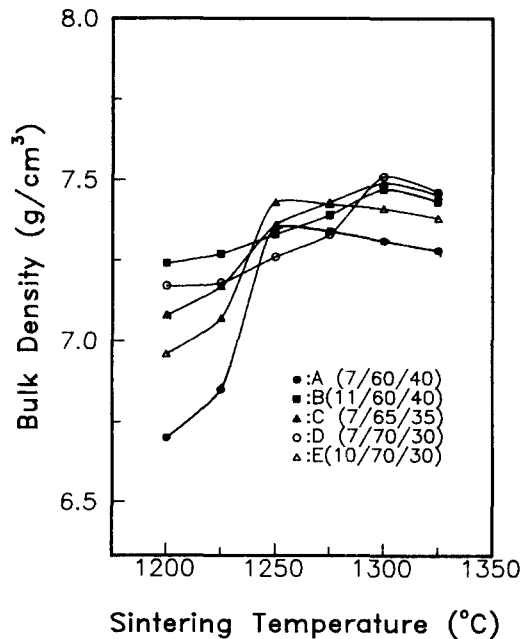


Fig. 3. Bulk density vs. sintering temperature of the PLZT specimens.

이는 소결 온도가 증가할수록 입자들의 표면적이 감소하여 기공들이 매워지면서 치밀화되기 때문에 그 소결 밀도가 증가하며, 이는

온도 이후 소결 밀도가 감소하는 것은 입경의 급격한 성장으로 인하여 폐기공이 생성되고, PbO의 휘발이 증가함에 기인된 것으로 사료된다.

각 조성의 시료들에 대한 과단면의 미세 구조 사진을 Fig. 4에 나타내었다. A(7/60/40), C(7/65/35), D(7/70/30)의 경우와 같이 La 함량이 일정하고 Zr/Ti ratio가 변화함에 따라서는 입경의 크기 변화는 거의 없었으나, Zr/Ti

ratio가 일정하고 La 함량이 변화하는 조성인 A(7/60/40)와 B(11/60/40), D(7/70/30)와 E(10/70/30) 조성에서는 La의 함량이 증가했을 때에 그 입경이 증가했음을 알 수가 있었다. 이는 La 농도가 3mol%일때 양이온의 확산과 공공(vacancy)의 확산이 평형을 이루므로 가장 작은 growth rate를 보이고, 3mol% 이하에서는 양이온의 확산이 향상되므로 인해 La 함량이 작을 수록 입경이 커지며, 3mol%

