

## P(VDF-TrFE-CFE)를 이용한 초소형 압전 적층형 진동 출력 소자의 제작

조성우<sup>1</sup>, Melodie Glasser<sup>1</sup>, 김재규<sup>1</sup>, 류정재<sup>1</sup>, 김윤정<sup>3</sup>, 김혜진<sup>3</sup>, 박강호<sup>3</sup> , 홍승범<sup>1,2</sup> 

<sup>1</sup> 한국과학기술원 신소재공학과

<sup>2</sup> 한국과학기술원 나노융합연구소

<sup>3</sup> 한국전자통신연구원 ICT 소재부품연구소 융복합센서연구그룹

### Fabrication of Ultra-Small Multi-Layer Piezoelectric Vibrational Device Using P(VDF-TrFE-CFE)

Seongwoo Cho<sup>1</sup>, Melodie Glasser<sup>1</sup>, Jaegy Kim<sup>1</sup>, Jeongjae Ryu<sup>1</sup>, Yunjeong Kim<sup>3</sup>, Hyejin Kim<sup>3</sup>,  
Kang-Ho Park<sup>3</sup>, and Seungbum Hong<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Department of Materials Science and Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Daejeon 34141, Korea

<sup>2</sup> Institute for the NanoCentury, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Daejeon 34141, Korea

<sup>3</sup> Multidisciplinary Sensor Research Group, ICT Materials & Components Research Laboratory, Electronics and Telecommunications Research Institute, Daejeon 34129, Korea

(Received November 22, 2018; Revised December 11, 2018; Accepted December 20, 2018)

**Abstract:** P(VDF-TrFE-CFE) (Poly (vinylidene fluoride-trifluoroethylene-chlorofluoroethylene)), which exhibits a high electrostriction of about 7%, can transmit tactile output as vibration or displacement. In this study, we investigated the applicability of P(VDF-TrFE-CFE) to wearable piezoelectric actuators. The P(VDF-TrFE-CFE) layers were deposited through spin-coating, and interspaced with patterned Ag electrodes to fabricate a two-layer 3.5 mm × 3.5 mm device. This layered structure was designed and fabricated to increase the output and displacement of the actuator at low driving voltages. In addition, a laser vibrometer and piezoelectric force microscope were used to analyze the device's vibration characteristics over the range of ~200~4,200 Hz. The on-off characteristics were confirmed at a frequency of 40 Hz.

**Keywords:** P(VDF-TrFE-CFE), Relaxor ferroelectrics, Vibrational device, Laser vibrometer, Piezoresponse force microscopy

## 1. 서론

압전 소재(piezoelectric material)는 물질에 가해지는 기계적인 스트레스를 표면에 전하로 방출하는 정압전효과(direct piezoelectric effect), 물질에 전압이 가해지면

스트레인이 변화하는 역압전효과(inverse piezoelectric effect)를 나타내는 소재이다. 이 중에서 역압전효과를 이용하면 전기적 에너지를 기계적 에너지로 변환할 수 있어서 압전 소재는 액추에이터 소자로 많이 응용되어 왔다. 최근에는 햅틱 터치스크린이나 가상/증강 현실에서 촉각의 전달 및 모사의 응용을 위해 촉각을 모사하거나 전달해 주는 웨어러블 촉각 액추에이터의 필요성이 대두되고 있다 [1]. 이를 위해서는 인간이 감지할 수 있는 주파수 영역대인 200~600 Hz 구간에서 저전압 구동과 함께 고출력과 고변위의 특성을 지녀야만 한다. 하지만 1 cm × 1 cm 이하의 크기에서 기존 MEMS 공정

