

O-3 형 BaTiO₃-폴리머 복합체의 계면기공을 변화에 따른 유전 및 압전특성

이형규·김호기

한국과학기술원 재료공학과

(1989년 7월 11일 접수)

Effects of Interface Porosity on Dielectric and Piezoelectric Properties of BaTiO₃-Polymer Composites of O-3 Type Connectivity

Hyeung-Gyu Lee and Ho-Gi Kim

Dept. of Mat. Sci. and Eng., KAIST

(Received July 11, 1989)

요 약

BaTiO₃분말과 Phenolic resin polymer를 복합화한 O-3형 압전 복합체를 제조하였다. O-3형 복합체에는 3종류의 기공 즉, 기지기공(matrix pore), 분말기공(particle pore), 그리고 계면기공(interface pore)이 존재한다. 이들 기공중 계면기공의 변화에 따른 복합체의 유전 및 압전 특성을 porosity factor를 가지고 논의하였다. 순수한 BaTiO₃세라믹스에서는 유전율 및 압전계수의 porosity factor는 각각 5.7 및 5.0로 비슷한 값을 가졌다. 그러나 BaTiO₃-Polymer 복합체의 경우, 유전율에서 porosity factor는 4.6, 압전계수는 9.8로 큰 차이를 보였다. 이것은 복합체의 계면기공이 응력 흡인자(stress buffer)로 작용하기 때문으로 해석된다. 한편 전압계수 g_{33} 의 경우 순수한 BaTiO₃세라믹스에서는 기공율에 관계없이 거의 일정한 값을 갖는 반면에 복합체에서는 계면기공율이 증가함에 따라 감소하였다.

ABSTRACT

Piezoelectric composites of O-3 connectivity were prepared by thermosetting barium titanate-phenolic resin composite under various curing pressure. Among three kinds of pore in O-3 type ceramic-polymer composite, such as matrix pores, particle pores, and ceramic-polymer interface pores, the effect of interface porosity on the dielectric and piezoelectric constant was investigated. In pure barium titanate ceramics, the porosity factor of dielectric and piezoelectric constants were 5.7 and 5.0, respectively. However, in BaTiO₃-polymer composite, the interface porosity factor of the piezoelectric constant was greater than that of the dielectric constant, interface porosity factor b in d_{33} was 9.8 and in ϵ_r 4.6. On the other, piezoelectric voltage constant g_{33} was independent of the porosity of barium titanate ceramics. But in composite system, the piezoelectric voltage constant g_{33} was decreased with interface porosity.

1. 서 론

1940년 이후 압전특성이 BaTiO₃ 세라믹스에서 발견된 이래, PZT계 압전 재료의 개발로 그 응용의 폭이 넓어졌다. 이러한 재료는 압전계수가 크고 전기기계 결합계수 등이 우수하여 에너지 변환소자로서 널리 이용되어 왔다. 한편 압전소자로서 수중청음기(hydrophone), 의학 진단용 탐촉자, sonar 등에 이용되는 변환소자에서는 정수압 압전계수($d_n = d_{33} - 2d_{31}$) 및 전압계수($g_n = d_n / \epsilon_{33}$)가 크고, 수중에서 사용시 물과의 임피던스 정합(matching)을 위한 음향 임피던스를 낮추기 위해 밀도가 작아야하며 유전율이 작을수록 유리하다. 그러나 BaTiO₃(약 6 g/cm³), PZT(약 8 g/cm³) 세라믹스는 밀도가 크고 유전율이 크기 때문에 정수압 압전 변환자로서 많은 단점들이 존재한다. 또한 수중 청음기 소자로 사용되는 압전 세라믹스는 d₃₃와 d₃₁이 매우 큰 값을 갖는다 할지라도, d₃₁이 음의 부호로 약 d₃₃/2 정도의 값을 갖기 때문에 정수압 압전정수(d_n)는 매우 낮은 값을 갖게되어 불리하다. 따라서 이러한 단일상 재료가 갖는 단점들을 보완하기 위하여, 밀도가 작고 유연성이 좋은 polymer와 압전 세라믹스를 복합화하려는 시도가 이루어졌다.

1973년 Pauer¹⁾가 최초로 PZT 분말과 우레탄 고무를 혼합한 압전 복합체료를 개발한 이래로 Kitayama²⁾, Banno³⁾등 여러 연구자들에 의해 활발한 연구가 진행되어 왔다. 고분자와 세라믹스의 압전 복합체료가 우수한 특성을 갖기 위해서는 각 상의 장점들을 최대한 살려서 복합화하여야 한다. 이러한 수단의 하나로서 1978년 Newnham⁴⁾등이 세라믹상과 고분자상의 연결성(connectivity)을 도입하였다. 압전 복합체료를 이 연결성에 따라 10가지 유형으로 분류하여 그 연결형태에 따른 압전특성을 나타내는 연구가 많이 이루어져 왔다.

