

논문 21-6-6

## 순수한 Ag 내부전극을 사용한 PZW-PMN-PZT 저손실 적층 액츄에이터의 적층수에 따른 압전 특성

### Piezoelectric Properties of PZW-PMN-PZT Low Loss Multilayer Actuator according to the Number of Multilayer using Pure Ag Internal Electrode

류주현<sup>1,a</sup>, 이갑수<sup>1</sup>, 이일하<sup>1</sup>  
(Juhyun Yoo<sup>1,a</sup>, Kabsoo Lee<sup>1</sup>, and Ilha Lee<sup>1</sup>)

#### Abstract

In this paper, in order to develop low loss multilayer actuator, piezoelectric properties of PZW-PMN-PZT multilayer actuator sintered at 900 °C low temperature were investigated according to the number of multilayer. The multilayer actuator was fabricated using tape casting method and used pure Ag internal electrode. The density above 8.0 g/cm<sup>3</sup> was obtained at all specimens. With increasing number of multilayer, effective electromechanical coupling factor(k<sub>eff</sub>) was increased. k<sub>eff</sub> of multilayer actuator shows the maximum value of 0.283 at 11 layers actuator. However, effective mechanical quality factor(Qm') was decreased according to the increase of number of multilayer. The Qm' of multilayer actuator showed the maximum value of 920 at 5 layers actuator.

**Key Words** : Multilayer actuator, Ag paste, Two-stage calcination, PZW-PMN-PZT ceramics properties

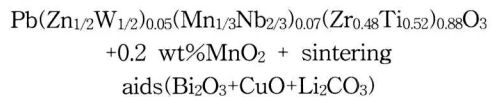
#### 1. 서론

압전 액츄에이터(Piezoelectric actuator)란 전기 에너지를 기계적 에너지로 변환하는 소자로써, 큰 변위, 빠른 응답속도, 큰 발생력, 낮은 구동전압 등의 장점이 있다[1]. 낮은 구동전압과 큰 변위를 얻기 위해 테이프캐스팅(Tape casting)방법을 이용한 적층형 압전액츄에이터의 연구가 활발히 진행되고 있다[2]. 적층형 압전액츄에이터의 경우 구조적특성으로 인해 내부전극이 함께 소결되며 일반적인 PZT계 세라믹은 1200 °C 이상의 소결온도를 갖는다. 1200 °C 이상의 높은 온도에서 세라믹스와 전극을 동시 소성하기 위해 용점이 높은 Ag-Pd, Ag-Pt 등의 내부전극을 사용하는데 전극의 높은 가격으로 인한 문제를 내포하고 있다. 상대적으로

저렴하고 용점이 낮은 순수한 Ag 전극을 사용할 경우 제조원가 절감을 기대할 수 있으나 순수한 Ag 전극을 사용하기 위해서는 900 °C 이하의 저온소결이 필요하다[3]. 본 연구에서는 순수한 Ag 전극을 내부전극으로 사용하여 높은 기계적품질계수를 가지는 저손실 적층 압전 액츄에이터를 제작하였다. 순수한 Ag 전극을 사용한 액츄에이터를 동시소성하기 위해 900 °C에서 높은 압전 및 유전특성을 갖는 PZW-PMN-PZT 조성을 사용하였으며 액츄에이터의 적층수를 변화주어 그에 따른 압전특성을 관찰하였다[4-6].

#### 2. 실험

본 실험에서는 다음과 같은 조성식을 사용하여 적층형 압전 초음파모터에 응용할 소자를 제작하였다.



1. 세명대학교 전기공학과  
(충북 제천시 신월동 579)  
a. Corresponding Author : juhyun57@semyung.ac.kr  
접수일자 : 2008. 5. 3  
1차 심사 : 2008. 5. 16  
심사완료 : 2008. 5. 23

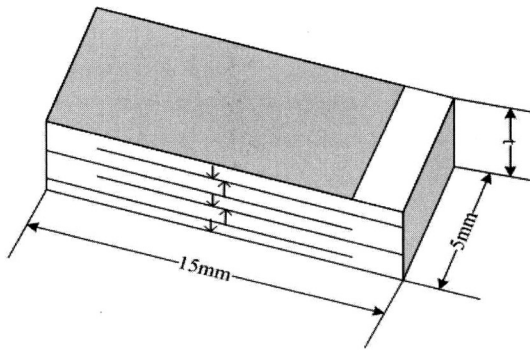


그림 1. 적층 액츄에이터의 구조.  
Fig. 1. Structure of multilayer actuator.

