

## 고출력 압전소자를 위한 압전 세라믹(PMN-PT-PZ)조성의 전기기계적 특성

이강원, 흥종국, 정수현\*, 이종섭, 박철현, 임기조  
충북대학교 전기공학과, \*대원공과대학 전기과

### Electromechanical Properties of PMN-PT-PZ Composition for High Power Device

K. W. Lee, J. K. Hong, S. H. Jeong\*, J. S. Lee, C. H. Park, K. J. Lim  
Dept. of Electrical Eng., Chungbuk Nat'l Univ. and \*Daewon Tech. College

**Abstract** - This paper is the study for piezoelectric properties of PMN-PT-PZ composition for high power piezoelectric device. It needs the properties such as high mechanical quality factor( $Q_m$ ), high electromechanical coupling coefficient( $k_p$ ) and high dielectric strain constant( $d_{31}$ ), and the stable electromechanical properties under high vibration level.

For acquiring this results, the value of  $x$  is changed in  $0.1\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 + (0.9-x)\text{PbZrO}_3 + x\text{PbTiO}_3$  composition to find MPB(morphotropic phase boundary), and the piezoelectric constants is measured by resonance-antiresonance frequency method, based on IRE Standard. Also, it is measured as a function of the amount of additive,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ . When the composition is applied to high power device, the electromechanical properties is measured by laser vibrometer to confirm the reliability under high vibration level. From these results, PMN-PT-PZ composition is shown excellent properties and capacity of application to high power device.

#### 1. 서 론

최근에는 초음파 모터, 압전 액츄에이터 또는 압전 변압기 등과 같은 고출력 압전 디바이스 분야로의 응용에 관한 연구가 점점 증가되는 경향이 있으며, 이에 부응할 만한 압전 세라믹스에 관한 연구도 계속 이루어지고 있다[1-3].

이와 같은 고출력용 압전 세라믹스는 고전계가 인가되고, 대진폭이 요구되므로 특히 온도나 주파수 안정성이 좋고, 경시 변화나 기계적 피로가 작아야 한다. 따라서, 큐리점이 높아야 하며, 압전 특성 중 압전 상수  $d_{31}$ ,  $d_{33}$  및 전기기계 결합계수  $k_p$ , 기계적 품질계수  $Q_m$  등이 높아야 하며, 순실계수  $\tan\delta$ 가 작을수록 좋게 된다.

압전 세라믹 제조 기술의 급속한 발전과 더불어 PZT 계를 중심으로 3성분계 또는 그 이상의 다성분계 조성에 대한 연구가 이루어지고 있으며, 3성분계 이상인 경우 PZT계에 비해 소결성이 좋고, 용이한 분위기 조건 또는 조성 변화의 폭이 넓고, 첨가제에 의해 요구되는 특성을 만족시키기가 용이한 장점이 있다[4].

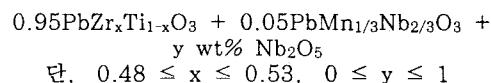
본 논문에서는 고출력·대진폭용 압전 세라믹스를 제작하기 위해, PZT계에 제 3성분으로서 PMN을 선정한 PZT-PMN계를 기본 조성으로 택하였다. PMN 함량이 증가함에 따라 일반적으로 큐리점이 저하되므로 이 함량은 0.05mole로 고정시키고, Zr/Ti의 변화에 따른 압전 특성 알아보자 한다. 또한, 레이저 진동계를 이용하여 진동속도를 측정하고 압전 정수 값들의 변화, 온도 상승 등을 종합 검토하여 고출력 압전 소자로의 응용 가능성

을 검토하고자 한다.

#### 2.1 실험 방법

##### 2.1.1 시편 제작

고출력 압전 소자로의 응용을 위한 선택한 기본 조성은 PZT를 기본으로 하고 삼성분계 성분으로  $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 를 첨가한 조성이다. 아래에 조성식을 나타내었다. 조성식에서 보이듯이 변수로 Zr/Ti의 비와 첨가제의 양을 설정하였다. PZT의 상경계(Zr/Ti)인 53/47을 기본으로 하여 Zr/Ti의 비를 변화시켰다.