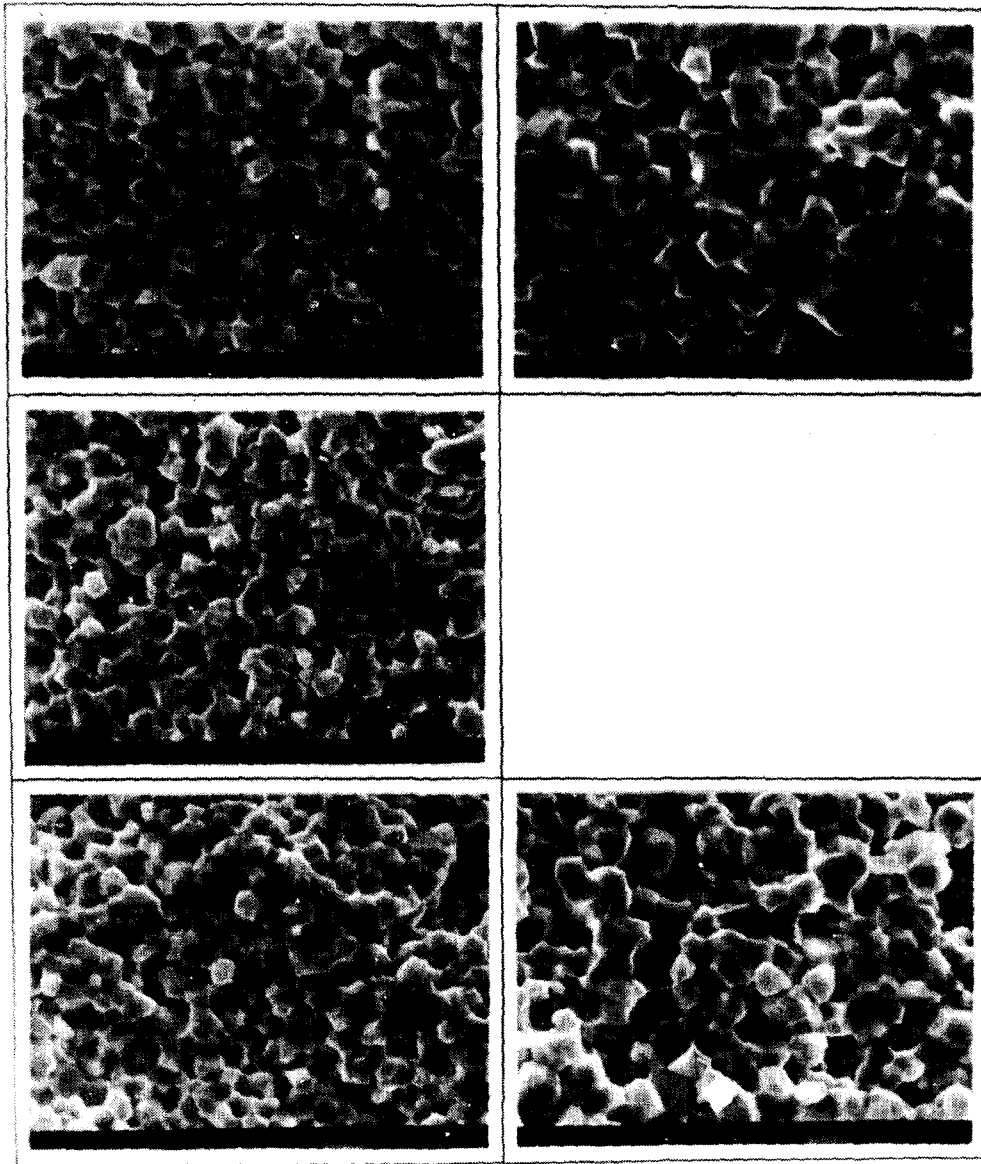


Fig. 4. SEM Micrograph of Fracture Surface for the PLZT Specimens
 (a) A(7/60/40) (b) B(11/60/40) (c) C(7/65/35)
 (d) D(7/70/30) (e) E(10/70/30)

이상에서는 La함량이 증가할수록 입계에서 공공의 농도 구배가 커져 확산을 향상시키므로 입경이 커진다는 Jyomura 등의 보고와 부합하는 결과이다⁽¹⁶⁾.

FGM은 A와 B, A와 C, A와 D, D와 E의 조성으로 조합하여 제작하였으며, 소결 온도에 따른 소결 밀도의 변화를 Fig. 5에 나타내었다. 전반적으로 비슷한 소결 특성을 보였으며, 소결 온도가 1300°C에 이르기까지 소결 밀도가 증가하다가 그 이후 감소하였다.

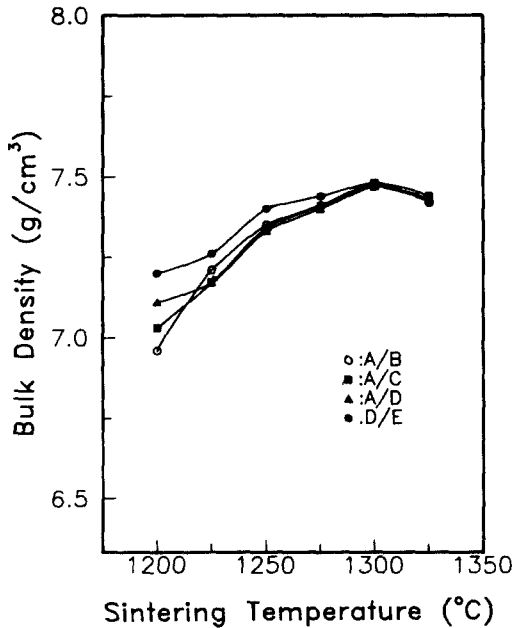


Fig. 5. Bulk density vs. sintering temperature of the FGM specimens.

Fig. 6에서 A와 B의 중간 확산 영역을 보여주는 FGM파단면의 미세구조 사진을 나타내었다.

A와 B의 단일 조성의 파단면 사진(Fig. 4)에서 관찰한 것처럼 입경 크기의 차이를 나타내며 La함량이 많은 B조성층에서 더 큰 입경을 보였다. 그 중간층의 영역은 약 20 μ m 정도로 확산되어 있음을 알 수 있다.

3. 2 유전 특성

각 조성의 온도에 대한 유전 상수의 변화를 Fig. 7에 나타내었다. La함량의 증가에 따라서 Curie온도에서의 유전 상수의 최대값은 감소하였으며, 그 Curie온도 또한 낮아지는 경향

을 보였다.

