

Pb(Y_{2/3}W_{1/3})O₃-Pb(Zr,Ti)O₃계 세라믹스의 고출력 특성

11-5-9

High Power Characteristics of Pb(Y_{2/3}W_{1/3})O₃-Pb(Zr,Ti)O₃ Ceramics

윤석진*, Kenji Uchino**
(Seok-Jin Yoon, Kenji Uchino)

Abstract

High power characteristics with vibration velocity were studied in Pb(Y_{2/3}W_{1/3})O₃-Pb(Zr,Ti)O₃ (PYW-PZT) ceramics by using the constant current method. Young's modulus Y_0^E and mechanical quality factor Q_m are a function of the square of effective vibration velocity v_o . The nonlinear proportional constants of the above functions indicate the degree of stability under the vibration level change. The stability of PYW-PZT ceramics estimated by these constants coincides with the results obtained through the heat generation. It was found that Q_m was markedly decreased with increasing the vibration velocity, accompanying a lot of heat generation. The heat generation was assumed to be caused by ferroelectric domain wall hysteresis loss. The vibration hysteresis and dielectric loss according to the vibration velocity was reduced by doping Fe₂O₃ to the ceramics. On the contrary, these losses was increased by doping Nb₂O₅.

Key Words(중요용어): High power characteristics(고출력 특성), Vibration velocity(진동속도), Constant current method(일정전류방법), Heat generation(열 발생)

1. 서 론

강유전체 세라믹스에서 나타나는 압전효과는 전기적 에너지를 기계적 에너지로 또는 기계적 에너지를 전기적 에너지로의 상호변환을 가능케한다. 초음파 모터, 압전 액츄에이터와 소-나(sonar) 등 압전효과의 응용에는 비교적 높은 전압과 큰 기계적 출력(진동)을 필요로 하며 이의 재료로는 PZT계 압전 세라믹스가 일반적으로 사용되고 있다. 높은 출력을 얻기 위해서는 압전세라믹스의 기계적 진동이 큰 상태에서 작동되어야 한다. 그러나 이와 같은 고출력을 필요로 하는 디바이스는 동작 중 주변환경

의 영향으로 압전트랜스듀서의 압전특성이 변화되어 고출력 사용에 제한을 받게 된다. 압전 세라믹스의 고출력발생을 제한하는 요소는 세라믹스의 동적 강도, 유전손실과 기계적 손실에 의한 효율감소, 전계와 온도상승으로 인한 세라믹스의 탈분극 등이다¹⁾. 소-나 등의 트랜스듀서는 동적강도에 의해 생기는 제한은 많은 경우 기계적인 요소에 의해 크게 확장된다. 세라믹스는 보통 인장력을 받기 때문에 트랜스듀서의 설계 시 기계적인 압착을 미리 가해준다. 탈분극을 시킬 수 있는 큰 전계는 높은 유전손실을 발생시키며 그 결과 효율이 저하된다. 실질적인 응용의 경우 고출력의 한계는 유전손실과 기계적 손실에 의한 효율감소, 온도상승으로 인한 탈분극 등이다.

압전재료의 특성 평가는 재래적인 일정전압 방법(constant voltage method)과 일정전류 방법(constant current method)이 있다²⁾. 일정전압 방법은 소위 Impedance Analyzer와 Network Analyzer

* 한국과학기술연구원 박막기술연구센터
(서울시 성북구 하월곡동 39-1, Fax: 02-958-5509
E-mail : sjyoon@kistmail.kist.re.kr)

** : IMRL, Pennsylvania State University
1998년 2월 15일 접수, 1998년 4월 5일 심사완료

등을 이용한 측정방법으로 낮은 전압(1V) 하에서 이루어져 실제 응용 시 많은 차이점이 존재한다. 일정전압 방법을 이용하여 인가전계와 진동속도(vibration velocity)를 증가시키면 공진주파수의 형태가 심하게 찌그러진다. 이와 같은 현상은 압전특성을 정확하게 결정짓는데 심각한 문제를 발생시킨다. 이의 원인은 매우 큰 기계적 진동이 공진시에 생기기 때문에 탄성 비선형성(elastic nonlinearity)에 기인한다²⁾. 공진주파수 부근의 진동변위(vibration amplitude)는 전압에 따라 비례하지 않으나 전류와는 비례한다³⁾. 따라서 일정전류 방법은 고출력, 즉 높은 진동변위에서도 공진주파수의 형태가 대칭적이다. 또한 일정전압 방법으로 측정시 압전체에서 열이 발생하나 일정전류 방법으로는 발생치 않아 고출력 상태의 올바른 압전특성의 평가에는 일정전류방법을 사용하여야 한다³⁾.