압전 세라믹스의 제조 공정은 그림 1과 같다. 순도 99.9% 이상의  $\text{PbO}$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{MnO}_2$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  화합물을 출발 원료로 하여 조성식에 따라 칭량한 후, 에탄올을 분산매로 하여 16시간 동안 볼밀에서 혼합하였다. 이 때 알루미나 불순물의 혼입을 억제하기 위해 지르코니아제 용기 및 볼을 이용하였다. 건조시킨 후, 750°C에서 2시간 동안 하소를 행하였다. 하소된 분말을 재분쇄한 후, 2 wt% PVA를 첨가하고, 2 ton/cm<sup>2</sup>의 압력을 가하여 1.5mm<sup>3</sup>, 15 mmΦ의 디스크 형태로 제작하였다.

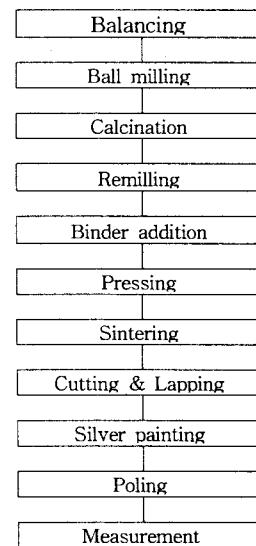


그림 1. 시편 제조 공정

이것을 전기로(Lenton제, UAF15/5) 내에서 115 0~1250°C, 2시간 동안 소결을 행하였는데, 노내의 온

도상승율을  $3^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 로 제어하였다. 소결된 시편은 각각의 표면을 양면 연마기를 이용하여 두께가 1 mm가 되도록 연마하였다. 온 전극 페이스트는 실크 스크린을 이용하였다.

### 2.1.2 저전계하에서의 압전 특성 측정

분극은  $100\sim150^{\circ}\text{C}$ 의 온도 범위에서  $3\text{kV/mm}$ 의 전계를  $\sim30$  분 동안 시편에 인가하였다. 분극처리된 시편의 압전 정수  $d_{33}$ 의 측정은 Piezo  $d_{33}$  meter (Berlincourt계)를 사용하였으며, 다른 압전 정수는 Impedance analyzer(HP 4194A)로부터 얻은 공진-반공진 등가 어드미턴스 회로의 각 소자값을 IRE Standard에 적용하여 구하였다. 또한, grain의 크기를 알아보기 위해 SEM 사진을 관측하였으며, 아르키메데스법을 이용하여 소결 밀도를 측정하였다.

### 2.1.3 고전계하에서의 압전 특성 측정

압전 세라믹을 이용한 고출력 압전 소자들은 고전계하에서 구동된다. 이와 같이 고전계하에서 구동시 진동 손실 에너지의 증가에 의한 온도 상승이 수반된다. 이 온도 상승은 압전 소자의 사용 한계를 결정짓는 파라미터로 고출력 압전 소자로의 응용에 있어 중요한 측정 요소가 된다. 따라서 고출력 압전 소자로의 응용시 고전계하에서 전기기계적 특성은 반드시 이루어져야 한다.

압전 세라믹은 전기-기계 변환 소자이기 때문에 그 전기-기계적 특성 평가시 대표적인 파라미터는 진동속도이다. 특히, 고출력 압전 소자로 응용할 때 디바이스의 성능에 크게 관여하게 된다. 따라서, 진동속도의 측정에 의해 고출력 압전 디바이스의 최종 시스템의 성능을 어느 정도 예측할 수 있게 된다.

본 연구에서는 레이저 진동계를 이용하여 압전 세라믹의 진동속도를 실측하였다. 또한, 압전 세라믹에 흐르는 damping current를 제거하고 motional current만을 측정하기 위해 그림 1과 같은 정전압 구동회로에 기초로 한 정전류 구동회로를 구성하였다.