본 연구에서는 제작이 간편하여 대량생산이 용이하며 유연성이 좋아 원하는 형상으로 쉽게 만들 수 있고, 얇은 막(thin sheet)으로 제조가 가능한 복합체료로서 압전세라믹 분말이 폴리머 기지에 분산되어 있는 O-3형 복합체를 택하였다. O-3형 압전복합체는 다른 연결성을 갖는 복합체에 비하여 원하는 응력 집중성(stress concentration)이 떨어져 성능지수가 약간 떨어지는 단점이 있으나 제조상의 유리한 점때문에 실제 응용면에서 많이 이용되고 있다.

O-3형 복합체의 연구로서, 압전상은 Pb(Zr, Ti)O₃ 및 PbTiO₃ 세라믹 분말이 주로 이용되어 왔다. 폴리머 기지

상(matrix phase)으로는 polyurethane⁵⁾, silconrubber^{6,7)}, chloroprene rubber⁸⁾, eccogel^{9,10)}, polyvinyliden flu-
-oride¹¹⁾, 등 다양한 종류가 이용되었다. 이들의 연구는 주로 압전 세라믹 분말에 적당한 폴리머를 택하여 복합체 제조시 우수한 압전 특성을 갖는다는 것을 보여주는 것이 대부분이었다. 그러나 동일한 압전 세라믹 분말과 폴리머 상을 갖는 복합체에서도 이들의 제조과정에 따른 미세구조의 변화가 유전, 압전 특성에 얼마나 큰 영향을 보여주는 것인가에 대한 연구는 거의가 없는 실정이다.

본 연구에서는 복합체의 미세구조에 대한 영향으로 O-3형 복합체에 존재하는 기공의 양에 대한 유전 및 압전 성질을 연구하였다. O-3형 복합체에서는 서로 다른 3종류의 기공이 존재하며 이들 기공은 각기 다른 효과로 복합체의 압전 특성에 영향을 주리라 예상된다. 따라서 이들 복합체의 미세구조를 조절하여 세라믹 분말과 폴리머 기지내에 존재하는 계면기공의 양(interface porosity)을 변화시켜 복합체의 전기적 특성을 연구하고 이에 대한 해석을 하였다.

2. 이 론

복합체의 물성을 각 구성 성분의 물성으로 예견하여 수식화하려는 많은 시도가 이루어져 왔었다. O-3 복합체에서 세라믹 분말이 기지에 분산된 정도에 따라 두상간의 연결성을 단순화 시킬 수 있다.

Furukawa^{12,13)}등은 PZT 세라믹분말이 구(sphere)라는 가정하에서 압전계수를 유도하였다. 예를 들면 압전계수 d는 단위 stress(T)당 전기적 변위(D) 또는 단위 전계(E)당 유발된 기계적 변위(S)로 정의 된다. 복합체에서 이러한 정의에 입각하여 압전현상이 일어나는 경로를 고려하면 Fig. 1과 같다. 즉 복합체에 받은 stress(T)가 폴리머를 통해 압전 세라믹 분말에 전달되기 위해 국부응력계수(local stress coefficient)가 곱해지고 이에 의해 압전 분말에서 유발된 전기적 변위(D₁)가 시편 전체에 의한 변위(D)로 환산될 때 국부 전기적 변위(ϕL_E)로 환산되어 표시된다. 이와 같은 방법으로 다른 압전계수도 함께 표현하면 아래와 같다.

$$\begin{aligned}
 d &= \phi L_T L_E d_1 \dots\dots\dots (1) \\
 g &= \phi L_T L_D g_1 \\
 e &= \phi L_S L_E e_1 \\
 h &= \phi L_S L_D h_1
 \end{aligned}$$

piezoelectric phase : phase 1
 nonpiezoelectric continuous phase : phase 2
 volume fraction of phase 1 : δ

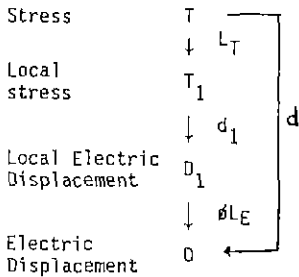


Fig.1. Piezoelectric constant for a two-phase composite system.

그러나 실제로는 복합체의 압전 분말이 구 상태로 존재하지 않으며 분말과 폴리머 matrix가 완전히 밀착되어 있지 않아 실험치와 상당한 오차를 보이고 있다. O-3 복합체에서는 3가지 유형의 기공을 고려할 수 있다. 본 연구에서는 폴리머 기지에 존재하는 기공을 기지기공(matrix pore), 세라믹 분말내에 존재하는 기공을 분말기공(particle pore), 그리고 세라믹-폴리머 경계에 있는 기공을 계면기공(interface pore)이라 명명하였다. 이를 Fig. 2에 도시하였다¹⁴⁾.

