

고출력 압전 변압기용 압전 세라믹의 조성에 관한 연구

이종필^{1*}
¹한국전기학원

A study on the composition of piezoelectric ceramic for high-power piezoelectric transformer

Jong-Pil Lee^{1*}

¹Korea Electric Institute

요 약 본 연구에서는 고출력 압전 변압기에 적합한 압전 세라믹을 찾고자 그 조성으로 PZT계에 $\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 와 $\text{Pb}(\text{Sb}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ 이 첨가된 3성분계 조성인 $0.95\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3+y\text{PMN}+(0.05-y)\text{PSN}$ 으로 하였는데, 기계적 품질계수를 향상시킬 목적으로 PMN을 선정하였고, PSN은 유전율 및 전기기계 결합계수가 PMN으로 인해 저하되는 것을 방지하고자 선정하였다. 이 3성분계 조성에서 최적의 성능을 가질 수 있는 MPB(Morphotropic Phase Boundary) 영역에서 유전·압전 및 전기적 특성을 정량적·정성적으로 검토하였다.

Abstract In order to develop piezoelectric transformer for the ballast of fluorescent lamp, the composition of piezoelectric ceramics was $0.95\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3+y\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3+(0.05-y)\text{Pb}(\text{Sb}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$. PMN compound was selected to improve mechanical quality factor and PSN to prevent the decrease of dielectric constant and electromechanical coupling coefficient. Dielectric and piezoelectric characteristics in the region of MPB of $0.95\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3+y\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3+(0.05-y)\text{Pb}(\text{Sb}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ ceramics was discussed both quantitatively and qualitatively.

Key Words : Piezoelectric Transformer, Piezoelectric Ceramic

1. 서론

고효율 압전 변압기에서 요구되는 압전 세라믹의 특성은 압전 변형 정수가 클수록 좋은데, 이러한 특성을 가지려면 전기기계 결합계수 k_p 가 크고 비유전율 ϵ_{33}^T 가 커야 한다. 아울러 압전 변압기의 전기기계적 결합에 있어서 그 품질을 좌우하는 전기적 품질계수 Q_e 와 기계적 품질계수 Q_m 이 양호할수록 압전체의 발열은 그 만큼 줄어든다. 그 외 높은 큐리점과 항전계는 압전 성능의 열화를 방지할 수 있으며, 압전 세라믹 입도 분포가 작고 균일할수록 소결 밀도의 증가는 물론 기계적인 강도가 양호해진다. 그러나 압전 재료는 MPB 영역에서 압전 변형 정수, 전기기계 결합계수 및 유전율이 크게 되는 반면 기계적 품질계수가 작아지는 특성을 가지므로, 압전 변압기의 출력 특성은 한계값을 갖고 있어 이에 대한 연구가 지속

적으로 이루어지고 있다[1-3].

본 연구에서는 고출력 압전 변압기를 실현하기 위해, 압전 세라믹 조성으로는 기계적 품질계수를 향상시킬 목적으로 PZT계에 제2성분인 복합 페로브스카이트 화합물을 선정하고, 아울러 유전율 및 전기기계 결합계수의 감소 폭을 줄일 수 있는 제3의 성분인 화합물을 선정하여 PZT 3성분계를 구성하고자 하며, 이 3성분계 조성에서 최적의 성능을 가질 수 있는 MPB 영역을 찾고, 유전·압전 및 전기적 특성을 정량적·정성적으로 검토하고자 한다.

2. 실험

2.1 시편제조

조성으로는 PZT계에 Pb-복합 페로브스카이트 화합물

*교신저자 : 이종필(jp1212@paran.com)

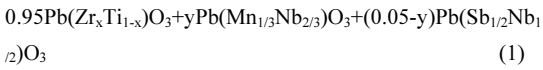
접수일 10년 11월 04일

수정일 10년 12월 21일

게재확정일 11년 01월 13일

인 $Pb(Sb_{1/2}Nb_{1/2})O_3$ 과 $Pb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ 이 첨가된 3성분 계 조성을 시도하였다. PMN은 기계적 품질계수를 높이고 유전 손실을 낮추기 위해 선정하였으며, PSN의 선정은 PMN으로 인해 발생할 수도 있는 전기기계 결합계수와 유전율의 감소를 줄이기 위한 방안으로 선정하였다.

본 연구에서 제안된 압전 세라믹 조성은 식 다음과 같다.



$$\text{단, } 0.49 \leq x \leq 0.53, \quad 0.02 \leq y \leq 0.04$$

조성에 다른 압전 세라믹의 제조시 하소는 750[°C]에서 4[hr] 동안 행하였다.