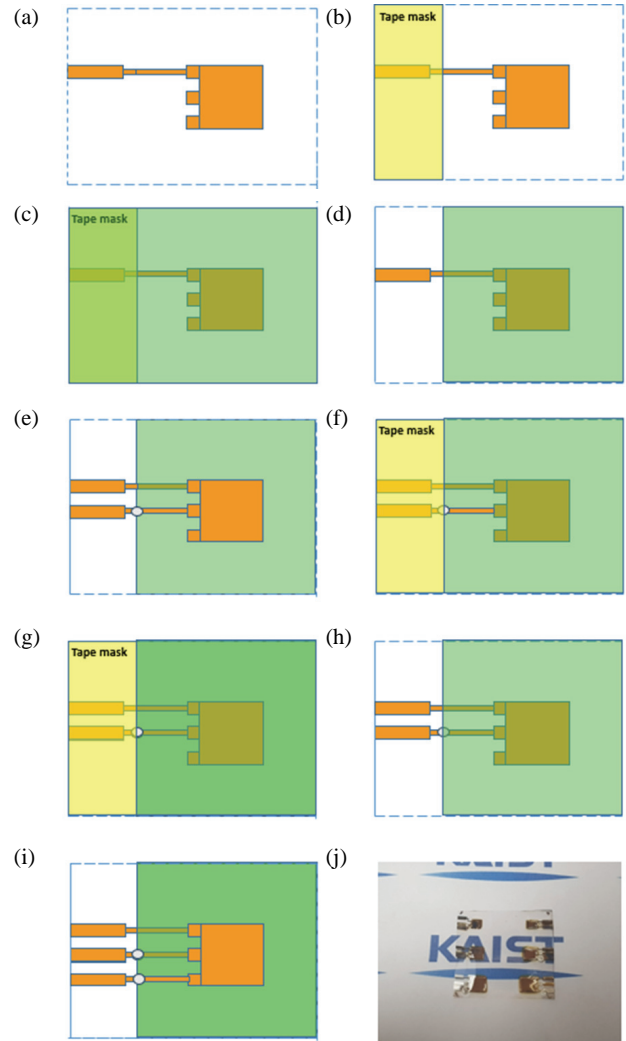
✉ Kang-Ho Park; [pkh@etri.re.kr](mailto:pkh@etri.re.kr)  
 Seungbum Hong; [seungbum@kaist.ac.kr](mailto:seungbum@kaist.ac.kr)

기반의 실리콘 액추에이터나 압전 세라믹을 이용한 액추에이터는 대부분 수 kHz 이상의 공진 주파수를 가지고 있어 웨어러블 액추에이터로서의 적용이 어렵다. 진동 출력 소자의 공진주파수는 소자의 크기, 소자를 이루는 소재, 소자의 디자인에 따라 바뀌므로 공진 주파수를 인간이 감지할 수 있는 영역 대에 맞추기 위해서는 이러한 요소들에 대한 고려가 필요하다. 본 연구에서는 PVDF (Poly (vinylidene difluoride) 기반의 P(VDF-TrFE-CFE) (Poly (vinylidene-difluoride-trifluoroethylene-chlorofluoroethylene)를 압전 재료로 선정하여 연구를 진행하였다. 기존에 많이 연구되었던 PVDF는 플루오린 원자의 높은 전기 음성도에 의해 고분자 물질 중 상대적으로 높은 다이폴 모멘트를 형성할 수 있고, 특히  $\beta$ 상의 경우에 다른 상보다 큰 압전 특성을 지니게 된다 [2-8]. PVDF에 TrFE (trifluoroethylene)를 단위체로써 첨가하면 결정성이 향상되고, 열역학적으로 가장 안정한 상이  $\beta$ 상이 되므로, 강유전 고분자로 센서, 액추에이터, 에너지 하베스터 등 다양한 분야에 적용될 수 있다. 이러한 P(VDF-TrFE)에 CFE (chlorofluoroethylene)를 첨가한 P(VDF-TrFE-CFE)의 경우, 상대적으로 큰 CFE가 결함으로 작용하여 도메인의 크기를 줄일 뿐만 아니라 기존 강유전 고분자가 아닌 완화형 강유전체의 특성을 가지게 된다. P(VDF-TrFE-CFE)를 이용하면 완화형 강유전 소재 특성상 풀링 공정을 생략할 수 있고, 고출력, 고변위의 진동출력 소자를 용이하게 제작할 수 있다 [9].