식(1)에서 알 수 있듯이 L_T 그리고 L_p 등이 바로 이러한 기공에 영향을 받으리라는 예측을 할 수 있으며 결국 복합체의 압전계수 d 가 계면기공(interface pore)에 영향을 받을 것으로 예상된다. 본 실험에서는 계면기공(interface pore)에 대한 영향을 고려하였다. 특히 유전, 압전성질의 계면기공율(interface porosity)에 대한 의존성을 porosity factor^{15,16)}를 가지고 논의하였다.



Fig.2. Microstructure of composite with three kinds of pore.

$$C = C_0 \exp(-bp) \dots \dots \dots (2)$$

C : properties
 C_0 ideal properties of materials with zero porosity
 b : porosity factor
 p : porosity

기공율(porosity)과 물성(C)의 semilogarithm plot 하여 기울기로 부터 porosity factor를 구하는 방법은 널리 알려진 방법이며 실제 실험상에서도 잘 들어맞고 있다. 식(2)에서 porosity factor(b)값은 그 물성의 기공율에 대한 의존도를 나타내는 것으로서, 본 연구에서는 계면기공율에 대한 유전, 압전계수의 의존도를 이러한 porosity factor(b)로서 비교하였다.

3. 실험

복합체에 이용되는 압전분말 재료로는 BaTiO₃ 분말을 택하였다. BaTiO₃(TAM P type)는 1350°C에서 3시간 소결한 것을 분쇄하여 사용하였으며, 분쇄된 분말은 84-117 μm 범위에 있는 것을 사용하였다. BaTiO₃의 소결성을 변화시키기 위해 소결온도를 1200-1350°C 범위로 조절하였다. 소결체의 밀도로 부터 기공율을 계산하고 각각의 유전, 압전 특성 의존성을 조사하였다. 한편 복합체는 1350°C에서 소결후 분쇄한 분말을 이용하여 제조된 복합체의 유전 및 압전 특성을 계면기공율에 대하여 조사하였다. 따라서 복합체의 3종류의 기공중 폴리머 기지 기공율과 세라믹 분말 기공율은 일정하게 놓고 계면기공율만 조절하였다.

기존의 O-3형 압전 복합체는 세라믹 분말을 액상 상태인 열가소성 수지의 폴리머와 혼합시켜 80-100°C의 온도에서 굳히는 방법이 대부분이다 이때 세라믹 분말을 폴리머에 분산시키는 방법이 매우 중요하며 이러한 제에서는 분말의 균일한 분산이 어렵게 된다. 복합체내에서 세라믹 분말의 분산이 잘 안된 경우, 전기적 특성은 시편의 위치마다 그 값이 큰 오차가 생겨 문제가 대두된다¹⁷⁾. 따라서 본 실험에서는 폴리머를 열경화성 수지로서 Phenolic resin 분말을 사용하여 세라믹 분말과의 균일한 혼합을 꾀하였다.

세라믹과 폴리머의 밀도 차가 크기 때문에 습식 혼합은 균일한 혼합 분말을 얻기가 어려웠다. 따라서 건식 혼합으로서 plastic 용기에 분말을 넣고 vibration shaker

(Spex 8000-115 mixer/mill)로 15 분간 혼합하였다. 이때 세라믹과 폴리머의 부피비는 60 : 40 으로 모든 복합체에 대해 일정하게 놓았다. 부피비는 세라믹스의 이론밀도와 폴리머의 경화(curing)시 밀도로 부터 계산하였다.

혼합된 분말의 폴리머 상을 경화시키기 위해 직경 17 mm의 금속틀에 넣고 가압상태에서 경화 온도까지 온도를 올렸다. 본 실험에서는 경화 온도를 여러가지로 변화시켜 보았으나 약 310°C (±10°C)에서 15 분간 유지시켰을 때가 가장 알맞는 경화 조건이었다. 한편 경화시 세라믹 분말과 폴리머의 경계에서 생기는 기공이 경화 압력에 좌우되므로 이 interface pore의 양을 조절하기 위해 압력 변화를 주어 여러가지 압력하에서 경화시켰다. 한편 폴리머 단독상만 가지고 경화시 압력 변화에 따라 밀도가 거의 일정한 것으로 부터 경화 조건에 따른 복합체의 기지 기공의 양(matrix porosity)은 변화가 없이 일정한 것으로 판단된다. 경화시켜 만들어진 복합체는 다이아몬드 cutter를 이용하여 일정 두께로 자른 후 정확한 두께 조절을 하기위해 SiC 1000 번 연마지로 polishing 하였다.