성형된 시료의 소결은 1200~1350[°C]의 범위에서 2[hr] 동안 행한 후, 디스크형인 경우 직경 15[mmφ], 두께 1[mm]로 하였으며, 장방형인 경우 길이 12[mm], 폭 3[mm] 그리고 두께를 1[mm]가 되도록 연마하였다.

위·아래면은 은 페이스트를 이용하여 스크린 인쇄 후, 650[°C]에서 소부하였다.

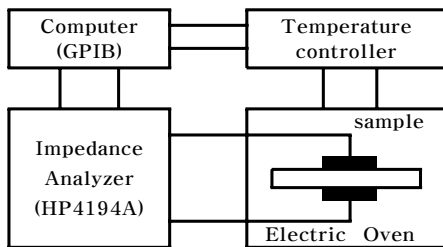
분극은 120[°C]의 실리콘유 중에서 3[kV/mm]의 직류 전계를 인가하였다.

2.2 특성 측정

2.2.1 저전계하에서의 유전 및 압전특성 측정

분극처리된 디스크형 및 사각형 시료를 이용한 저전계 하에서의 유전 및 압전 특성 측정은 그림 1의 실험 장치를 사용하여, 임피던스를 측정하였다. 유전 및 압전 정수는 인가 전압 1[V_{rms}]에서 임피던스 분석기(HP4194A)로부터 얻은 공진-반공진 등가 어드미턴스 회로의 각 소자 값을 이용하여 구하였다.

이 때 디스크형 시료에서 반경방향의 전기기계 결합계수(k_p), 기계적 품질계수(Q_m), 비유전율 ϵ_{33}^T 및 주파수 상수 N_p 를 구하였으며, 장방형 시료에서 횡방향 전기기계 결합계수(k_{31})을 구하였으며, EMAS 6001 규격에 의거하여 계산하였다.

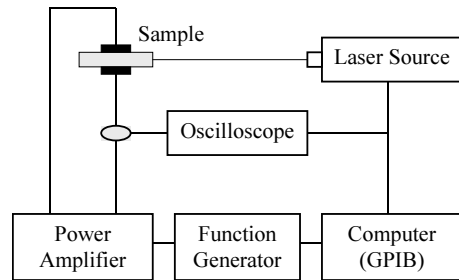


[그림 1] 저전계하에서 유전 및 압전특성 실험장치

2.2.2 고전계하에서의 유전 및 압전특성 측정

압전 변압기와 같은 고출력 및 대전용용 소자에 이용되는 압전 세라믹의 동작 특성은 고전계 하에서의 유전 및 압전 정수와 밀접하게 관계하고 있다. 12×3×1(L×W×t)[mm]의 장방형 시료를 제작하여 그림 2와 같은 실험 장치를 구성하고, 고전계 하에서 전압과 주파수 변화에 따른 임피던스 크기 및 위상, 공진 및 반공진 주파수를 측정하였다.

측정시 시료의 진동 속도 및 변위의 크기는 Laser source에 의해 측정하였으며 이들 측정치에 의하여 근사적으로 구한 공진-반공진 등가 어드미턴스 회로의 각 회로 정수는 압전 정수 근사식을 적용하여 구하였다.

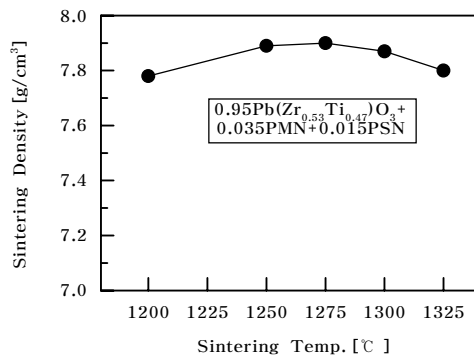


[그림 2] 고전계하에서 특성 실험 장치

3. 실험결과 및 고찰

3.1 저전계하에서의 유전 및 압전특성

소결 조건에 따라 압전 특성은 차이를 보이고 있으며, 소결 조건을 찾고자 1200~1325[°C]의 소결 온도에서 각각 2시간씩 행하여 나타난 소결 밀도가 그림 3이다.