## 2. 실험 방법

### 2.1 진동 출력 소자 제작 공정

2층의 압전 진동 출력 소자를 제작하기 위해  $25\ \mu\text{m}$  두께를 가지는 PET 기판을 아세톤, 에탄올, 증류수로 세척 후 실리콘 기판 위에  $3\ \text{cm} \times 3\ \text{cm}$  크기로 잘라서 붙이고, 산소 플라즈마 처리를 통해 기판과 전극 간 접착력을 높인 후, 웨도우 마스크를 이용하여 하부 전극을 증착하였다. 하부 전극 증착 후에 패드 영역을 테플론 테이프로 감싸고, methyl ethyl ketone에 10 wt%의 P(VDF-TrFE-CFE)가 녹아 있는 용액을 30초 동안 3,000 rpm에서 스핀 코팅 공정을 통해 압전 풀리머 후막을 증착하였다. 이후 진공에서 1시간 건조하고  $117^\circ\text{C}$ 에서 어닐링하고, 산소 플라즈마 처리를 통해 접착력을 높인 다음, 계면 전극을 스퍼터링 공정을 통



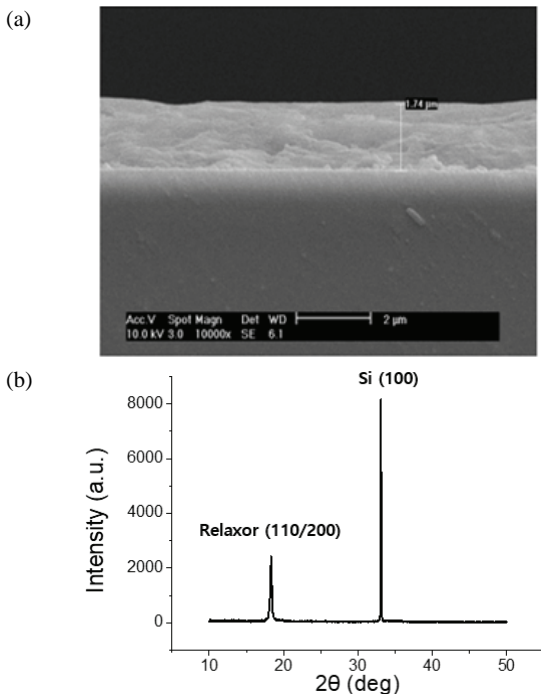
**Fig. 1.** Fabrication process of a multilayer actuator and a photograph of device. (a) Bottom electrode deposition on flexible PET substrate, (b) tape masking of electrode for solution processing, (c) spin coating of P(VDF-TrFE-CFE), (d) detachment of tape mask, (e) internal electrode deposition and electrode connection, (f) tape masking of electrode for solution processing, (g) spin coating of P(VDF-TrFE-CFE), (h) detachment of tape mask, (i) top electrode deposition and electrode connection, and (j) two layered piezoelectric vibrational actuator.

해 증착하였다. 이때 패드 영역과 소자영역의 단차 때문에 전극이 연결되지 않는 문제점이 발생하는데, Ag 페이스트를 통해 전극을 연결시켰다. 패드 영역을 테플론 테이프로 감싸고 스핀코팅, 건조, 어닐링 공정을 통해 압전 고분자 후막을 소자 위에 제작하고, 산소 플라즈마 처리 후 상부 전극을 증착하고 Ag 페이스트를 통해 전극을 연결하여 소자를 제작하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 Scanning electron microscope와 X-ray diffraction을 이용한 필름 특성 분석

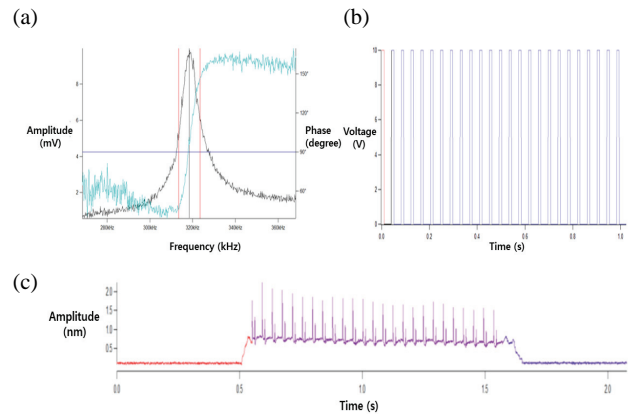
10 wt%의 P(VDF-TrFE-CFE)와 methyl ethyl ketone 용액의 스핀 코팅 후 117°C에서 어닐링 후, 그림 2(a)의 단층 막에 대한 SEM 단면 사진을 보면, 구멍 없이 밀집된 고분자막이 형성되어 있음을 알 수 있고, 두께는 약 1.74  $\mu\text{m}$ 이다. 그림 2(b)에서 X선 회절 분석 결과 relaxor 상의 (110)/(200) 면이 잘 형성되어 있고, 완화형 강유전 고분자 상 외에 다른 상이 형성되지 않음을 알 수 있었다 [10].