조성식에 따라  $10^{-4}$  g까지 평량 하였으며, 아세톤을 분산매로 사용하여 지르코니아 볼(Zirconia ball)을 사용하여 24시간동안 혼합 분쇄 하였다. 혼합 분쇄한 시료를 1100 °C의 온도로 4시간 동안 하소(1차)한 후, 다시 750 °C에서 2시간 동안 하소(2차)하였다. 하소된 시료에 소결첨가제를 첨가하여 24시간동안 혼합 분쇄하였고, 슬러리(Slurry)를 제작하기 위해서 파우더와 PVB를 72:28의 비율로 섞어서 24시간동안 혼합하였다. 제조된 슬러리를 닥터블레이드(Doctor Blade)를 이용하여 테이프 캐스팅(Tape casting)하였다. 제작된 시트(Sheet)는 약 75  $\mu\text{m}$ 였으며, 소성시의 수축율을 고려해 한 층의 두께를 120  $\mu\text{m}$ 으로 하여 5, 7, 9, 11층으로 적층하였다. 이때 내부전극으로 순수한 Ag전극을 사용하였다. 적층한 시트(Sheet)를 80 °C에서 350 kgf/cm<sup>2</sup>의 압력으로 일축 성형하였으며, 340 °C에서 3시간 번아웃(Burnout)한 후 900 °C에서 2시간 소결하였다. 제작된 적층 압전 액츄에이터의 구조는 그림 1과 같다.

소결된 액츄에이터의 전기적 특성을 측정하기 위해서 Ag 외부전극을 도포하여 650 °C에서 10분간 열처리하였다. 전극이 형성된 액츄에이터를 120 °C 실리콘 오일에서 DC 3 kV/mm로 30분간 분극하였다. 분극 된 액츄에이터는 24시간 후에 임피던스 측정기(Agilent 4294A)를 이용하여 주파수 및 임피던스특성을 측정하였다. 액츄에이터의 압전 및 유전 특성은 IEEE의 규정에 따라 공진 및 반공진법을 이용하여 조사하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 PZW-PMN-PZT세라믹스의 특성

그림 2는 PZW-PMN-PZT조성으로 제작된 시편

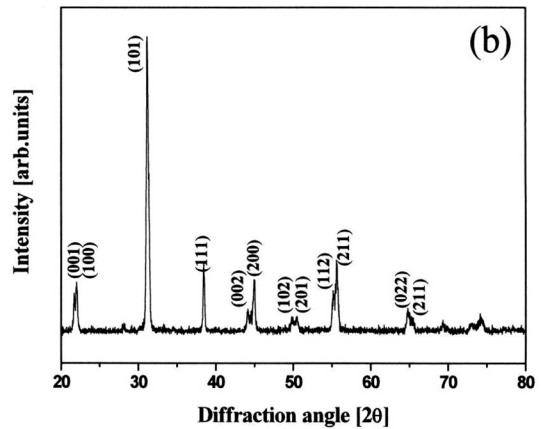
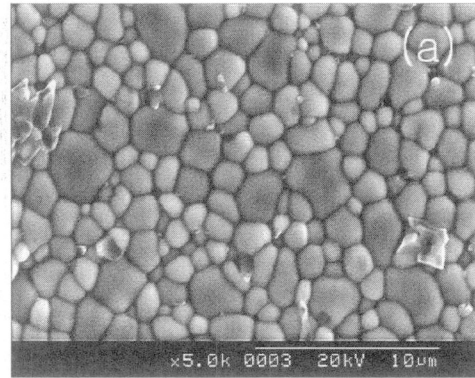


그림 2. PZW-PMN-PZT세라믹스의 미세구조(a) 및 XRD 패턴(b).

Fig. 2. Microstructure(a) and XRD pattern(b) of PZW-PMN-PZT ceramics.