A layer \ interlayer \ B layer

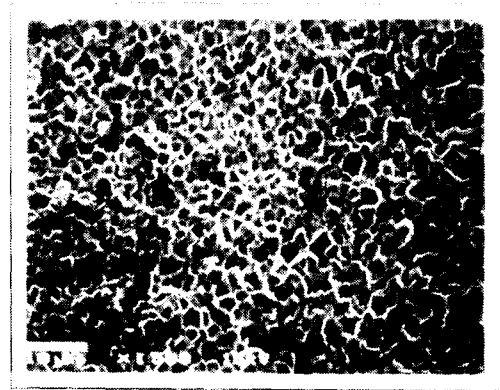


Fig. 6. SEM Micrograph of Fracture Surface for the FGM Specimen, A/B.

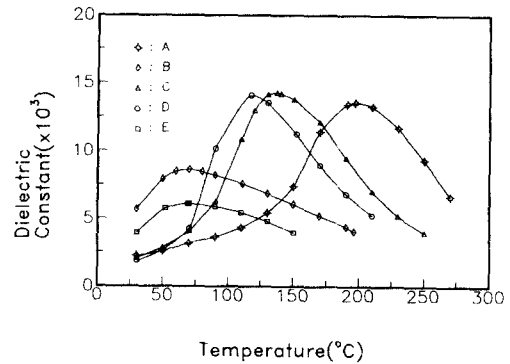


Fig. 7. Dielectric constant vs. temperature for the PLZT specimens.

단일 조성들과 이를 경사 기능화 하였을 경우의 유전 특성을 알아보기 위하여 Fig. 8에 각각의 접합 조성 및 그에 대한 FGM의 유전 상수를 나타내었다. 그림에서와 같이 FGM적층 시편의 유전 특성은 그 접합 조성의 특성들 사이의 값을 나타내었으며, Curie온도 또한 그 사이의 값을 나타내었다. 이는 유전 특성이 서로 다른 조성들을 조합하므로써 접합된 조성들이 각각 그 유전 특성에 기여하여 나타난 결과라고 생각된다.

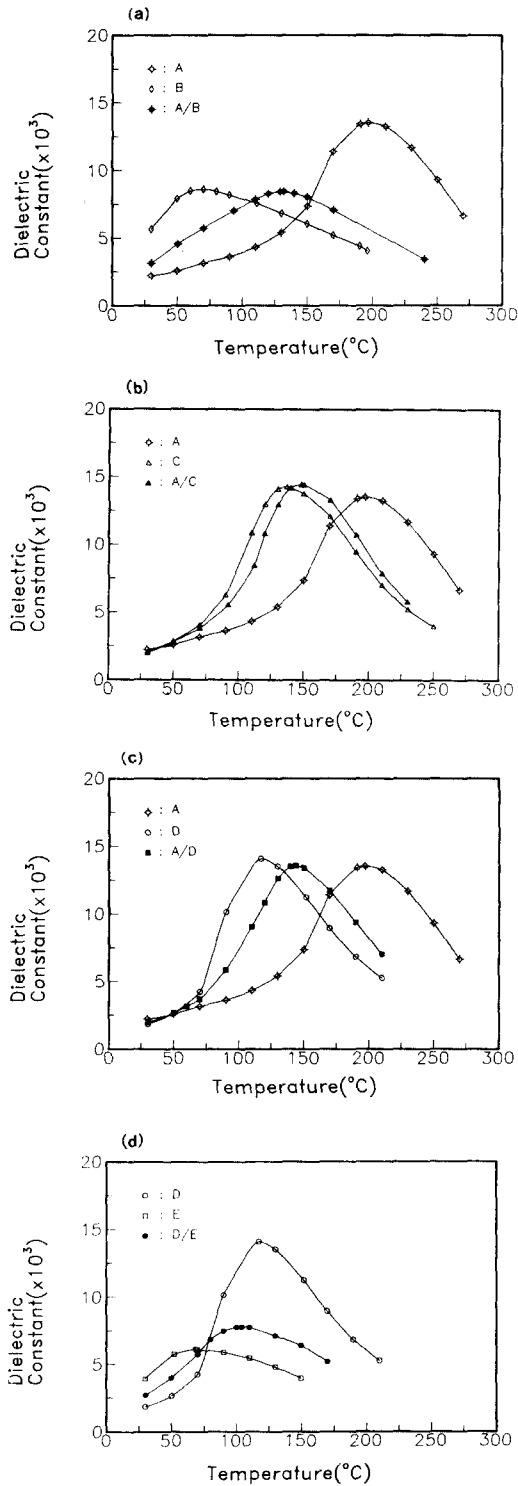


Fig. 8. Dielectric constant vs. temperature for the FGM and junction compositions
 (a) A, B and A/B (b) A, C and A/C
 (c) A, D and A/D (d) D, E and D/E