압전세라믹스의 사용환경과 비슷한 상태에서 압전특성을 평가하는 연구는 BaTiO₃를 대상으로 1957년 Schofield와 Brown⁴⁾에 의해 행하여졌으며 그 후 Ferre는 BaTiO₃와 PZT를 대상으로 전계와 주파수를 변화시키면서 유전손실을 고찰하였다⁵⁾. 또한 Hirose 등은⁶⁾ 고출력 상태에서의 측정방법과 고출력용 압전재료를 개발하기 위한 근거를 제시하고자 일정전류 방법을 이용하여 PZT 2성분계를 대상으로 연구를 행한 바 있다. 그 연구결과 압전특성은 진동진폭의 크기에 따라 변하며 열 발생은 어떤 진동진폭의 값이 초과되면 매우 크게 증가한다고 밝혔으며 이러한 거동은 특히 물질의 조성에 크게 의존한다 하였다.

본 연구는 압전액츄에이터용 조성으로 개발된 Pb(Y_{2/3}W_{1/3})O₃-Pb(Zr,Ti)O₃계 세라믹스^{7,8)}를 대상으로 첨가물에 대한 고출력 특성을 일정전류 방법을 이용하여 진동진폭에 따른 전기적 특성의 변화를 고찰하고 압전세라믹스의 고출력 응용시 정확한 재료의 특성변화를 제시코자 한다.

2. 실험 및 측정

본 실험에 사용된 기본 물질은 Pb(Y_{2/3}W_{1/3})O₃-Pb(Zr,Ti)O₃계 세라믹스이며 첨가물로는 Fe₂O₃와 Nb₂O₅이다. Fe₂O₃와 Nb₂O₅는 각각 억셉터(acceptor)와 도-너(donor)의 대표적인 물질로 알려져 있으며 사용된 조성은 표 1과 같다.

세라믹 시편제작은 보통 소성법으로 1200℃, 1시간 동안 소결하였고 사용된 시편은 그림 1과 같으며

그 크기는 $l = 25\text{mm}$, $w = 5\text{mm}$, $t = 1.5\text{mm}$ 이다.

표 1. 시료명과 조성

Table 1. Specimen and Composition

시료명	조 성
undoped	0.02Pb(Y _{2/3} W _{1/3})O ₃ -0.98Pb(Zr _{0.52} Ti _{0.48})O ₃
Fe-doped	0.02Pb(Y _{2/3} W _{1/3})O ₃ -0.98Pb(Zr _{0.52} Ti _{0.48})O ₃ + 0.9wt%Fe ₂ O ₃
Nb-doped	0.02Pb(Y _{2/3} W _{1/3})O ₃ -0.98Pb(Zr _{0.52} Ti _{0.48})O ₃ + 0.9wt%Nb ₂ O ₅

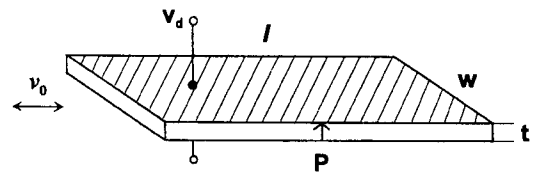


그림 1. 시편의 형상과 크기

Fig. 1. Shape and size of specimen

분극은 두께방향으로 행하였고 압전특성은 일정전류 구동 회로를 이용하여 측정하였다. 시편 끝의 진동변위 측정은 포토닉 센서 (photonic sensor)를 사용하였다.