의 미세구조(a)와 X-ray 회절 패턴(b)을 나타낸 것이다. 시편은 소결조제의 첨가로 인해 900 °C의 낮은 소결온도에서 7.78 g/cm<sup>3</sup>의 높은 밀도를 나타냈으며 전기기계결합계수 (kp), 기계적품질계수 (Qm), 압전상수 (d<sub>33</sub>)은 각각 0.563, 1201, 333 pC/N 으로 우수한 특성을 나타내었으며 평균입경은 약 2.03  $\mu\text{m}$ 의 크기를 보였다. 또한 이차상이 존재하지 않는 순수한 perovskite구조를 나타냈다. 이러한 결과는 최근에 연구되고 있는 저온소결 실험 중에서도 우수한 특성을 나타냈기 때문에 이번 실험에서 액츄에이터 제작에 사용하게 되었다[5].

최근에 보고됐던 연구논문들과 이번실험에서 사용된 PZW-PMN-PZT세라믹스의 물성을 표 1에 나타내었다.

표 1. 우리와 다른 연구자들의 조성의 물성.

Table 1. Physical properties of our composition and other researcher's composition.

Sample no.	Sintering temp.[°C]	Density [g/cm <sup>3</sup> ]	Dielectric constant	kp	Qm	d <sub>33</sub> [pC/N]
A	900	7.78	1400	0.563	1201	333
B	900	-	-	0.560	1042	350
C	950	7.8	-	0.610	800	340
D	995	-	-	0.600	1910	256
E	1020	-	-	0.590	1551	309

샘플 A는 이번 액츄에이터 제작에 사용된 세라믹의 물성이고, 샘플 B부터 E까지는 최근에 다른 연구자들이 개발한 저온소결 세라믹스의 물성을 나타낸 것이다.

B:Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub>-Pb(Zn,Ni)<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>O<sub>3</sub>[7]

C:Pb(Sc<sub>1/2</sub>Nb<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>[8],D:Pb (Mg<sub>1/3</sub>

Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-Pb(Zn<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-Pb(Zr<sub>0.52</sub>Ti<sub>0.48</sub>)O<sub>3</sub>[9],

E:Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub>-Pb(Fe<sub>2/3</sub>W<sub>1/3</sub>)O<sub>3</sub>-Pb(Mn<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>[10].

샘플 B같은 경우는 900 °C소결로 우리의 조성과 비슷한 물성을 가지지만 Qm의 관점에서 볼 때, 우리의 조성이 높았고, 샘플 C~E는 우수한 특성을 보이는 반면에 상대적으로 소성온도가 높았다.

액츄에이터 제작시 내부전극으로 사용되는 Ag/Pd는 제품의 가격을 상승시키는 요인이므로 상대적으로 저렴한 전극으로 대체할 필요가 있다. 순수한 Ag전극은 原價節減이라는 경쟁력을 가지지만 低 용점으로 인한 저온소결이 불가피 하다. 그러나 저온소결 시 발생하는 세라믹의 특성저하 또한 피할 수 없다. 그렇기 때문에 Ag전극을 사용하여 액츄에이터를 제작하기 위해서는 저온소결에서도 특성이 좋은 세라믹 조성을 개발해야 한다. 그러므로 이번 실험에서 사용된 우리의 조성은 최근에 보고된 다른 세라믹스 물성과 비교해 볼 때, 900 °C 소성에 높은 kp, Qm을 가지므로 액츄에이터 제작에 사용하기에 무리가 없다고 사료된다.

이번 연구에서는 실제적으로 PZW-PMN-PZT 세라믹스를 사용하여 적층 액츄에이터로 제작하였다. 또한, 층수변화를 주어 그 전기적 특성을 알아보고 최적층수에서의 전기적 특성을 알아보고자 실험하였다.

### 3.2 적층 액츄에이터의 특성

그림 3은 적층 액츄에이터의 SEM사진을 나타낸 것이다. (a)그림들은 액츄에이터의 세로단면으로 그림에서도 확인할 수 있듯이 전체 적층수가 확연히 구분된다. (b)그림들은 액츄에이터의 층을 확대한 것으로 Ag전극과 세라믹스의 경계가 명확하고 전극의 확산이나 delamination은 나타나지 않았으며 치밀하게 소결된 상태를 확인할 수 있다.