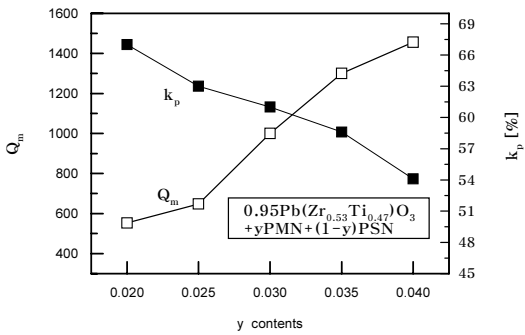


[그림 3] y함량 변화에 따른 소결밀도

소결 밀도는 1275[°C]에서 최대를 보였다. 이는 어느 적절한 소결온도 이하에서는 결정입이 충분히 성장하지 못한 것에 기인하는 것으로 볼 수 있으며, 또한 소결온도가 높게 되면 PbO의 휘발이 영향을 주기 때문에 기공이 발생할 수 있어 소결밀도가 감소할 수 있는 요인으로 사료된다.

시편의 소결조건은 1275oC, 2시간으로 하여 제작된 시편들에 대해 유전 및 압전 특성을 검토하였다.

그림 4는 식 (1)의 조성식에서 x=0.53으로 고정시킨 후, y의 함량을 변화시키면서 측정한 전기기계 결합계수와 기계적 품질계수이다.



[그림 4] y함량 변화에 따른 Q_m 과 k_p

그림 4에서 알 수 있듯이, PMN의 함량이 증가할수록 기계적 품질계수는 증가되는 반면 전기기계 결합계수는 감소하고 있다. 이는 공간 전하의 형성과 밀접한 관련이 있다고 생각된다[4]. 즉, Mn^{2+} 이나 Mn^{3+} 이온이 도핑되면 페로브스카이트 격자 내의 이온 반경과 비슷한 B-site를 점유하게 되며, 이 때 전기적으로 중성을 유지하기 위해 페로브스카이트 격자의 면심에 위치한 산소 이온의 공공이 발생으로 공간 전하가 형성된다. 이 공간 전하에 의한 세라믹 입자내의 내부 전계가 생기므로, 분극시 분역의 이동을 억제하는 효과를 가져온다. 따라서 분극시 분역벽의 이동이 점점 어려워지는 만큼 잔류 분극치가 작아지기 때문에 전기기계 결합계수 k_p 는 감소하게 되며, 또한 전기적 및 기계적 손실이 감소할 것이므로 기계적 품질계수 Q_m 은 증가하게 되는 것으로 이해할 수 있다.

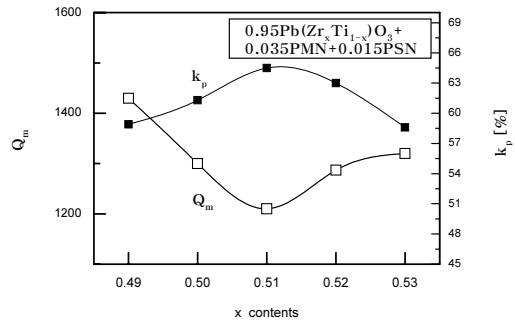
한편, 그림 4에서 PSN의 함량이 증가하게 되면 즉, PMN의 함량이 감소하면, 전기기계 결합계수 k_p 는 증가하고 기계적 품질계수 Q_m 은 감소하게 되는데 이의 원인은 도너형 이온인 Sb^{5+} 나 Nb^{5+} 는 크기가 Pb와 유사하여 Pb 위치에 치환되는 것으로 Pb 공공이 발생하여 분역벽의 이동이 용이해져, 분극이 쉽고, 전기기계 결합계수가

증가하는 반면 기계적 품질계수가 감소한 것으로 사료된다[5,6].

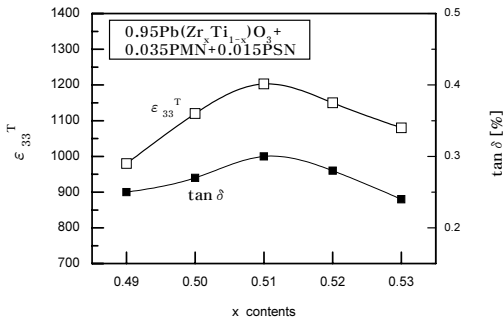
그림 4의 결과에서 압전변압기용으로 적당하다고 생각되는 것은 전기기계결합계수가 55%, 기계적 품질계수가 1200 이상인 것을 택하여 0.95Pb(Zr_xTi_{1-x})O₃+0.035Pb($Mn_{1/3}Nb_{2/3}$)O₃+(0.015Pb($Sb_{1/2}Nb_{1/2}$))O₃계의 압전 세라믹 조성에서 x 함량 즉, Zr/Ti 비를 변화시키면서 MPB 영역을 조사하면 위의 조성보다는 압전 변압기에 특성에 보다 적합한 압전 세라믹 조성을 얻을 수 있을 것으로 보여진다.

