

## AE센서의 압전소자에 이용할 PZT-PMNS 특성

권오덕, 유지성, 윤용진, 강성화\*, 임기조  
충북대학교 전기공학과, 충청대학\*

### Characteristics of PZT-PMNS using for piezoelectric element of AE sensor

O. D. Kwon, J. S. Yoo, Y. J. Yoon, S. H. Kang\*, K. J. Lim  
Chungbuk national University, Chung Cheong College\*

**Abstract** - The piezoelectric ceramics for AE-sensor are desired large electromechanical coupling factor, high mechanical quality factor and good characteristic resonance frequency.

In this study, the empirical formula of specimens is used  $0.9\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3 - 0.1\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Nb}_{1/3}\text{Sb}_{1/3})\text{O}_3$  (PZT-PMNS). The piezoelectric and dielectric characteristic are investigated by sintering temperature and value of  $x$  as functions of  $\text{Ti}^{2+}$ ,  $\text{Zr}^{4+}$  mol rate. MPB(morphotropic phase boundary) is defined in the  $x=0.522$ . Because it is appeared to the best piezoelectric and dielectric characteristic in the  $x=0.522$ , it can be application of AE sensor.

PZT-PMNS ceramics without pre-amplifier and filter are tested for AE-signal of PD and arc detecting. The detection characteristic is evaluated wave form, frequency distribution.

### 1. 서 론

압전체란 물체에 기계적인 변형이 가해지면 이에 대응하는 전기적인 신호가 발생하고, 물체에 전기적인 신호가 가해지면 이에 대응하는 기계적인 변형이 일어나는 물질이다. 또한 압전체는 기계적 변형을 전기적으로 변환시키는 센서 또는 전기적인 파형을 기계적으로 변환시켜주는 transducer 등에 많이 응용되고 있다.

시험체의 변형, 균열 성장, 상 변화 등 소성 변형이 있을 때 탄성파가 발생하게 되는데 이것을 음향방출(AE, Acoustic emission)이라고 하며 이것을 이용한 센서가 AE 센서이다. AE 센서의 내부구조는 크게 압전소자, wear plate, electrical shilding으로 나뉘어 지는데 본 연구에서는 압전 소자 부분에 대한 연구를 중점적으로 다루도록 하겠다.

본 논문에서  $[\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3 - \text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Nb}_{1/3}\text{Sb}_{1/3})\text{O}_3]$ 의 조성을 갖는 세라믹을 선택하여 압전, 유전 특성으로 전기기계결합계수(electromechanical coupling factor), 기계적 품질계수(mechanical quality factor), 유전손실( $\tan \delta$ ), 유전율(permittivity) 등을 측정 평가하였다.

그리고, Pre-amplifier와 filter 없는 PZT-PMNS계 압전 세라믹 시편을 제작하여 방전시 발생되는 AE신호를 측정하여 압전 소자의 검출 성능을 측정하였다.

### 2. 실험 방법 및 특성평가

#### 2.1 시편의 제작

$\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3 - \text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Nb}_{1/3}\text{Sb}_{1/3})\text{O}_3$  조성에서 Zr의 함량비인  $x$ 값을 변화시키며 특성평가를 하였다. 압전 및 유전 특성을 측정하기 위한 압전 세라믹 시편 제조 공정은 조성 PZT-PMNS 고용체를 합성하기 위하여  $\text{PbO}$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{MnO}$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Sb}_2\text{O}_5$ 등의 시작원료를 화학량론적으로 환산하여 청량한 후 분산매로 알코올을 사용하여 zirconia ball에 의한 24시간 습식 ball milling으로 혼합 및 분쇄를 하였다. 혼합 분쇄한 원료를  $700\sim 850^\circ\text{C}$ 에서 4시간 하소한 후, 2차 ball milling(48시간 혼합 및 분쇄)을 실시하였다.

분쇄된 분말에 유기바인더(organic binder) PVB(Poly Vinyl Butyrate)를 1.5wt% 첨가하여 열교반하고  $12[\text{mm}\phi]$  금형에 4[ton/cm<sup>2</sup>]압력으로 일축 성형한 후, 바인더를 제거하기 위해  $600^\circ\text{C}$ 에서 6시간 burn-out을 행하였다. 소성은 전기로(Lenton제, UAF15/5)  $1180^\circ\text{C}\sim 1250^\circ\text{C}$  범위에서 4시간 소결하였으며 이때 전기로내의 승하강온도는  $3^\circ\text{C}/\text{min}$ 로 제어하였다.