그림 4는 적층수 변화에 따른 적층 액츄에이터의 밀도를 나타낸 것이다. 선행실험에서도 미루어 짐작할 수 있었듯이 적층 액츄에이터는 모두 8.0 g/cm<sup>3</sup>이상의 높은 밀도를 나타냈다. 밀도가 높다는 것은 소결이 잘 이루어졌음을 의미하고, 이것은 SEM사진을 통하여 확인할 수 있었다. 적층수가 증가할수록 밀도가 미세하게 증가하였는데 이러한 결과는 약 10.49 g/cm<sup>3</sup> 밀도를 가지는 Ag의 영향으로 층수가 증가하면서 Ag의 양도 증가하여 밀도의 상승요인이 된 것으로 사료된다.

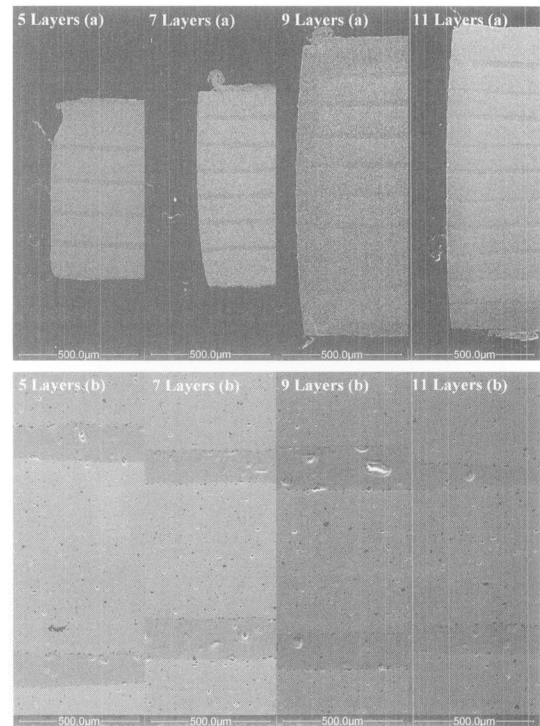


그림 3. 적층 수에 따른 적층 액츄에이터의 SEM 사진.

Fig. 3. SEM photograph of multilayer actuator as a function of the number of multilayer.

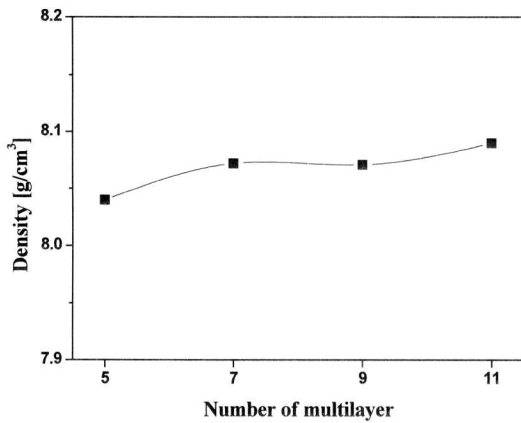


그림 4. 적층수 변화에 따른 밀도.  
Fig. 4. Density according to the number of multilayer.

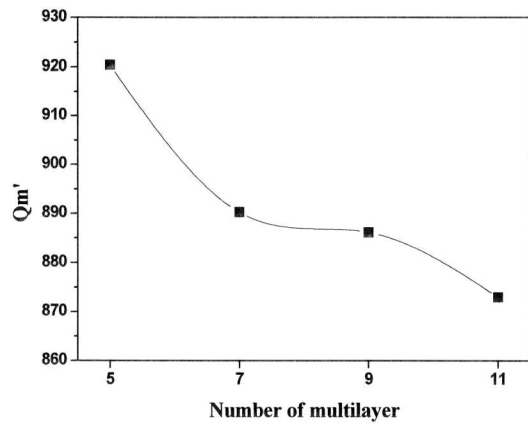


그림 6. 적층수 변화에 따른 유효 기계적품질계수 (Qm').  
Fig. 6. Effective mechanical quality factor(Qm') according to the the number of multilayer.