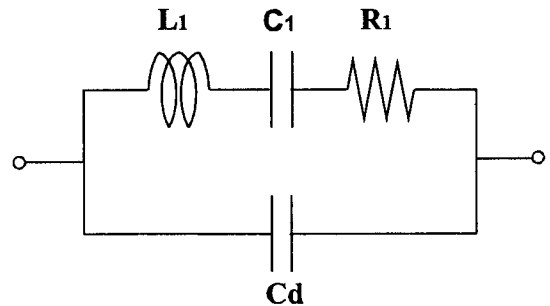


그림 2. 공진주파수 부근의 압전진동자의 등가회로

Fig. 2. Electric equivalent circuit for the piezoelectric vibrator around its resonant frequency

그림 2는 공진주파수 부근의 진동자의 등가회로이다. 공진주파수(resonant frequency) f_0 , 기계적 품질계수 (mechanical quality factor) Q_m , 동적 어드미턴스(motional admittance) Y_{m0} , 그리고 감

왜 어드미턴스 (damped admittance) Y_d 등은 유효 진동속도(effective vibration velocity) v_0 함수로서 아래 식과 같이 회로상수의 측정된 값과의 관계식을 이용하여 구하였다.

$$\begin{aligned}
 Q_m &= \frac{2\pi f_0 L_1}{R_1}, \\
 f_0 &= \frac{1}{2\pi\sqrt{L_1 C_1}} \\
 Y_{m0} &= \frac{1}{R_1}, \\
 Y_d &= 2\pi f C_d
 \end{aligned}
 \tag{1}$$

또한 영률(Young's modulus) Y_0^E , 비유전율(relative permittivity) ϵ_{33}^T , 그리고 전기기계 결합 계수(electromechanical coupling factor) k_{31} 등은 다음 식을 이용하였다.

$$\begin{aligned}
 Y_0^E &= \frac{\rho l^2}{\pi^2 L_1 C_1} \\
 \epsilon_{33}^T &= \frac{t C_d}{lw \epsilon_0 (1 - k_{31}^2)} \\
 k_{31}^2 &= \frac{1}{1 + \left(\frac{8 C_d}{\pi^2 C_1}\right)}
 \end{aligned}
 \tag{2}$$

여기서 ρ 는 밀도, ϵ_0 는 공기 중의 유전율이며 Y_0^E , ϵ_{33}^T , 그리고 k_{31} 는 f_0 , Q_m , Y_{m0} 와 Y_d 를 측정함으로써 구할 수 있다. 유효 진동속도 v_0 는 식 3과 같이 최대진동진폭(maximum vibration amplitude) ξ_m 으로 표현된다.

$$v_0 = \sqrt{2} \pi f_0 \xi_m \tag{3}$$

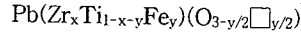
여기서 ξ_m 은 시편의 끝 부분을 포토닉 센서를 이용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

Fe₂O₃ 와 Nb₂O₅를 첨가한 PYW-PZT 세라믹스

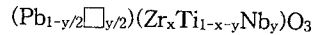
의 진동속도에 대한 고출력 특성을 연구하였다.

그림 3은 P-E 히스테리시스 그래프이다. 도메인 벽 이동도(domain wall mobility)는 첨가물과 격자 결합에 의해 크게 좌우된다. PZT에서의 산소결함은 Fe과 같은 억제제 불순물을 첨가함으로써 발생되며 다음과 같은 관계를 갖는다⁹⁾



산소결함의 발생은 도메인 벽의 피닝효과(domain wall pinning effect)를 가져오며 이 결과 비교적 큰 진동속도까지 히스테리시스 손실(hysteresis loss)이 억제된다¹⁰⁾.

그러나 Nb와 같은 도-너 첨가의 경우 Pb결함은 아래와 같이 발생시킨다.



도-너 도핑은 도메인 벽 이동도를 증가시키며¹¹⁾ 그 결과 히스테리시스 손실이 증가한다.

이상의 가정은 그림 3에서 확인될 수 있으며 Nb₂O₅가 첨가된 세라믹스의 히스테리시스 그래프는 도메인 벽의 이동도가 커 곧 바로 그림과 같은 그래프를 나타내지만 불순물을 첨가하지 않은 세라믹스와 Fe₂O₃첨가된 세라믹스의 경우는 도메인 벽이 피닝되어 고전압을 여러번 반복하여야 그림과 같은 그래프를 얻을 수 있다.