그림 5와 6은 위 조성에서 Zr/Ti비를 변화시키면서 측정한 Q_m , k_p , $\epsilon^{T_{33}}$, $\tan \delta$ 이다. 이들 그림에서 보듯이, k_p , $\epsilon^{T_{33}}$, $\tan \delta$ 는 Zr/Ti의 비가 51/49에서 최대치를 나타내고 있으며, Q_m 은 최소를 나타내었다. 이는 0.95Pb(Zr_xTi_{1-x})O₃+ 0.035PMN+0.015PSN계 세라믹 조성인 경우의 MPB 영역이 순수한 PZT의 MPB인 53/47과 비교해 볼 때, Ti-rich 쪽으로 이동하였음을 알 수 있는데, MPB 영역이 이동한 것은 PMN과 같은 페로브스카이트 화합물이 고용될 때, 이방성인 정방정상의 감소에 기인된 결과로 보여진다[5,6].

한편, 기계적 품질계수 Q_m 은 분역 운동에 대한 내부 저항(internal striction)의 역수임으로 기계적 품질계수 Q_m 의 감소는 분역 운동이 용이하다는 것을 의미한다. 그리고 손실 계수는 분역 경계(domain wall)의 이동에 기인하는 것으로 알려져 있으며, 손실 계수의 증가는 분역 경계의 이동을 증가시켜 분역 운동이 용이하다는 것을 의미한다[7-9]. 전기적인 품질계수 Q_e 는 손실 계수의 역수이므로, 분역 운동에 의해 유발되는 Q_m 과 Q_e 는 서로 비례 관계가 있으며, 본 실험에서도 일치하고 있다.



[그림 5] x함량 변화에 따른 Q_m 과 k_p

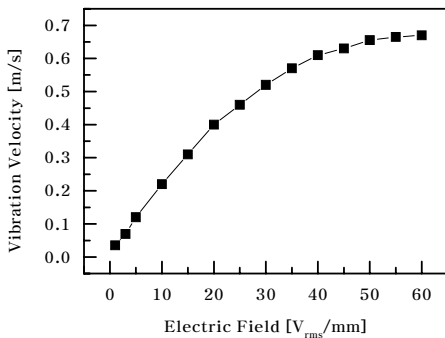


[그림 6] x함량 변화에 따른 ϵ_{33}^T 과 $\tan \delta$

3.2 고전계하에서의 유전 및 압전특성

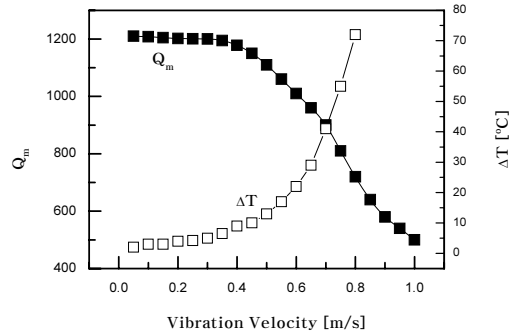
형광등용 압전 변압기에 적용하기 위해서는 상용 전원이 사용되므로, 로젠 타입의 압전 변압기에 비해 매우 높은 전압이 구동부에 인가된다. 따라서 압전 세라믹의 특성도 높은 전계하에서의 평가가 중요하게 된다. 임피던스 분석기에서 압전특성이 양호하게 나타난 0.95Pb(Zr_{0.51}Ti_{0.49})O₃ + 0.035Pb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O₃ + 0.015Pb(Sb_{1/2}Nb_{1/2})O₃ 시료에 대해 전계를 높여가면서 인가하여 유전 및 압전 특성의 측정하였다. 이 때 사용된 압전 세라믹 샘플의 크기는 12×3×1(L×W×t)[mm]인 장방향으로 제작된 것이다.

그림 7은 인가 전계에 따른 진동 속도이다. 인가 전계가 증가하여 약 40[V_{rms}/mm]까지의 범위에서 진동 속도는 거의 선형적으로 증가함을 보이고 있지만, 그 이상의 전계가 인가되면 진동 속도는 약간 포화하는 경향을 보이고 있다. 이는 인가 전계가 증가하면 진동 속도는 어느 한계점까지는 선형적으로 증가하다가 그 이상의 인가 전계에 있어서는 기계적 진동 손실 에너지가 증가하게 되어 진동 속도가 포화하기 때문으로 보인다[10-13].