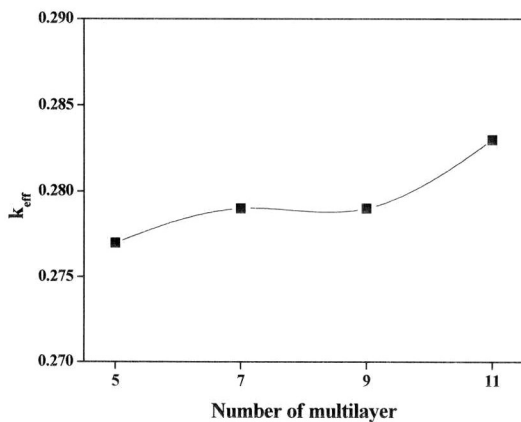


그림 5. 적층수 변화에 따른 유효전기기계결합계수(k<sub>eff</sub>).  
Fig. 5. Effective electromechanical coupling factor(k<sub>eff</sub>) according to the number of multilayer.

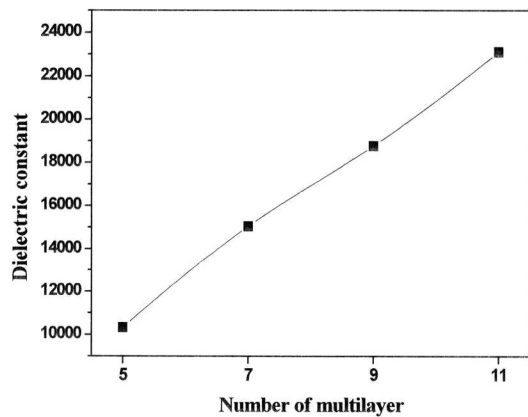


그림 7. 적층수 변화에 따른 유전상수.  
Fig. 7. Dielectric constant according to the number of multilayer.

그림 5는 적층수 변화에 따른 적층 액츄에이터의 유효전기기계결합계수 ( $k_{eff}$ )를 나타낸 것이다. 적층 액츄에이터의 적층수가 증가할수록  $k_{eff}$ 가 미세하게 증가하는 경향을 나타냈다. 이러한 결과는 밀도상승에 기인하여 적층수가 증가함에 따라 소결성이 좋아진 것으로 사료되며 적층수가 11층일 때  $k_{eff}$ 는 0.283로 최댓값을 나타내었다. 유효 전기 기계결합계수는 다음의 식에 의해 계산되었다.

$$k_{eff} = \sqrt{\frac{f_a^2 - f_r^2}{f_a^2}}$$

그림 6은 적층수 변화에 따른 적층 압전 액츄에이터의 유효 기계적품질계수(Qm')을 나타낸 것이다. Qm'는 액츄에이터의 적층수가 증가할수록 감소하는 경향을 나타냈다. 이러한 결과는 일반적인 kp상승에 의한 Qm의 감소와 Ag가 액츄에이터의

손실로 작용하였기 때문에 사료된다.  $Qm'$ 은 적층수가 5층일 때 920으로 최댓값을 나타냈으며, 유효 기계적품질계수는 다음의 식에 의해 계산되었다.

$$Qm' = \frac{1}{2\pi f_r \left[ 1 - \left( \frac{f_r}{f_a} \right)^2 \right] RC}$$

그림 7은 적층수 변화에 따른 적층 압전 액츄에이터의 유전상수를 나타낸 것이다. 적층 액츄에이터의 유전상수는 적층수가 증가함에 따라 선형적으로 증가하는 특성을 나타내었다. 이러한 결과는 세라믹스의 적층으로 인한 세라믹스의 병렬연결에 의한 결과로 사료된다.

표 2에 적층수에 따른 적층액츄에이터의 물성을 나타내었다.

**표 2.** 적층수에 따른 적층 액츄에이터의 물성.  
**Table 2.** Physical properties of multilayer actuator according to the number of multilayer.