압전 복합체의 시편은 고온에서 폴리머의 분해 때문에 반드시 저온용 전극이 필요하다. 본 실험에서는 80-100°C 부근에서 30분만에 경화되는 은전극(Dupont 4929 air dried silver paste)을 사용하였다. 전극은 직경 14 mm인 screen을 통하여 시편에 printing 한 후 100°C온도에서 1시간 이상 건조시켰다.

압전 복합체는 압전 세라믹과 마찬가지로 그의 압전 특성을 나타내기 위해 분극처리(poling)과정을 통하여 쌍극자를 한 방향으로 정렬시켜야 한다. 본 실험에서는 100°C의 silicon oil속에서 30분간 전계를 가하여 분극 처리한 후 전계를 가한 상태에서 상온으로 냉각시켰다.

분극 후의 정전용량(capacitance)과 유전손실은 LF Impedance Analyzer(4192 A, Hewlet packard)를 사용하여 측정하였으며 압전계수(piezoelectric constant) d_{33} 는 Berlincourt d_{33} -meter를 사용하여 측정하였다. 이는 0.3 N의 힘을 시편에 가한 상태에서 기계적 진동을 주었을 때 전극 양단에 발생하는 전하를 검출하는 동적 측정장치이다. 또한 전기 기계 결합계수(electromechanical coupling factor)는 공진-반공진(resonance-antiresonance)법에 의해 측정하였다.

4. 결과 및 고찰

4.1 BaTiO₃세라믹의 유전 및 압전특성에 있어서 기공의 의존성

순수한 BaTiO₃소결체의 온도변화에 따른 유전, 압전 특성을 Table 1에 나타내었다. 예상한 바와 같이 BaTiO₃의 소결성이 감소함에 따라 유전율 및 압전계수 d_{33} 가 감소함을 알 수 있다. 한편 유전손실(dielectric loss)은 소결성에 관계없이 1.5-2.0%로 거의 비슷하였다. Fig. 3은 BaTiO₃의 소결성에 따른 미세구조를 보여준 것이다. 소결온도가 증가함에 따라 porosity가 감소하고 grain size도 증가함을 알 수 있다. BaTiO₃의 소결성 감소에 따른 유전율이 감소 현상을 porosity 증가의 원인으로만 해석하는데 있어서 무리가 있을 것으로 예상된다. 즉 grain size 및 shape, 그리고 distribution 등에 의한 영향일 수도 있다. 그러나 이들의 영향을 거의 무시될 수 있으리라 가정하였다. Arlt¹⁸⁾등의 보고에 의하면, grain size가 0.7-1 μm 전후에서 유전율의 급격한 증가를 보이고 그 이상에서 차츰 감소하다가 다시 2 μm 이상에서 다시 약간 증가한다고 하였다. 본 실험의 소결성 변화에 따른 grain size는 3-15 μm 범위의 것으로 grain size에 대한 유전율 변화는 거의 무시될 수 있다고 판단된다.

BaTiO₃의 porosity 증가에 따라 유전율 및 압전계수 d_{33} 가 현저히 감소한 반면 전압계수 g_{33} 는 소결성에 관계없이 거의 일정한 값을 가짐을 알 수 있다. 이러한 이유는 porosity에 대한 압전계수 d_{33} 와 유전율의 의존성이 비슷하기 때문에 $g_{33} = d_{33} / \epsilon_{33}$ 로 표현되는 전압계수 g_{33} 는 porosity에 무관하게 일정하다고 판단된다. 이러한 결과를 보이기 위해 Fig. 4에 BaTiO₃세라믹스의 유전율 및 압전계수 d_{33} 와 porosity에 대해 logarithm plot한 것을 나타내었다. 각 함수의 기울기 즉 porosity factor가 유전율에서 5.7, 그리고 압전계수 d_{33} 에서 5.0로 거의 비슷한

Table 1. Density and Electrical Properties of BaTiO₃ Ceramics as a Function of Sintering Temperature.

Sintering Temp. (Time)	1350°C	1300°C	1250°C		1200°C
	(3 h)	(3 h)	(3 h)	(1 h)	(3 h)
Density	5.4	5.2	5.1	5.0	4.6
ϵ_r	1966	1897	1541	1327	1018
tan(%)	1.6	1.5	1.6	2.1	1.9
d_{33} (pC/N)	191	161	139	115	103
g_{33} (10 ⁻³ Vm/N)	11	10	10	10	11