**Fig. 2.** (a) Cross-sectional SEM image and (b) x-ray diffraction (XRD) pattern of P(VDF-TrFE-CFE) single layer.

#### 3.2 압전 감응 힘 현미경(piezoresponse force microscope)을 이용한 소자의 진동 특성 평가

그림 3(a)의 압전 감응 힘 현미경(PFM) tuning 그래프에서 보는 것과 같이 접촉 공진주파수는 318.23 kHz이고, 작동 전압은 3 V이다. 그림 3(b)와 같은 입

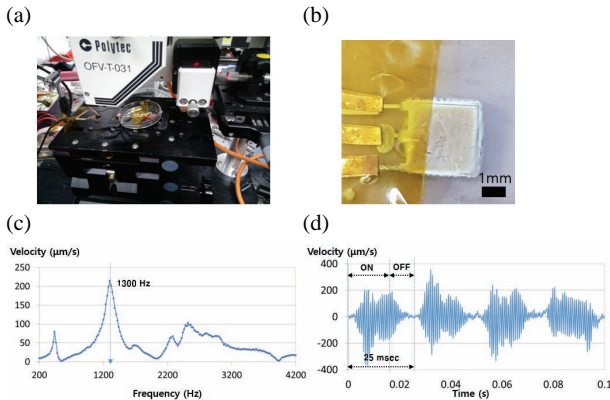


**Fig. 3.** PFM amplitude and phase measurement. (a) PFM amplitude and phase as a function of ac drive frequency to the PFM tip, (b) pulse voltage input signal to the sample, and (c) corresponding PFM amplitude, induced by the input voltage in (b), as a function of time at a fixed point.

력 전압을 주었을 때 소자의 진동 특성이 그림 3(c)와 같이 측정되었다. 그림 3(c)에서 보는 것과 같이 전압을 줄 때 진폭의 변화를 통해 소자가 진동하고 있는 양상을 관찰할 수 있었다. 압전 감응 힘 현미경 측정 결과로부터 나온 진폭을 작동 전압으로 나누어 주면 역압전계수를 계산할 수 있는데, 열역학적 평형상태에서는 정압전계수와 역압전계수의 크기는 같다는 것을 이용하여 정압전계수를 계산할 수 있다 [11]. 유효압전계수를 계산해 보면, 전압을 가해 주는 동안의 유효압전계수는  $67.2 \pm 16.3$  pC/N이고 전압을 가해 주지 않는 동안의 유효압전계수는  $35.8 \pm 4.8$  pC/N이다. PFM의 공진주파수 영역에서 진폭을 측정하였으므로, 실제의 압전계수보다 높게 계산되었다. 이는 접촉공명을 활용해서 측정했기 때문이며, 전압을 가한 조건에서 43 pC/N으로 문헌에서 보고된 값과 유사함을 알 수 있었다. 결과적으로 본 PFM 실험을 통해 가진 주파수 25 Hz에서 P(VDF-TrFE-CFE) 적층 소자의 진동 특성을 관찰할 수 있었다.

#### 3.3 레이저 바이브로미터를 이용한 소자의 진동 특성 평가

마지막으로 laser vibrometer를 통해 제작된 2층의 압전 진동 출력 소자의 진동 변위 특성을 평가하였다. 하부와 상부의 전극을 ground로 연결하고 중간층의 전극에 15 V의 진폭으로 교류 전압을 인가하면서 소



**Fig. 4.** Laser vibrometer measurement. Photographs of (a) laser vibrometer setup and (b) 2 layer piezoelectric vibrational device. Plots of (c) frequency scan data of velocity of 2 layer actuator and (d) vibrational velocity of 2 layer actuator at resonance frequency of 1,300 Hz.

자로부터 반사된 레이저를 통해 소자 박막의 진동의 속도와 공진 주파수를 알아보기 위해 200 Hz부터 4,200 Hz까지 속도를 측정하였다.