Sintering temp.[℃]	Layer	Density [g/cm <sup>3</sup> ]	k <sub>eff</sub>	Qm'
900	5	8.04	0.277	920
	7	8.07	0.279	890
	9	8.07	0.279	886
	11	8.09	0.283	872

#### 4. 결 론

본 연구에서는 초음파 선형모터를 개발하기 위해 적층형 압전 액츄에이터를 순수 Ag전극을 사용하여 tape casting 방법을 이용한 적층형 압전 액츄에이터를 제작하여 적층수 변화에 따른 압전 특성을 조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 적층 압전액츄에이터는 모두 8.0 g/cm<sup>2</sup>이상의 밀도를 나타냈으며 900 ℃의 낮은 소결온도에서 완전 소성되었다.

2. 모든 시편에서 crack, delamination, 전극의 diffusion 등의 현상은 발견되지 않았으며 내부전극으로 인한 밀도의 증가가 발생되었다.

3. 적층수가 증가할수록 k<sub>eff</sub>는 증가하는 특성을 나타냈으며, Qm'은 감소하는 특성을 나타냈다. k<sub>eff</sub>는 적층수가 11층일 때 0.283로 최댓값을 나타냈고, Qm'은 920으로 최댓값을 나타냈다.

본 실험에서는 900 ℃의 낮은 소결온도에서 Ag를 내부전극으로 하는 저손실 액츄에이터를 성공적으로 개발하였으나 액츄에이터의 구동특성 및 최적화에 대한 추후연구가 필요한 실정이다.

#### 참고 문헌

- [1] M. Suga and M. Tsuzuki, "Improved drop ejection characteristics through use of micro-valves in ink jet head", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 23, No. 6, p. 765, 1984.
- [2] J. J. Choi, J. H. Lee, B. D. Hahn, W. H. Yoon, and D. S. Park, "Co-firing of PZN-PZT/Ag multilayer actuator prepared by tape-casting method", Mater. Resea. Bull., Vol. 43, p. 483, 2008.
- [3] I. H. Im, H. S. Chung, D. S. Paik, C. Y. Park, J. J. Park, and S. G. Bae, "Multilayer piezoelectric actuator with AgPd internal electrode", J. Eur. Ceram. Soe., Vol. 20, p. 1011, 2000.
- [4] K. S. Lee, I. H. Lee, J. H. Yoo, and S. I. Ryu, "Piezoelectric and dielectric properties of PZW-PMN-PZT Piezoelectric ceramic according to sintering aid Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> addition", J. of KIEEME(in Korean), Vol. 20, No. 12, p. 1034, 2007.
- [5] J. H. Yoo and K. S. Lee, "Piezoelectric and dielectric properties of low temperature sintering Pb(Zn<sub>1/2</sub>W<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub>-Pb(Mn<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-Pb(Zr<sub>0.48</sub>Ti<sub>0.52</sub>)O<sub>3</sub> ceramics manufactured by post-annealing method", J. of KIEEME(in Korean), Vol. 21, No. 3, p. 227, 2008.
- [6] K. S. Lee, "A Study on the Electrical Properties of Linear Ultrasonic Motor using the PZW-PMN-PZT composition ceramic", Semyung Univ., A master's degree thesis of engineering.
- [7] A. Ngamjarrojana, S. Ural, S. H. Park, S. Ananta, R. Yimnirun, and K. Uchino, "Piezoelectric properties of low temperature sintering in Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub>-Pb(Zn,Ni)<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>O<sub>3</sub> ceramics for piezoelectric transformer applications", Ceram. Inter., Vol. 34, p. 705, 2008.

- [8] S. Zhang, R. Xia, and T. R. Shrout, "Low temperature sintering and properties of piezoelectric ceramics PSNT-Mn with  $\text{LiBiO}_2$  addition", *Mater. Sci. & Eng.*, Vol. 129, p. 131, 2006.
- [9] X. Chao, Z. Yang, G. Li, and Y. Cheng, "Fabrication and characterization of low temperature sintering PMN-PZN-PZT step-down multilayer piezoelectric transformer", *Sensor and Actuators*, Vol. 144, p. 117, 2008.
- [10] X. Chao, Z. Yang, C. Kang, and Y. Chang, "Effects of  $\text{BiFeO}_3$  addition on electrical properties and temperature stability of low temperature sintered PZT-PFW-PMN ceramics", *Sensor and Actuators*, Vol. 141, p. 482, 2008.