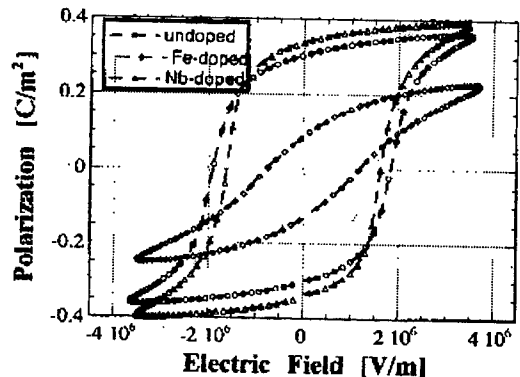


그림 3. 시편의 P-E 히스테리시스 곡선
Fig. 3. P-E hysteresis loop of specimen

그림 4는 유효 진동속도 v_0 에 대한 Q_m 의 변화를 보여준 그래프이다. Q_m 은 v_0 가 증가함에 따라

불순물 첨가와 첨가하지 않은 경우 모두 감소한다. Nb₂O₅ 첨가와 첨가하지 않은 PYW-PZT는 낮은 ν_0 부터 계속해서 감소하지만 Fe₂O₃의 첨가의 경우는 ν_0 가 약 0.15m/s까지는 일정하다가 그 이상부터는 급격하게 감소한다. Fe₂O₃와 Nb₂O₅는 대표적인 억셉터(acceptor)와 도너(donor)로 알려져 있다. 도너 불순물 첨가의 경우 강유전체 도메인 벽(ferroelectric domain wall)이 움직이기 쉬우나 이와 반대로 억셉터는 도메인 벽의 이동을 어렵게 한다. 또한 도메인 벽의 이동에 의한 히스테리시스 손실(유전손실)은 품질계수 Q_m를 감소시킨다. Nb₂O₅가 첨가된 PYW-PZT세라믹스의 Q_m값은 낮고 비교적 낮은 진동 속도부터 감소하지만 Fe₂O₃가 첨가된 경우 Q_m값은 높고 비교적 높은 진동 속도에서부터

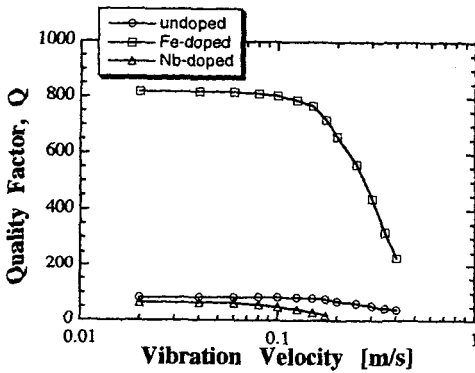


그림 4. 진동속도에 따른 기계적 품질계수
Fig. 4. Mechanical quality factor with respect to vibration velocity

감소하게 된다.

Q_m은 탄성손실(elastic loss) $\tan \delta_e$, 유전손실(dielectric loss) $\tan \delta_d$, 그리고 전기기계결합계수 k로 표현된다¹⁰⁾.

$$\frac{1}{Q_m} = \frac{\tan \delta_e + k^2 \tan \delta_d}{1 - k^2} \quad (4)$$

여기서 $\tan \delta_d$ 는 순수 유전손실, $\tan \delta_{di}$ 는 강유전체에서의 도메인 벽 운동에 의한 히스테리시스 손실 $\tan \delta_{dh}$ 와의 합이다¹⁰⁾.

$$\tan \delta_d = \tan \delta_{di} + \tan \delta_{dh} \quad (5)$$

히스테리시스 손실은 구동전계가 증가함에 따라 커지며 또한 높은 구동전계는 고출력을 얻기 위해서는 필요하다. 그러므로 Q_m은 진동속도가 커지면 감소하게 된다.

탄성손실 또한 진동속도가 증가하면 커지는 경향이 있으나 탄성손실이 매우 커지는 진동속도는 히스테리시스 손실이 일어나는 것보다 훨씬 크기 때문에 여기에서는 무시할 수 있다.

유효 진동속도 ν_0 의 함수로 일정 전류방법으로

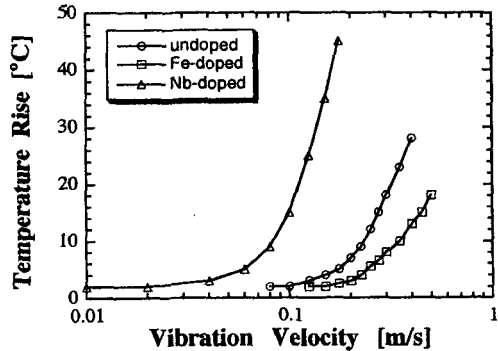


그림 5. 진동속도에 따른 시편의 온도상승
Fig. 5. Temperature rise of specimen as a function of vibration velocity