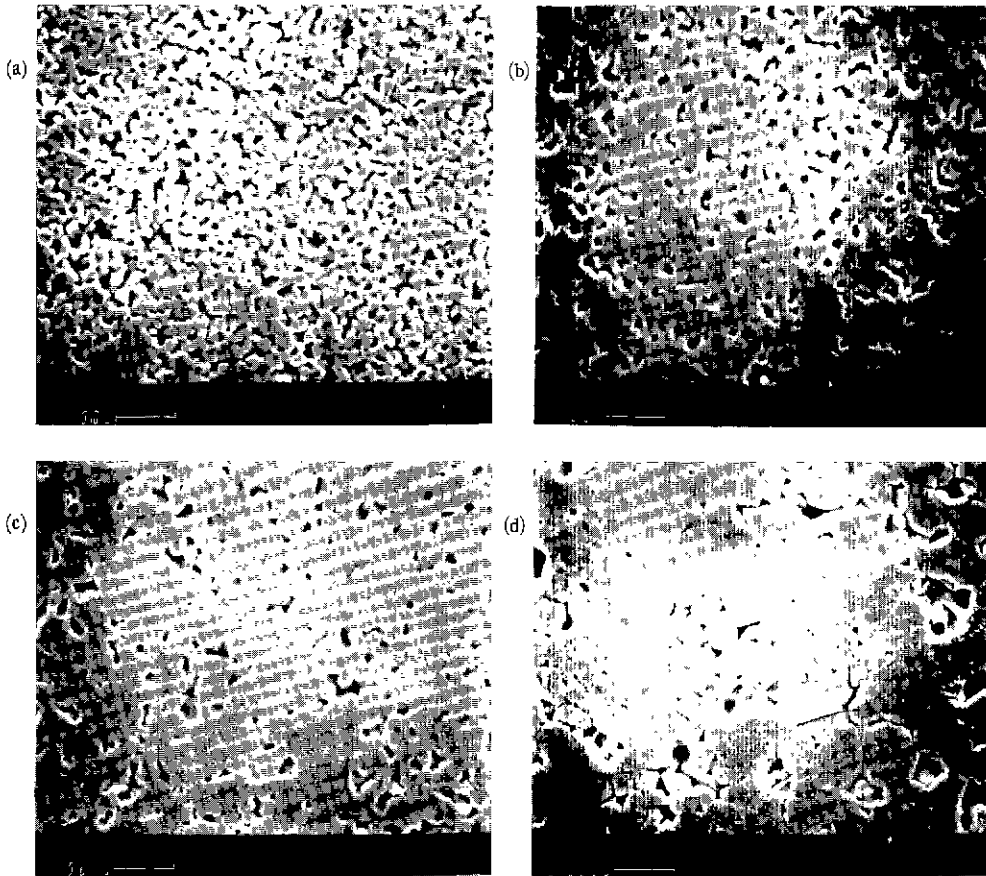


Fig. 3. Scanning electron Micrographs of barium titanate sintered at (a) 1200°C, (b) 1250°C, (c) 1300°C, and (d) 1350°C

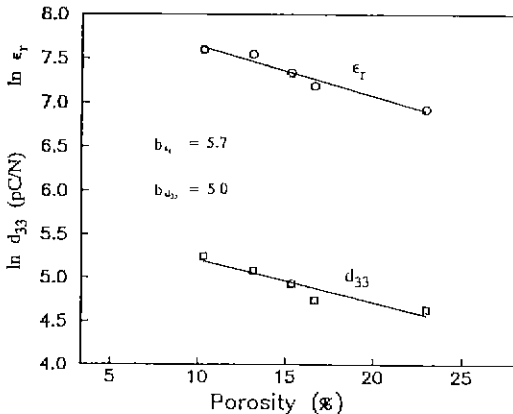


Fig. 4. Porosity factor of dielectric and piezoelectric constant of barium titanate ceramics.

값을 보였다. 이러한 결과는 유전율 및 압전계수 d₃₃의

porosity 의존성이 비슷함을 보여준다.

4.2 BaTiO₃-폴리머 복합체의 유전 및 압전 특성과 Interface Porosity 의존성

BaTiO₃-폴리머 복합체에서는 기지기공율(matrix porosity)과 분말기공율 (particle porosity)을 일정하게 놓았다. 그리고 계면기공율(interface porosity)은 복합체 제조시 curing pressure의 변화로 조절하였다. Fig. 5에 복합체의 curing pressure에 따른 계면기공의 양상을 보인 미세구조 사진을 보았다. Curing pressure가 zero인 Fig. 5(a)에서는 BaTiO₃ particle과 폴리머 경계에 interface pore가 많이 존재하는 것을 알 수 있다. 3000 psi에서 curing한것도 interface pore가 꽤 발달된 것을 볼 수 있으며 30000 psi의 높은 압력에서는 거의 발견되지 않음을 알 수 있다.