압전 및 유전 특성을 측정하기 위해 Lapping Machine을 이용하여  $12[\text{mm}\phi]$ ,  $1[\text{mm}]$ 의 두께로 양면연마하고 Ag 전극을 시편에 screen printing한 후 소부하였고  $120^\circ\text{C}$  절연유에서 20분 동안  $3[\text{kV/mm}]$ 의 전계로 poling하여 만든 시편을  $100^\circ\text{C}$  항온조 내에서 24시간 aging하여 시편을 제조하였다.

AE센서용 압전소자의 주파수 진동을 알아보기 위한 시편은  $12[\text{mm}\phi]$ ,  $7[\text{mm}]$ 의 크기이며, 다른 제조공정은 압전 세라믹 시편과 동일하게 하였다.

Starting Materials( $\text{PbO}$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{MnO}$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Sb}_2\text{O}_5$ )

Grinding & Mixing by zirconia ball-mill & alcohol

Drying at  $120^\circ\text{C}$ , for 24[hrs]

Calcining at  $700\sim 850^\circ\text{C}$ ,  $3^\circ\text{C}/\text{min}$  for 4[hrs]

Grinding & Mixing by zirconia ball-mill, 2[wat%] PVB

Pressing disk-type :  $t=1.5[\text{mm}]$ , dia.= $12[\text{mm}\phi]$

Sintering  $1180\sim 1250^\circ\text{C}$ ,  $3^\circ\text{C}/\text{min}$  for 4[hrs]

Lapping disk-type :  $t=1[\text{mm}]$ , dia.= $12[\text{mm}\phi]$

Silver painting & firing  $590^\circ\text{C}$ ,  $7^\circ\text{C}/\text{min}$ , for 10[mins]

Poling under  $3[\text{kV/mm}]$ , at  $120^\circ\text{C}$ , for 20[mins]

Aging in vaccum oven at  $120^\circ\text{C}$ , 24[hrs]

Fig. 1 시편 제조 공정

## 2.2 유전 및 압전 정수 측정

다른 압전 및 유전 정수의 측정은 Impedance Analyzer(HP 4194A)로부터 얻은 공진-반공진 등가 어드미턴스 회로의 각 회로 정수를 IRE 규정을 적용하여 계산하였다. Fig. 2은 고전동 레벨에서의 압전특성 측정회로를 나타낸 것이다 (1)과 (2)는 kp와 Qm의 값을 구하는 공식이다.

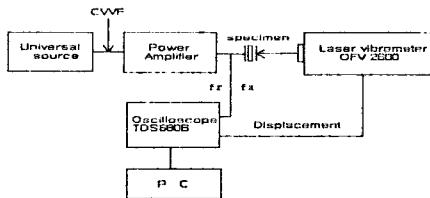


Fig. 2 고전동 레벨에서의 압전특성 측정회로

$$\frac{1}{k_p^2} = 0.395 \times \frac{f_r}{(f_a - f_r)} + 0.574 \quad (1)$$

$$Q_m = \frac{f_a}{2\pi f_r R C / (f_a^2 - f_r^2)} \quad (2)$$

(fr: 공진주파수, fa: 반공진주파수, R: 공진저항, Cf: 1[kHz]에서의 자유 커패시턴스)

## 2.3 방전 신호 측출

아크 방전 신호 측출은 Fig. 3처럼 아크발생 위치에서 30cm 떨어진 지점에서 제작한 압전 소자(pre-amplifier와 filter가 없는 소자)를 위치시켰으며, 절연파괴실험은 고체절연체(XLPE)의 절연파괴사 발생하는 AE신호를 거리에 따라 측정하였으며, 위 실험들의 매질은 공기로 하였다.

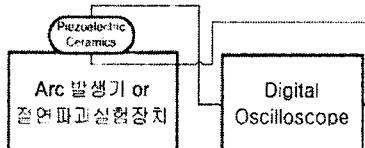


Fig. 3 방전 신호 측출 회로 개략도

## 3. 결과 및 고찰

$Pb(Zr_x Ti_{(1-x)})O_3 - Pb(Mn_{1/3}Nb_{1/3}Sb_{1/3})O_3$  조성에서 Zr의 함량을 x라 하고 이 x를 변화시키며 측정한 전기기계 결합계수( $k_p$ ), 비유전율( $\epsilon^{T33}/\epsilon_0$ ) 및 기계적 품질계수( $Q_m$ ), 유전 손실( $\tan\delta$ )을 Fig. 4 ~ Fig. 7에 나타내었다. 하소온도에 따른 압전 및 유전 특성은 큰 차이를 보이지 않았으나 소결온도에 따라서는 결과에서도 확인 되듯이 소결온도가 높을수록 특성이 향상되었다. 이는 고온 일수록 세라믹의 결정화가 잘 일어남을 보여주는 결과라 할 수 있다.