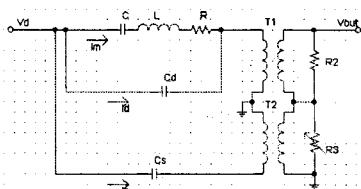


그림 1. 정전압 구동 회로

표준 캐패시터에 흐르는 전류  $I_e$ 와 제동 캐패시터  $C_d$ 에 흐르는 제동 전류  $I_d$ 를 고주파변압기의 2차측에서 측정할 수 있도록 가변저항  $R_3$ 를 조정한 후 2차측에 유기되는 실효 전압을 측정하였다.

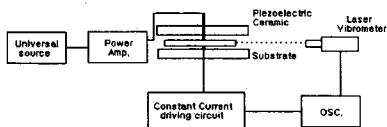


그림 2. 압전 세라믹의 진동속도 측정을 위한 블록도

그림 2는 압전 세라믹의 전기-기계적 특성의 대표적인 파라미터인 진동속도를 측정하기 위한 블록도이다.

Universal source에서 압전 세라믹에 가해지는 입력 전압과 주파수를 변화시키면서 ferrite 변압기의 2차측에 유기되는 전압과 광학 렌즈와 레이저 진동계(OVF-2600)를 통한 압전 세라믹의 진동속도를 오실로스코프를 이용하여 측정하였다.

또한, 압전 세라믹의 진동에 영향을 주지 않게 하기 위해 nodal line에 전압을 인가하였다. 또한, 압전 세라믹 자체의 온도는 thermocouple을 nodal line에 접착시켜 측정하였다. 이 때, 사용된 압전 세라믹은 저전계하에서 가장 우수한 압전 특성을 보인 조성을 이용하였고, 치수는  $42\times1\times10\text{mm}$ 이고 분극은  $120^{\circ}\text{C}$  절연유 중에서  $3\text{kV/mm}$ 에서 30분 행하였고 공간 전하에 대한 영향을 제거하기 위해  $150^{\circ}\text{C}$ 에서 24시간 Ageing하였다.

## 3. 실험 결과 및 고찰

그림 3은  $0.95\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3 + 0.05\text{PMN}$  조성에서  $\text{Zr/Ti}$ 의 비에 따른  $d_{33}$ 와  $k_p$ 의 변화이다.

그림에서 보듯이,  $d_{33}$ 와  $k_p$ 값은  $\text{Zr/Ti}$ 의 비가 51/49에서 최대치를 나타내고 있다. 이 결과는 순수 PZT의 MPB인 53/47과 비교해 볼 때,  $\text{PbTiO}_3$  쪽으로 이동함을 볼 수 있다. 이는 PZT계에 PMN과 같은 페로브스카이트 화합물이 고용될 때, 이방성인 정방정상의 감소에 기인된 결과로 생각된다.

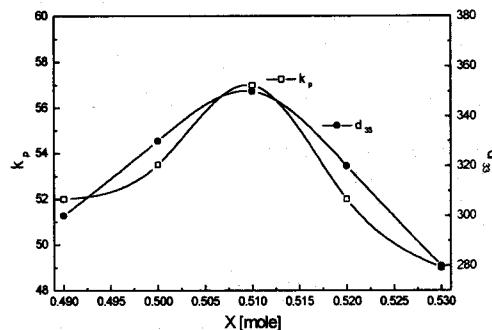


그림 3. Zr/Ti의 함량 변화에 따른  $d_{33}$ 와  $k_p$ 의 변화

한편, 그림 4는  $\text{Zr/Ti}$ 의 비에 따른  $\tan\delta$ 와  $\epsilon'^{T_{33}}$ 의 변화이다. 이와 같은 결과는 일반적으로 정방정계인 경우가 능면정계인 경우보다 분역별의 이동도가 작은 것에 기인되는 것으로 생각된다.