[그림 7] 0.95Pb(Zr_{0.51}Ti_{0.49})O₃+0.035PMN+ 0.015PSN계에서의 진동 속도

그림 8은 그림 2의 실험 장치로 측정하여 기계적 품질 계수와 온도 상승률을 진동 속도에 따라 나타낸 것이다. 이 때 전압 기계적 품질계수는 및 주파수 변화에 따른 임피던스의 크기 및 위상, 공진 및 반공진 주파수 등의 측정값으로부터 공진-반공진 등가 어드미턴스 회로의 회로 정수를 구하고, 샘플의 진동을 Laser source에 의해 측정하여 진동 속도를 측정하여 구한 것이다. 진동 속도가 증가함에 따라 기계적 품질계수는 약 0.5[m/s]까지는 1100 정도 이상의 값을 유지하였으나, 그 이상의 진동 속도에서는 기계적 품질 계수가 급격하게 감소하게 되어 약 550 정도로 되었다. 이는 그림 8에서 알 수 있듯이 한계점 이상의 전계를 인가하면 인가된 전기적 에너지가 기계적 에너지인 진동 속도로 변환되지 않고 진동 손실만 증가 시키므로 기계적 품질 계수가 급격하게 감소하게 된다 [13].



[그림 8] 0.95Pb(Zr_{0.51}Ti_{0.49})O₃+0.035PMN+0.015PSN계에서의 Q_m 과 ΔT

또한, 진동 속도에 대한 온도 상승률은 진동 속도 0.5[m/s]까지는 약 10[°C]로 안정적이었으나 진동 속도가 그 이상이 되면 갑자기 증가하여 진동 속도 0.8[m/s]에서는 거의 온도 상승률이 75[°C]정도이었다.

이는 진동 속도가 증가함에 따라 기계적 품질 계수는 진동 속도의 어느 한계점에서 갑자기 감소하므로 압전 세라믹 자체의 온도 상승률이 급격히 증가하는 것으로 생각할 수 있다.

압전 변압기와 같은 고출력 압전 디바이스에서는 각 제작사 마다 기준이 다르지만 NEC에서는 안정적인 출력을 나타낼 수 있는 한계를 진동 속도 0.3[m/s]이상에서 온도 상승률은 20[°C]이하, 기계적 품질 계수의 감소분 (ΔQ_m)은 10[%]이하를 기준으로 정하고 있다[13]. 이와 같은 기준과 비교해 볼 때, 위와 같은 조성비를 갖는 샘플에서 온도 상승률이 급격히 증가하는 진동 속도는

0.5[m/s]이상이므로 압전 변압기로의 응용이 가능할 것이라 사료된다.

4. 결론

본 연구에서는 PZT계에 Pb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O₃와 Pb(Sb_{1/2}Nb_{1/2})O₃이 첨가된 3성분계 조성인 0.95Pb(Zr_xTi_{1-x})O₃+yPb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O₃+(0.05-y)Pb(Sb_{1/2}Nb_{1/2})O₃(단, 0.49 ≤ x ≤ 0.53, 0 < y < 0.05)을 시도하였다.

우선 x=0.53으로 고정시킨 후, y의 함량(PMN의 함량)을 0.02, 0.025, 0.03, 0.035, 0.04로 변화시키면서 측정된 결과로서 PMN의 함량이 증가할수록 기계적 품질계수는 증가되는 반면 전기기계 결합계수는 감소하였다. 이 중에서 y=0.035몰인 경우, 기계적 품질계수는 1300, 전기기계 결합계수는 58.6[%]를 얻었다.

다음으로 y=0.035몰로 고정시키고 x를 0.49, 0.50, 0.51, 0.52, 0.53으로 변화시키면서 MPB 영역을 찾은 결과 x가 0.51과 0.52사이에 존재하였고, 조성으로는 0.95Pb(Zr_{0.51}Ti_{0.49})O₃+0.035PMN+ 0.015PSN이었음을 알 수 있다.

형광등용 압전 변압기에 이용되는 압전 진동자는 고전계에서 사용되므로, 고전계 하에서 압전 특성의 평가가 중요하다. 저전계 하에서 압전 특성이 양호하게 나타난 0.95Pb(Zr_{0.51}Ti_{0.49})O₃+ 0.035Pb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O₃+0.015Pb(Sb_{1/2}Nb_{1/2})O₃ 시료에 대해 고전계를 인가하여 측정된 결과는 다음과 같았다.