Fig. 4 ~ Fig. 7을 보면 Zr의 함량 x가 0.522일 때 전기기계 결합계수( $k_p$ )는 65[%], 비유전율( $\epsilon^{T33}/\epsilon_0$ )은 1250으로 각각 최대를 보였으며, 기계적 품질계수( $Q_m$ )는 약 1350정도로 최소를 보였다. 이와 같은 결과들로 보면 x가 0.522일 때 압전 및 유전 특성이 가장 좋은 특성을 보이므로  $Pb(Zr_x Ti_{(1-x)})O_3 - Pb(Mn_{1/3}Nb_{1/3}Sb_{1/3})O_3$  조성

에서의 MPB(상경계 영역)이라 결론지었다.

한편, Fig. 7에서는 x=0.522에서  $\tan\delta$ (유전손실)이 가장 높게 나타나고, x값이 증가하는 능면정계 쪽이 정방정계 쪽보다 다소 높게 나타나고 있다. 이는 MPB영역에서는 정방정계의 능면정계의 결정의 공존하는 결정 상전이 영역이므로 분역별의 이동도가 매우 자유로워짐으로써 유전 손실( $\tan\delta$ )값이 상승하는 것으로 사료된다.

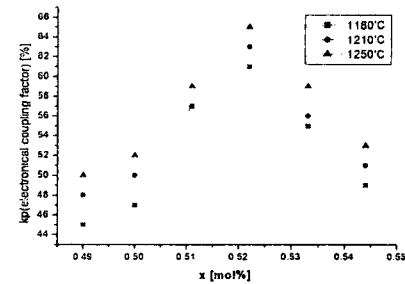


Fig. 4 x에 따른 kp의 변화

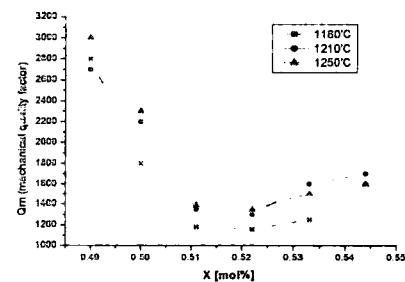


Fig. 5 x에 따른 Qm의 변화

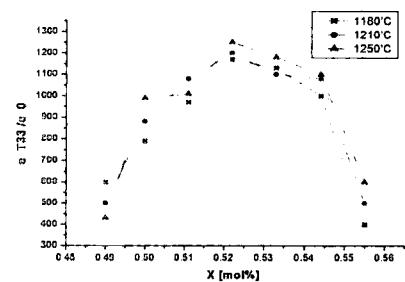


Fig. 6 x에 따른  $\epsilon^{T33}/\epsilon_0$ 의 변화

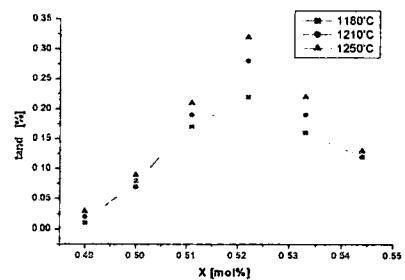


Fig. 7 x에 따른 tanδ의 변화

Fig. 8 ~ Fig. 9에서는 발생된 아크 신호를 압전 소자(압전 및 유전 특성이 우수한 시편 선택)를 이용하여 검출한 결과를 나타내고 있다. Fig. 8는 검출된 신호의 파형을 나타낸 결과이며 Fig. 9은 FFT를 통한 주파수 성분을 분석한 결과이다.

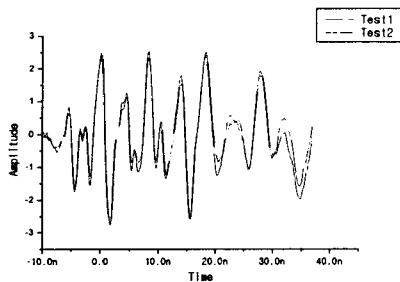


Fig. 8 검출된 아크 신호의 파형

Pre-amplifier 없이 실험을 하였지만 검출된 신호는 충분한 값(약 2.5V)을 나타내었으며 또한 검출된 파형을 살펴보면 test1과 test2가 거의 일치함을 알 수 있다.