측정된 세라믹스의 온도상승은 그림 5와 같다. 온도상승은 ν_0 가 증가함에 따라 발생하였다. 또한 어떤 일정한 값 이상에서는 Q_m과는 달리 매우 크게 증가하였으며 Q_m이 큰 경우는 온도상승이 작았다. 이 값은 첨가된 불순물에 따라 다르며 Nb₂O₅ 첨가된 PYW-PZT, 첨가하지 않은 순수 PYW-PZT, 그리고 Fe₂O₃ 첨가된 PYW-PZT 순으로 증가하였다. 즉, 그 이상 입력전기에너지를 증가시킨다 하더라도 단지 열로 변환할 뿐이다. 온도상승의 억제에는 억셉터 첨가인 Fe₂O₃ 첨가의 경우가 현저함을 알 수 있다. Tashiro 등¹²⁾이 측정한 Pb(SbMn)O₃-PZT계 세라믹스의 진동속도에 대한 온도상승은 진동속도가 0.1m/s 이상부터 온도상승이 발생함을 관찰한 바 있는데 본 연구에 사용된 Fe₂O₃가 첨가된 PYW-PZT의 경우는 0.18m/s부터 온도상승이 생겨 고출력 특성이 우수함을 알 수 있다.

그림 6은 진동속도에 대한 유전상수(K_{33}^T)의 변화이다. 도너 첨가인 Nb₂O₅의 경우 진동속도가 0.05m/s일 때 급격히 증가하고 있으나 Fe₂O₃첨가한

세라믹스는 0.1m/s 까지는 거의 일정하다가 서서히 증가함을 알 수 있다. 유전상수의 증가는 주로 진동 진폭속도의 증가로 인한 온도상승의 결과로 사료된다.

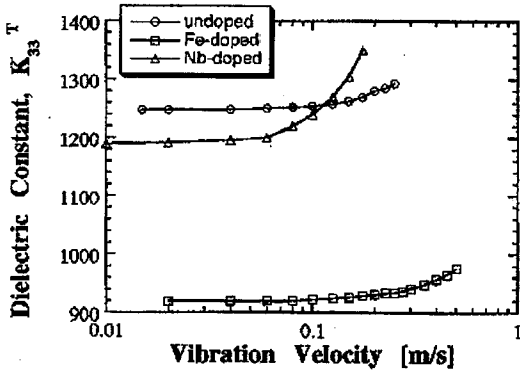


그림 6. 진동속도 변화에 따른 유전상수
Fig. 6. Dielectric constant with respect to vibration velocity

그림 7은 영률(Y_0^E)의 변화를 보여준 그래프이다. 영률의 변화는 Nb₂O₅ 첨가된 경우 작은 진동속도부터 감소하였으나 불순물을 첨가하지 않은 세라믹스와 Fe₂O₃첨가된 세라믹스 공히 어느 일정한 값부터는 급격하게 감소하고 있다. 이는 고출력을 요하는 응용의 경우 적용해야 할 재료를 암시하는 중

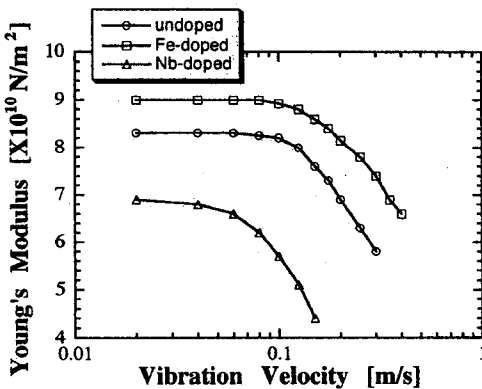


그림 7. 진동속도에 따른 영률의 변화
Fig. 7. Variation of Young's modulus with respect to vibration velocity

요한 단서로 초음파 모터 등 각종의 액츄에이터용 소재로는 엑셀터가 첨가된 개선된 PZT를 사용해야 할 것이다.

진동속도에 따른 전기기계결합계수(k_{31})의 변화는 그림 8과 같다. k_{31} 는 진동속도가 증가함에 따라 증가하고 있다. Nb₂O₅ 첨가된 세라믹스와는 달리 첨가하지 않은 세라믹스와 Fe₂O₃ 첨가한 경우의 세라믹스는 일정한 값까지는 거의 일정한 값을 가짐을 알 수 있다.