그림 4에서 보는 바와 같이 P(VDF-TrFE-CFE) 적층 소자의 경우 450 Hz와 1,300 Hz에서 공진이 일어나게 되는데, 이 1,300 Hz 주파수 영역에서 25 ms 주기로 15 ms 동안만 15 V의 진폭으로 교류 전압을 가하게 되면 그림 4(c) 및 (d)와 같은 진동 속도 특성을 관찰할 수 있었다. 전압을 가할 때만 소자가 떨림을 확인하였고, 최대 진동 속도는 350  $\mu\text{m/s}$ 이다. 이러한 laser vibrometer 측정을 통해 가진 주파수 40 Hz에서 소자가 진동하는 속도를 측정할 수 있었고 이를 통해 진동 소자가 촉각 전달 소자로 응용될 수 있음을 확인하였다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 완화형 강유전 고분자 소재인 P(VDF-TrFE-CFE)를 이용하여 초소형 웨어러블 진동 출력소자의 개발을 위해 적층형 압전 액추에이터로의 응용 가능성을 연구하였다. P(VDF-TrFE-CFE)와 Ag 전극의 적층 형태의 액추에이터를 압전 감응 힘 현미경과 레이저 바이브로미터로 공진주파수의 진동 스펙트럼을 측정하였고 가진 주파수 40 Hz에서 on-off 특성을 확인하였다. 향후 촉각을 모사하는 액추에이터 분야에 적용될 것으로 기대하고, 추후에는 압전 세라믹과의 복합체 형태로 제작하여 출력 효율을 높이고자 한다.

#### ORCID

Kang-Ho Park  
Seungbum Hong

<https://orcid.org/0000-0003-0422-2930>  
<https://orcid.org/0000-0002-2667-1983>

#### 감사의 글

이 논문은 2018년도 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 정보통신기술진흥센터의 지원을 받아 수행된 연구임(No.2017-0-00048, Skintronics를 위한 감각 입출력 패널 핵심 기술 개발).

#### REFERENCES

- [1] S. Wang, J. Y. Oh, J. Xu, H. Tran, and Z. Bao, *Acc. Chem. Res.*, **51**, 1033 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acs.accounts.8b00015>]
- [2] S. J. Kang, Y. J. Park, J. Y. Hwang, H. J. Jeong, J. S. Lee, K. J. Kim, H. C. Kim, J. Huh, and C. Park, *Adv. Mater.*, **19**, 581 (2007). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adma.200601474>]
- [3] D. Kim, S. Hong, J. Hong, Y. Y. Choi, J. Kim, M. Park, T. H. Sung, and K. No, *J. Appl. Polym. Sci.*, **130**, 3842 (2013). [DOI: <https://doi.org/10.1002/app.39415>]
- [4] Y. J. Park, S. J. Kang, C. Park, K. J. Kim, H. S. Lee, M. S. Lee, U. I. Chung, and I. J. Park, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 242908 (2006). [DOI: <https://doi.org/10.1063/1.2207831>]
- [5] Y. Y. Choi, T. G. Yun, N. Qaiser, H. Paik, H. S. Roh, J. Hong, S. Hong, S. M. Han, and K. No, *Sci. Rep.*, **5**, 10728 (2015). [DOI: <https://doi.org/10.1038/srep10728>]
- [6] S. J. Kang, Y. J. Park, J. Sung, P. S. Jo, C. Park, K. J. Kim, and B. O. Cho, *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 012921 (2008). [DOI: <https://doi.org/10.1063/1.2830701>]
- [7] H. Paik, Y. Y. Choi, S. Hong, and K. No, *Sci. Rep.*, **5**, 13209 (2015). [DOI: <https://doi.org/10.1038/srep13209>]
- [8] J. Ryu, K. No, Y. Kim, E. Park, and S. Hong, *Sci. Rep.*, **6**, 36176 (2016). [DOI: <https://doi.org/10.1038/srep36176>]
- [9] S. T. Choi, J. O. Kwon, and F. Bauer, *Sens. Actuators, A*, **203**, 282 (2013). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.sna.2013.08.049>]
- [10] M. R. Gadinski, Q. Li, G. Zhang, X. Zhang, and Q. Wang, *Macromolecules*, **48**, 2731 (2015). [DOI: <https://doi.org/10.1021/acs.macromol.5b00185>]
- [11] D. Damjanovic, *Rep. Prog. Phys.*, **61**, 1267 (1998). [DOI: <https://doi.org/10.1088/0034-4885/61/9/002>]