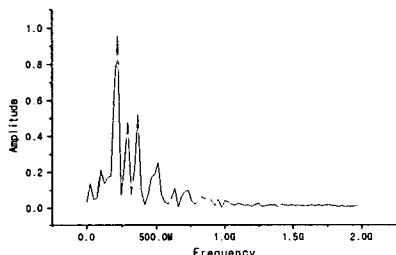


Fig. 9 검출된 아크 신호의 주파수 분석

FFT(Fast Fourier Transform)를 통한 주파수 분포에서는 고주파 성분의 노이즈를 다양 포함하는 것으로 사료되므로 filter의 필요성이 대두되었다.

Fig. 10에서는 절연파괴시험장치와 압전소자의 거리를 증가시키며 발생되는 방전에 대해서 세라믹의 응답을 peak-to-peak의 차로써 보여주고 있으며 거리에 대한 응답치가 로그스케일로 반비례함을 알 수 있다. 세라믹으로부터 데이터를 얻기 위해 Digital Oscilloscope(1GHz)을 사용하였으며, 이로서 PZT-PMNS의 검출(detect)할 수 있는 최대거리는 820cm였으며, 검출가능한 최저 energy level은 약 0.25mJ로 예상할 수 있었다.

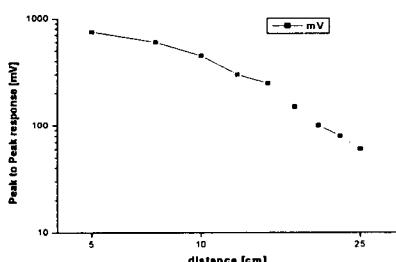


Fig. 10 PD 검출된 AE파의 거리에 따른 response

#### 4. 결 론

본 논문은 AE 센서 제작이 가능한 압전 세라믹 개발을 위해 PZT-PMNS의 3성분계 압전 세라믹스 조성에서의 전기기계결합계수, 기계적 품질계수, 유전손실, 유전율을 측정, 평가하기 위해서 Zr과 Ti의 몰비에 따른 상전이 거동과 압전 및 유전 특성에 대해 살펴보았으며 소결온도의 변화에 대하여 특성을 조사하였다.

$0.9\text{PbZr}_{1-x}\text{PbTiO}_3 + 0.1\text{Pb}(\text{Mn}_{0.20}\text{Nb}_{0.30}\text{Sb}_{0.33})\text{O}_3$  조성에서 하소온도는  $800^{\circ}\text{C}$ , 소결온도는  $1250^{\circ}\text{C}$ 일 때  $x$ 를 0.522로 하고 전기기계결합 계수( $k_p$ ) 및 비유전율 ( $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ )은 각각 65[%], 1250을 보였으며 기계적 품질 계수( $Q_m$ )는 1350을 나타내었다. 이 결과로 삼성분계의 MPB는  $x=0.522$  몰비에서 나타남을 확인 할 수 있었다.

이 결과를 토대로 AE 센서용 압전 소자를 제작하여 아크 및 부분 방전신호의 검출특성을 알아보았는데, 아크 방전의 검출된 신호의 크기는 pre-amplifier가 필요하지 않을 정도로 확인되었으나 주파수 분석 결과 고주파 성분의 노이즈가 다량 포함된 것으로 나타났으므로 filter는 필요할 것으로 판단된다. 부분방전의 검출된 신호의 크기가 미약한 것으로 보아, 미약한 초기 신호에 대하여 센싱할 경우에는 pre-amplifier와 amplifier가 동시에 필요로 되며, noise도 많이 있어 filter도 보완해야 함을 알 수 있었다.

종합적으로 볼 때 PZT-PMNS의 3성분계 압전세라믹은 AE센서에 이용할 압전소자로써 이용되기에 적합하다고 사료되어진다.

#### [참 고 문 헌]

- [1] B. Jaffe, W.R. Cook, "Piezoelectric Ceramics", Academic Press (1971)
- [2] Sridhar S, Giannakopoulos AE, Suresh S, Ramamutry U, "Electrical response indentation of piezoelectric material characterization", Journal of applied physics, Vol 85, No.1, pp.380-387, 1999.
- [3] 金護基, 申炳鐵 박사 編著, "압전.전화 세라믹스" 羊鳥出版社, 1991.
- [4] IRE Standards Committee, "Standard on Piezoelectric Crystals. 1949" Proc. of the IRE, (1949), pp.921-930
- [5] M. R. Gorman and W. H. Prosser, "AE Source Orientation by Plate Wave Analysis", J. Acoustic Emission, 9(4), pp.283-288, 1990
- [6] Fernandez JF, Moure C, Villegas M, Duran P, Korec M, Drazic G, "Compositional fluctuations and properties of fine-grained acceptor-doped PZT Ceramics", J. of the European ceram. Soc., Vol.18, No.12, pp. 1695-1705, 1998.