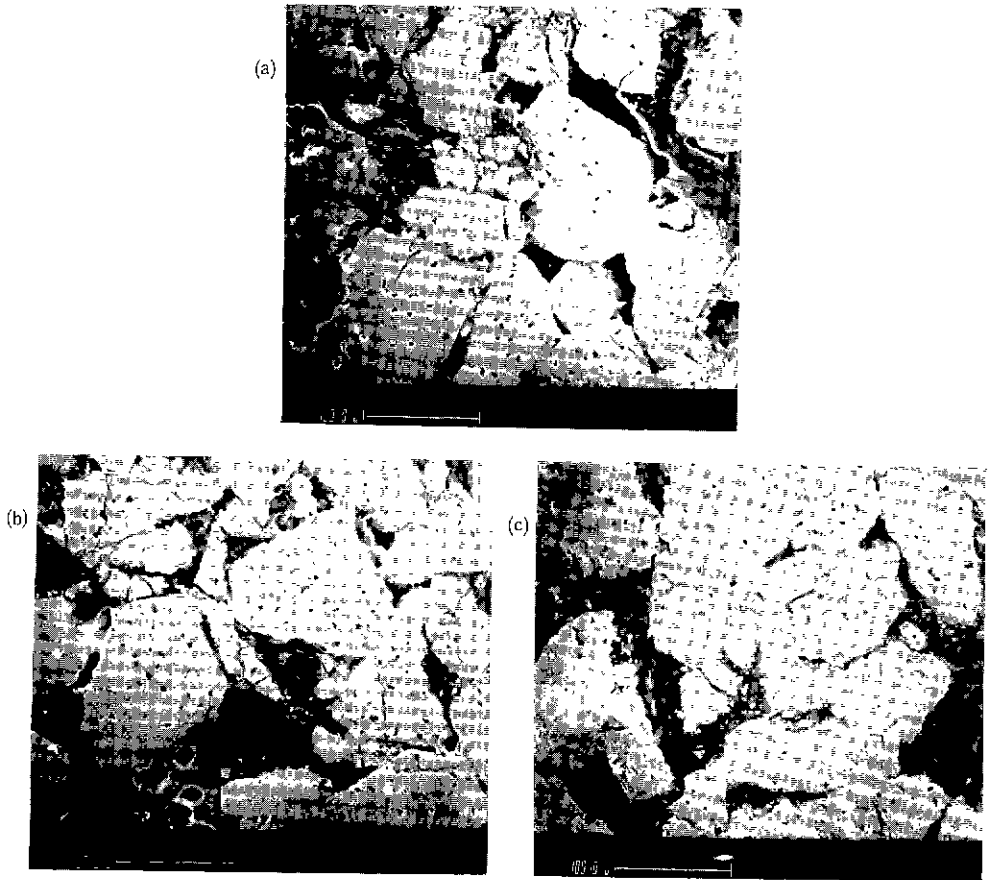


Fig. 5. Scanning electron Micrographs of composite cured at 310°C under (a) 0 psi, (b) 3,000 psi and (c) 30,000 psi.

이들 복합체의 curing pressure 에 따른 밀도 변화를 Fig. 6 에 나타내었다. 6000 psi 까지는 밀도가 현저히 증가하다가 그 이상에서는 압력 증가에 따른 밀도 증가가 완만함을 알 수 있다. Fig. 6 에서 밀도 증가는 계면기공률 (interface porosity) 의 감소를 뜻한다. 모든 복합체에 대해 BaTiO₃ 분말의 밀도는 5.77 g/cm³ (96%) 를 갖는 동일한 분말을 사용하였다. 폴리머의 밀도 (1.34 g/cm³) 와 분말의 밀도로 부터 구한 복합체의 이론 밀도를 점선의 연장선 점에 표시하였다. 이것은 복합체내의 interface pore 가 전혀 없는 이상적인 복합체이다.

계면기공률 변화에 따른 복합체의 유전, 압전특성을 Table 2 에 나타내었다. 복합체의 계면기공률이 감소함에 따라 유전율 및 압전계수 d₃₃ 가 증가함을 알 수 있다. 한편 순수 BaTiO₃ 에서 기공률 감소에 따라서 전압계수 g₃₃ 의 변화가 거의 없었던 것과는 달리 복합체의 전압계수

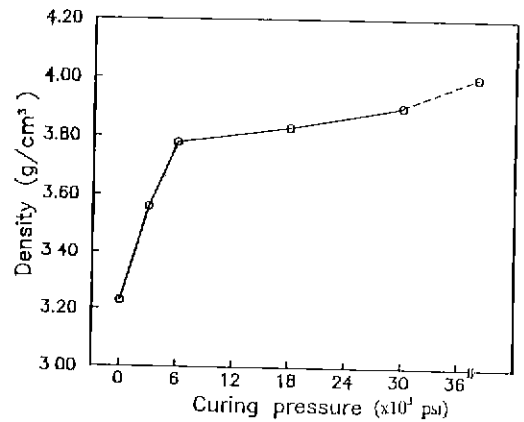


Fig. 6. Density variation of BaTiO₃-polymer composite as a function of curing pressure.

g₃₃ 는 interface porosity 감소에 따라 증가됨을 알 수 있

Table 2. Electrical Properties of BaTiO₃-Polymer Composite as a Function of Interface Porosity.