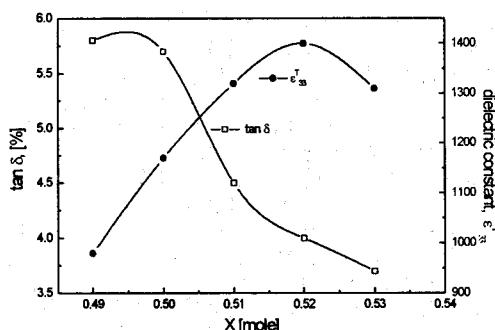


그림 4. Zr/Ti의 함량 변화에 따른  $\epsilon'^{T_{33}}$ 과  $\tan\delta$ 의 변화

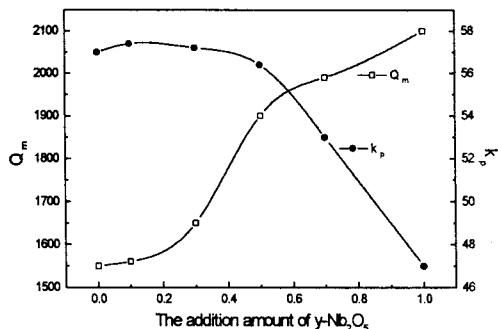


그림 5 첨가제에 따른  $k_p$ 와  $Q_m$ 의 변화

위와 같은 결과로부터 MPB 영역에서의 일반적인 특성인 높은 전기기계 결합 계수, 압전 정수 등을 나타내는  $Zr/Ti$ 의 비가 51/49인 것을 알 수 있었다.

이 때 고출력 압전 소자에 요구되는 특성으로 높은 기계적 품질 계수가 전기기계 결합 계수에 비해 상대적으로 낮기 때문에 분역의 확대를 억제하여 기계적 품질 계수를 증가시키는 첨가제인  $Nb_2O_5$ 를 선정하여 첨가량을 변화시키면서 전기기계 결합 계수와 기계적 품질 계수를 측정하였다.

그림 5는 첨가제 량의 변화에 따른 전기기계 결합 계수와 기계적 품질 계수의 변화를 보인다. 그림에서 알 수 있듯이, 첨가제의 양이 증가할수록 전기기계 결합 계수는 0.5 wt%까지는 거의 일정하다가 그 이상에서 급격히 감소하는 경향을 보이고 기계적 품질 계수는 급격하게 증가하는 경향을 보이고 있다. 이와 같은 결과는 기 연구 결과에 언급되었듯이, 첨가제인  $Nb_2O_5$ 가 grain의 성장을 억제한 것에 기인된 것으로 생각된다 [5].

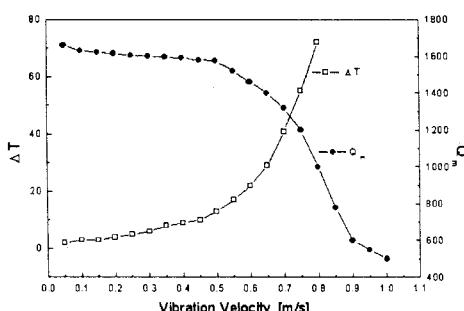


그림 6 진동속도에 따른 온도상승과  $Q_m$ 의 변화

그림 6은 공진반공진법을 이용하여 측정한 결과를 바탕으로 최적의 조성비와 첨가제의 양을 결정한 다음 고출력 압전 소자, 즉 압전 변압기로의 응용을 검토하기 위해 측정한 고출력 응용시 가장 문제로 되는 온도상승과 기계적 품질 계수의 감소를 측정한 결과이다. 그림에서 알 수 있듯이, 진동 속도가 증가함에 따라 온도는 약 0.6 [m/s]에서 급격한 증가를 보이고 기계적 품질 계수도 거의 같은 진동 속도에서 급격하게 감소하는 것을 볼 수 있다 [7,8]. 이와 같은 온도 상승과 기계적 품질 계수의 감소는 기 연구에서 발표된 바와 같이 진동 손실 에너지의 급격한 증가에 따른 것으로 생각된다. 또한, 압전 변압기의 진동 속도가 약 0.3 - 0.5 [m/s]인 점을 고려하면 온도 상승과 기계적 품질 계수의 감소율이 20% 미만이므로 응용 가능할 것으로 생각된다.