3. 3 압전 특성

단일 조성 및 이를 조합한 FGM의 압전 특성을 정리하여 Table 3에 나타내었다. 유전 특성에서와 같이 그 압전 특성도 마찬가지로 두 접합 조성의 특성들 사이의 값을 나타내는 것을 알 수 있다.

Table 3. Piezoelectric Properties of the PLZT and PLZT FGM Specimens

Property Specimen	d_{33} (10^{-12}C/N)	d_{31} (10^{-12}m/V)	K_p (%)	Q_n
A (7/60/40)	627	369	57.7	55.9
B(11/60/40)	40		18.7	29.0
C (7/65/35)	435	324	54.6	102.9
D (7/70/30)	320	240	45.9	122.1
E(10/70/30)	27		16.8	37.7
A / B	502	285	41.8	38.4
A / C	507	335	56.9	77.3
A / D	398	287	51.3	97.3
D / E	124	115	20.0	27.5

3. 4 Strain특성

압전 bimorph actuator의 변위를 이용하는 사용 방법에는 일정의 변위와 힘을 이용하는 방법과 큰 변위를 주로 이용하는 방법의 2가지로 대별할 수 있다. 본 실험에서는 후자의 방법을 위한 actuator로서 사용하기에 적합한 변위 특성을 살펴보기 위하여 인가 전압에 따른 strain특성을 측정하였다. A와 C의 조성과 FGM A/C의 특성을 Fig. 9에 나타내었다. A와 C의 조성은 모두 압전 특성이 우수한 조성임을 Table 3에서 알 수 있으며, Fig. 9(a), (b)에서와 같이 strain특성이 양호하다. 이를 조합한 FGM A/C의 특성은 Fig. 9(c)와 같으며, A와 C의 단일 조성보다 그 strain특성이 더욱 증가함을 나타내었다. 이는 조합한 양쪽 조성에서 전압을 인가함에 따라 변위가 더욱 향상되어 나타나는 결과로 생각된다.

또한 D와 E의 조성과 FGM D/E의 strain특성을 Fig. 10에 나타내었다. Table 3에서 알 수 있듯이 D 조성은 비교적 압전 특성이 우수하고 유전율이 낮으며, E의 조성은 압전성이 작고 유전율이 높은 조성이다. Fig. 10(a), (b)에서와 같이 그 strain특성은 D에서 양호하고 E에서 작게 나타나고 있다. 그러나 이를