Interface Porosity (%)	19.3	11.0	5.5	4.3	2.5
ϵ_r	95	136	163	194	208
$\tan(\%)$	1.4	1.6	1.5	1.4	1.4
$d_{33}(\text{pC/N})$	7	14	26	32	34
$g_{33}(10^{-9}\text{Vm/N})$	8	12	18	19	18

다. 이것은 복합체의 계면기공율에 따른 유전율 감소보다 압전계수 d_{33} 의 감소 효과가 더 크기 때문인 것으로 해석된다. 이의 정량적 해석을 위해 유전율 및 압전계수 d_{33} 에 대한 계면기공율의 logarithm plot 한 것으로 부터 interface porosity factor를 구하였다. 이를 Fig. 7에 나타내었다. 복합체의 유전율에 대한 interface porosity factor는 4.6로서 압전계수 d_{33} 에 대한 interface porosity factor 9.8보다 훨씬 작음을 알 수 있다. 순수한 BaTiO₃ 세라믹스에서 유전율 및 압전계수 d_{33} 의 porosity factor가 비슷한 반면에 복합체에서 interface porosity factor가 압전계수 d_{33} 에서 훨씬 크게 나타났다. 이것은 세라믹 내에 존재하는 pore와, 폴리머와 분말 사이에 존재하는 pore의 종류가 다르기 때문이다. 계면기공이 압전계수 d_{33} 에 더 큰 효과를 미치는 이유는 앞서 설명하였듯이 식 (1)에서 묘사한 압전특성을 나타내는 과정에서 계면기공이 stress absorber로 작용하여 국부응력계수(L_T)와 국부전계계수(L_E)를 감소시키기 때문으로 해석된다. 따라서

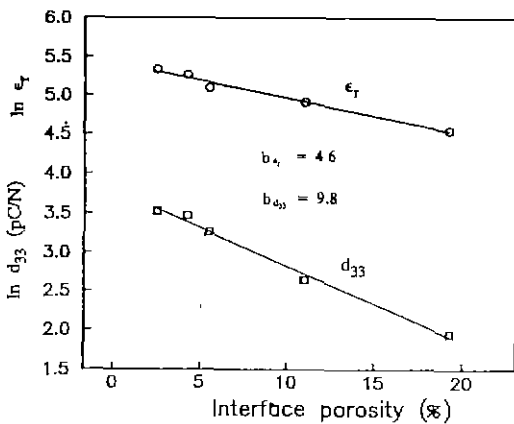


Fig. 7. Interface porosity dependence of dielectric and piezoelectric constant of BaTiO₃-polymer composite.

Table 3. Planar Coupling Factor(K_p), Acoustic Impedance, and Frequency Constants of (a) BaTiO₃ and (b) BaTiO₃-Polymer Composite as a Function of Porosity.

(a) Barium Titanate.

Porosity (%)	10.4	13.2	15.3	16.7	23.0
K_p	0.36	0.30	0.19	0.18	0.17
$Z_a(\text{Mrayl})$	23	22	21	20	17
$N_p(\text{Hz m})$	2703	2657	2604	2552	2387

(b) Barium Titanate-Polymer Composite.

Interface Porosity (%)	2.5	4.3	5.5
K_p	0.22	0.19	0.17
$Z_a(\text{Mrayl})$	9.5	9.4	8.8
$N_p(\text{Hz m})$	1363	1358	1290

BaTiO₃-폴리머 복합체에서도 계면기공이 적은 방향으로 복합체 제조 공정이 진행되는 것이 유리함을 알 수 있다.

4.3 BaTiO₃ 및 복합체의 음향 임피던스 및 주파수 특성
순수한 BaTiO₃ 세라믹과 복합체의 coupling factor(k)와 음향 임피던스, 그리고 주파수 정수를 구하기 위해 공진-반공진 법을 이용하였다. 순수한 BaTiO₃ 및 복합체의 기공율에 따른 planar coupling factor(K_p)와 음향 임피던스(Z_a), 그리고 주파수 정수(N_p)를 Table 3에 나타내었다. BaTiO₃는 porosity 증가에 따라 K_p 및 음향 임피던스(Z_a)가 감소함을 알 수 있다. 또한 주파수 정수도 porosity 증가에 따라 감소하며 이는 공진주파수 f_r 가 감소함을 뜻한다.

한편 복합체에서도 계면기공율에 따라 K_p 및 음향 임피던스가 감소하였다. BaTiO₃의 음향 임피던스가 약 20 Mrayl(1 Mrayl = 10⁶kg/m²s) 정도인데 비해 압전복합체는 8-9 Mrayl 정도로 감소하였다. 참고로 PZT 세라믹스는 약 34 Mrayl, 물은 1.4 Mrayl 정도이다. 따라서 음향 임피던스 면에서 보면 복합재료는 순수 세라믹스보다 그 특성이 우수함을 알 수 있다.