### 3. 결 론

본 논문에서는  $0.95PbZr_xTi_{1-x}O_3 + 0.05PMN$ 계를 기본 조성으로 하고, dopant로서  $Nb_2O_5$ 를 첨가하여 압전 특성을 측정하였고 그 결과로부터 고출력 압전 소자로의 응용을 목적으로 고전계하에서의 전기기계적 특성에 대한 연구를 하였다.

$0.95PbZr_xTi_{1-x}O_3 + 0.05PMN$ 계에서  $Zr/Ti$ 의 비가 51/49에서  $k_p$ 는 최대 0.57,  $Q_m$ 은 1550,  $\tan\delta$ 는 0.45의 특성을 얻을 수 있었다. 또한,  $Nb_2O_5$ 를 0.5wt% 첨가하였을 때  $k_p$  약 0.57,  $Q_m$  약 1900정도의 양호한 압전 특성을 얻을 수 있었다.

고출력 압전 소자로의 응용 가능성을 검토하기 위해 고전계하에서의 기계적 품질 계수와 온도 상승을 측정한 결과 진동 속도가 0.5 [m/s]일 때 각각의 변화율은 약 20%정도이었다.

위와 같은 결과로부터  $0.95PbZr_{51}Ti_{49}O_3 + 0.05PMN + 0.5wt\%Nb_2O_5$ 의 조성은 고출력 압전 소자인 압전 변압기로의 응용이 가능 할 것으로 생각된다.

### 감사의 글

본 연구(과제번호 : 981-0904-012-2)는 한국 과학 재단의 지원에 의하여 수행되었음.

### (참 고 문 헌)

- Susumu Saitou, Chika Amemiya, Tsuyoshi Kiami, Yasuhiro Sasaki, Takayuki Inoi, Atsushi Ochi, "Development of Multilayer Piezoelectric Ceramic Transformer", NEC Technical Journal, Vol.49, No.10, 1996.
- Fernandez JF, Moure C, Villegas M, Duran P, Kosec M, Drazic G, "COMPOSITIONAL FLUCTUATIONS AND PROPERTIES OF FINE-GRAINED ACCEPTOR-DOPED PZT CERAMICS", J. of the European Ceramic Soc., Vol.18, No.12, pp.1695-1705, 1998.
- Takaaki TSURUMI, Namiko IKEDA, Naoki OHASHI, "Non-180° Domain Controbution in Electricfield-Induced Strains of PZT Ceramics Measured by a Mach-Zehnder Interferometer", J. of the Ceram. Soc. of Japan, Vol.106, No.11, pp.1062-1066, 1998.
- Sridhar S, Giannakopoulos AE, Suresh S, Ramamurthy U, "Electrical response during indentation of piezoelectric materials: A new method for material characterization", Journal of Applied Physics, Vol.85 No.1, pp.380-387, 1999.
- J.C. Shaw, Kuo-Shung Liu, and I-Nan Lin, "Modification of Piezoelectric Characteristics of the  $Pb(Mg,Nb)O_3-PbZrO_3-PbTiO_3$  Ternary System by Aliovalent Additives", J. Am. Ceram. Soc., Vol.78, No.1, pp.178-182, 1995.
- Takeshi Inoue, Mitsuru Yamamoto, Shingo Kawashima, Seiji Hirose, "Third Order Longitudinal Mode Piezoelectric Ceramic Transformer for High-Voltage Power Inverter", IEICE Trans. on ELECTRONS, Vol. 4, No. 7, pp.1128-1135, 1998.
- Sadayuki Takahashi and Seiji Hirose, "Vibration-Level Characteristics of Lead-Zirconate-Titanate Ceramics", Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 3 No. 9B, pp. 3055-3057, 1992
- Sadayuki Takahashi, Seiji Hirose, Kenji Uchino and Ki-Young Oh, "Electro-Mechanical Characteristics of Lead-Zirconate-Titanate Ceramics Under Vibration-Level Change", '94ISAF Proc., 377-382, 1994.