인가 전계가 증가함에 따라 약 40[V_{rms}/mm]까지는 진동 속도가 거의 선형적으로 증가하였으나, 그 이상으로 되면서 약간 포화하는 경향을 보이고 있다. 또한 진동 속도가 증가함에 따라 기계적 품질계수는 약 0.5[m/s]까지는 1100정도 이상의 값을 유지하였으나 그 이상의 진동 속도에서는 기계적 품질 계수가 급격하게 감소하게 되어 약 500정도로 되었다. 그리고 진동 속도에 대한 온도 상승률은 진동 속도 0.5[m/s]까지는 약 10[°C]로 안정적이었으나 진동 속도가 그 이상이 되면 갑자기 증가하여 진동 속도 0.8[m/s]에서는 거의 온도 상승률이 75[°C]정도 이었다.

참고문헌

[1] M. Nishiba, S. Kawashima, I. Ueda, and H.Ouchi, "Piezoelectric Ceramics for High Power Use," Nat'l Tech. Report, Vol. 28, No. 6, pp. 1115-1122, 1982.

[2] T. Izaki, K. Terao, K. Murakawa, and Y. Ariake, "The Development of Piezoelectric Ceramics with Large Piezoelectric Strains," The Sumitomo Search, No. 44, pp. 278-284, 1990.

[3] Koji Ogiso, Piezoelectric ceramic composition for surface acoustic wave device and surface acoustic wave device, US Patent No. 6,423,245, 2002.

[4] 박재환 외, "MnO₂ 첨가에 따른 PMN-PT계 완화형 강유전체에서의 압전특성", 한국세라믹학회논문지, Vol. 37, No. 10, pp. 1021-1024, 2000.

[5] 윤광희 외, "PSN 치환이 PNN-PZT 세라믹스의 미세구조 및 압전 특성에 미치는 영향", 전기전자재료학회지, Vol. 14, No. 5, pp. 356-361, 2001.

[6] 나은상 외, "Pb_(1-x)Cd_x(Mn, Sb), Zr, Ti)O₃ 세라믹스의 소결 거동 및 압전특성에 관한 연구", 한국세라믹학회지, Vol. 37, No. 4, pp. 395-401, 2000.

[7] 안영필 외, "2가 및 6가의 첨가제에 따른 PZT 자기의 유전적 성질에 관한 연구" 한국세라믹학회논문지, Vol. 20, No. 1, pp. 19-24, 1983.

[8] 조봉희 외, "초음파센서수신기용 PZT-PNN계 압전세라믹스에 MnO₂ 첨가가 미치는 영향", 전기전자재료학회논문지, Vol. 1, No. 4, pp. 17-24, 1988.

[9] 박재환 외, "MnO₂ 첨가에 따른 PMN-PT계 완화형 강유전체에서의 압전특성", 한국세라믹학회논문지, Vol. 37, No. 10, pp. 1021-1024, 2000.

[10] S. Hirose, Y. Yamayoshi, M. Taga, and H. Shimizu, "A Method of Measuring the Vibration Level Dependence of Impedance-Type Equivalent Circuit Constants," Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 30, Suppl. 30-1, pp. 117-119, 1990.

[11] S. Takahashi and S. Hirose, "Vibration-level Characteristics of Lead-Zirconate-Titanate Ceramics," Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 31, No. 9B, pp. 3055-3057, 1992.

[12] Takenobu Sakai and Hiroshi Kawamoto, "Relationship between Electrical Properties and Dynamic Displacement of Piezoelectric Pellets", Journal of the Ceramic Society of Japan, Vol. 105, No. 12, pp. 1120-1124, 1997.

[13] Hidemasa Kawai, Yasuhiro Sasaki, Takeshi Inoue, Takayuki Inoi, Koichi Zama, and Sadayuki Takahashi, "High Power Piezoelectric Ceramics", NEC Technical Journal, Vol. 49, No. 10, 1996.

이 종 필(Jong-Pil Lee)

[정회원]



- 1998년 8월 : 광운대학교 대학원
전기공학과 (공학석사)
- 2004년 8월 : 광운대학교 대학원
전기공학과 (공학박사)
- 1994년 2월 ~ 현재 : 한국전기
학원 원장

<관심분야>
전기, 재료