5. 결론

BaTiO₃ 세라믹 분말이 phenolic resin polymer 기지에 분산된 O-3형 복합체의 interface porosity에 따른 유전, 압전 특성을 조사하였다.

1) BaTiO₃세라믹 소결체는 유전율 및 압전계수 d_{33} 의 porosity factor 가 5.7, 5.0로서 거의 비슷하였고, 전압 계수 g_{33} 는 porosity 에 무관하였다.

2) 복합체의 유전율 및 압전계수 d_{33} 의 interface porosity factor 는 4.6, 9.8로서 압전 계수 d_{33} 의 interface porosity 의존성이 훨씬 컸다. 또한 전압계수 g_{33} 도 interface porosity 증가에 따라 감소하였다.

3) BaTiO₃세라믹스의 음향 임피던스 Z_a 는 약 20 Mrayl 인 반면 복합체는 8-9 정도로 작아 수중 청음기 응용에 유리한 값을 보였다.

REFERENCES

1. L.A. Pauer, "Flexible Composite Materials", IEEE Intl. Conv. Rec. 1 (1975).
2. T. Kitayama, "Flexible Piezoelectric Materials", *Ceramics*, **14** (3), 209 (1979).
3. H. Banno and S. Saito, "Piezoelectric and Dielectric Properties of Composites of Synthetic Rubber and PbTiO₃ or PZT", *Jpn. J. App. Phy.*, **22-2**, 67 (1983).
4. R. E. Newnham, D.P. Skinner and L.E. Cross, "Connectivity and Piezoelectric-Pyroelectric Composites", *Mat. Res. Bull.* **3**, 525 (1978).
5. M.J. Haun, P. Moses, T.R. Gururaja, W. A. Schulze and R.E. Newnham, "Transversely Reinforced 1-3 and 1-3-0 Piezoelectric Composites", *Ferroelectrics*, **49**, 259 (1983).
6. T.G. Gururaja, W.A. Schulze and L.E. Cross, "Resonant Modes of Vibration in Piezoelectric PZT-Polymer Composites with Two Dimensional Periodicity", *Ferroelectrics*, **54**, 183 (1984).
7. M.Y. Zha, X.Y. Jin and B.S. Wen, "Study on the Stress Stability of PZT Composite", Proceeding of the sixth IEEE International Symposium on Application of Ferroelectrics, 246 (1986).
8. J. Mendiola and L. Pardo, "A XRD Study of 90° Domains in Tetragonal PLZT Under Poling", *Ferroelectric*, **54**, 199 (1984).
9. R.E. Newnham, A. Safari, J. Giniwicz Z, and B.H. Fox, "Composite Piezoelectric Sensors", *Ferroelectric*, **60**, 15 (1984).
10. Y.S. Ng and A.D. McDonald, "X-ray Diffraction Studies of Domain Alignments in Modified PZT", *Ferroelectrics*, **62**, 167 (1985).
11. T. Yamada, T. Ueda and T. Kitayama, "Piezoelectricity of an High-Content Lead Zirconate Titanate/Polymer Composite", *J. Appl. Phys.*, **53** (16), 4328 (1982).
12. T. Furukawa, K. Ishida and E. Fukada, "Piezoelectric Properties in the Composite Systems of Polymers and PZT Ceramics", *J. Appl. Phys.*, **50** (7), 4904 (1979).
13. T. Furukawa, K. Fujino and E. Fukada, "Electromechanical Properties in the composites of Epoxy Resin and PZT Ceramics", *Jpn. J. App. Phy.*, **15** (11), 2119 (1976).
14. H.G. Lee and H.G. Kim, "Influence of Microstructure on the Dielectric and Piezoelectric Properties of Lead Zirconate Titanate-Polymer Composites", *J. Am. Ceram. Soc.*, **72** (6), 938-942 (1989).
15. R.W. Rice, "Treatise on Materials Science and Technology, 11: Properties and Microstructure", 199-381, by R. K. MacCrone, Academic Press, Orlando, (1977).
16. K. Okazaki and K. Nagata, "Mechanical Behavior of Materials V 4: Concrete and Cement Paste, Glass and Ceramics", 404-412, *Society of Material Science, Japan*, (1972).
17. A. Safari, A. Halliyal, L.J. Bowen, and R. E. Newnham, "Flexible Composite Transducers", *J. Am. Ceram. Soc.*, **65** (4), 207 (1982).
18. G. Arlt, D. Hennings and G.D. With, "Dielectric Properties of Fine-Grained Barium Titanate Ceramics", *J. Appl. Phys.*, **58** (4), 1619 (1985).