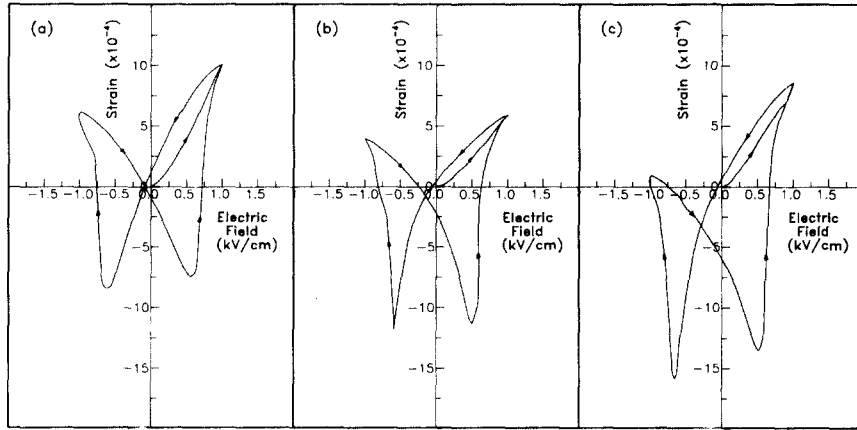


Fig. 9. Strain vs. electric field of PLZT A, C and FGM A/C
 (a) A (b) C (c) A/C

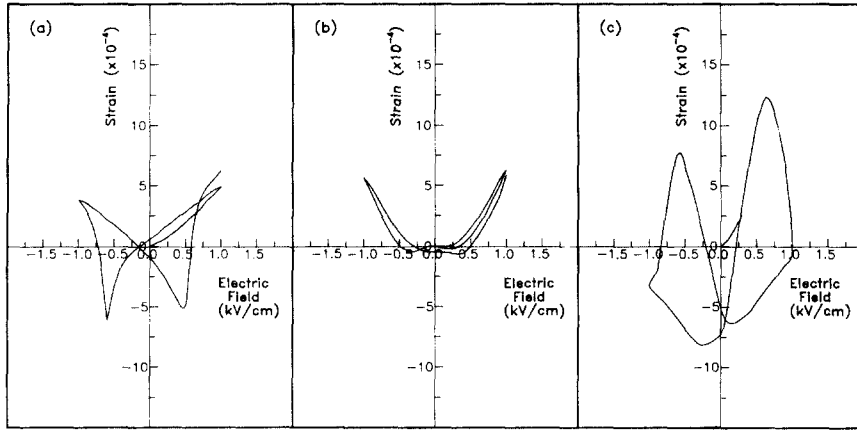


Fig. 10. Strain vs. electric field of PLZT, D, E and FGM D/E
 (a) D (b) E (c) D/E

경사 기능화한 FGM D/E는 strain특성은, Fig. 10(c)에서와 같이 압전성 조성으로만 집합된 FGM A/C의 경우보다 훨씬 더 증가되어 나타나 있는 것을 알 수 있다. 이는 우수한 압전성 조성과 고유전율의 조성을 접합시켜 FGM을 형성시킴으로써, 고유전율 조성층에서 인가 전압을 상대적으로 낮게 하고 birmorph형 actuator에서의 seam의 역할을 하게 하며, 변위에 기여하는 압전성 조성층에 더 많은 전압이 부여되게 하므로써 그 변위량을 더 향상시키는 것으로 사료된다.

4. 결 론

1. PLZT의 FGM화는 소결 특성(소결 온도 및 수축율)이 유사한 조성을 선택하여, 최적 소결 온도로 소결하여 휨이나 비틀림이 없는 구조로 이루어졌다.
2. 1300°C, 2hr의 소결 조건에 의해 FGM화된 PLZT는 약 20 μ m 정도의 중간층을 형성하는 미세 구조를 가지고 있었다.
3. 경사 기능 재료의 유전 및 압전 특성은 접합 조성층 특성의 사이의 값을 나타내었

다.

4. 인가 전압에 따른 strain의 특성은 전반적으로 단일 시편의 경우보다 경사 기능 재료에서 증가하였으며, 압전성이 큰 조성과 유전율이 높은 조성을 경사 기능 재료화 하였을 경우 strain이 훨씬 더 증가하였다.

참 고 문 헌

1. 内野 研二, “壓電/電歪 アクチュエータ”, 森北 出版社, 東京, 1-9(1986)
2. K. Uchino, Electronic Essential No. 3(Nippon Kogyo Center), Tokyo, (1984)
3. T. Kitamura, Y. Kodera, K. Miyahara and H. Tamura, Jpn. J. Appl. Phys. **20**, Suppl 4, 97(1981)
4. Y. Fuda et al, Jpn. J. Appl. Phys. **24**, Suppl 2, 385(1985)
5. L. E. Cross, S. J. Jang, R. E. Newnham, S. Nomura and K. Uchino, Ferroelectrics, **23**, 187(1980)
6. K. Uchino, S. Nomura, L. E. Cross, R. E. Newnham and S. J. Jang, J. Mat. Sci. **16**, 569(1981)
7. K. Mitsue, Proceedings of the 7th Korea-Japan Seminar on New Ceramics, 19 (1990)
8. 新野 正之, ニューセラミクス, オプトロニクス社, **2**(5)51(1989)
9. 김한수, 손정호, 최승철, 정형진, 춘계총회, 특별강연, 연구발표회 초록집, 한국요업학회, 78(1991)
10. 日本科學技術廳, “複素化した關する調査” 報告書, (1987)
11. 河合 高志, セラミックス, **24**(10), 975 (1989)
12. T. Kawai and S. Miyazaki, J. of Ceram. Soc. of Jpn., **98**(8), 900(1990)
13. G. H. Heartling and C. E. Land, J. Am. Ceram. Soc., **54**(1), 1(1971)
14. G. H. Heartling, J. Am. Ceram. Soc., **54**(6), 303(1971)
15. L. M. Brown and K. S. Mazdizyasni, J. Am. Ceram. Soc., **55**(11), 541(1972)
16. S. Jyomura, I. Matsuyama and Gyoza Toda, J. Am. Ceram. Soc., **64**(3), C55 (1981)