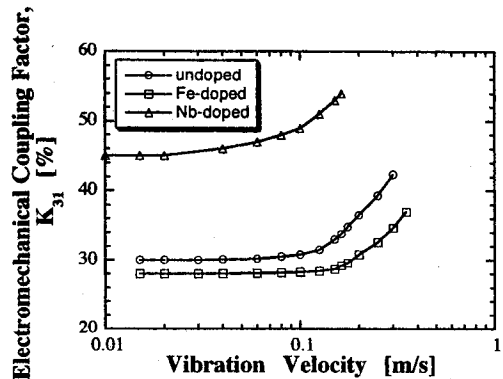


그림 8. 진동속도에 따른 전기기계결합계수의 변화
Fig. 8. Electromechanical coupling factor as a function of vibration velocity

4. 결 론

PYW-PZT세라믹스에 대한 고출력특성을 일정한 방법으로 측정하였다. 히스테리시스 손실은 Nb₂O₅의 첨가가 Fe₂O₃첨가의 경우보다 컸으며, Q_m과 영률은 진동속도가 증가함에 따라 감소하였으나 유전상수와 전기기계 결합계수는 증가하였다. 또한 온도상승은 Fe₂O₃ 첨가의 경우 Nb₂O₅ 첨가의 경우보다 매우 큰 진동속도에서부터 발생하며 진동속도가 증가하면 PYW-PZT 압전세라믹스 및 첨가된 변환 압전세라믹스 모두 어떤 일정한 값 이상에서는 급격하게 증가하였다. 따라서 압전세라믹스의 고출력 응용의 경우 Nb₂O₅첨가된 경우보다 Fe₂O₃가 첨가된 압전세라믹스를 사용함이 타당하다.

참 고 문 헌

1. D. A. Berlincourt, D. R. Curran, and Hans

- Jaffe; Physical Acoustics, Vol. I, Part A. Mason Academic Press, N. Y., pp. 250, 1964
2. Kenji Uchino; Piezoelectric Actuators/Ultrasonic Motors, Kluwer Academic Publishers, p.160, 1997
 3. S. Hirose and H. Shimizu, J. Acoustic Soc. Jpn., 47, pp. 35, 1991
 4. D. Schofield and R. Brown, "Barium Titanate Compositions for Transducer Applications," Can. J. Phys., Vol. 33[5], pp. 594-607, 1957
 5. R. G. Ferre, "Measurement of the Dielectric Loss Under High Electric Fields," J. Underwater Acoustics, Vol. 15[2], pp. 296-300, 1965
 6. S. Hirose, Y. Yamayoshi, M. Taga and H. Shimizu, "A Method for Measuring the Vibration Level Dependence of Impedance-Type Equivalent Circuit Constants," Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 30[Suppl.30-1], pp. 117-119, 1991
 7. Seok-Jin Yoon, Hyun-Jai Kim, Hyung-Jin Jung and Chang-Yub Park, "Dielectric and Piezoelectric Properties of $x\text{Pb}(\text{Y}_{2/3}\text{W}_{1/3})\text{O}_3-(1-x)\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$ Ceramics," Ferroelectrics, Vol. 145, pp. 1-7, 1993
 8. Seok-Jin Yoon, Amod Joshi and Kenji Uchino, "Effect of Additives on the Electromechanical Properties of $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3-\text{Pb}(\text{Y}_{2/3}\text{W}_{1/3})\text{O}_3$ Ceramics," J. Am. Ceram. Soc., Vol. 80[4], pp. 1035-1039, 1997
 9. K. Uchino; Piezoelectric Actuator, Morikita, Tokyo, p. 25, 1991
 10. Sadayuki Takahashi and Seiji Hirose, "Vibration-Level Characteristics for Iron-Doped Lead-Zirconate-Titanate Ceramics," Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 32, Part 1 [5B], pp. 2422-2425, 1993
 11. T. Ikeda; Fundamentals of Piezoelectric Materials Science, Ohmsha, Tokyo, p. 87, 1984
 12. Shinjiro Tashiro, Masahiko Ikehiro and Hideji Igarashi, "Influence of Temperature Rise and Vibration Level on Electromechanical Properties of High-Power Piezoelectric Ceramics," Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 36, Part 1. [5B]. pp. 3004-3009, 1997