


압전재료의 기초 물성 측정

강우석, 이건주, 조 옥 

울산과학기술원 신소재공학과 및 JULIA 연구센터

초록: 본 논문은 대학 연구실과 산업현장에서 강유전 압전 분야 연구를 갓 시작한 이들이 압전 소재의 특성에 대한 기초적, 이론적 개념에 대해서는 각종 교과서와 논문을 통해 쉽게 접할 수 있는 반면, 그 특성들이 실제로 어떻게 측정되고 평가되는 지에 대한 정보를 얻기가 힘들다는 점에 착안하여 압전 분야 입문자가 관련 측정 기술을 보다 쉽게 이해하고 접근할 수 있도록 돕는 것을 목적으로 한다. 기초 유전 물성인 임피던스에 기반한 유전상수와 유전손실 측정법을 시작으로 압전상수, 전기기계결합계수, 품질계수 및 측정 방법에 대해 논의하고, 강유전성을 대표하는 전계에 따른 분극 변화 측정법에 대해 기술하였다. 본 논문에서는 이미 표준화되어 있는 측정법들을 소개하고 있지만, 이를 숙지하고 응용한다면 보다 도전적이고 창의적인 측정법을 도출할 수 있을 것으로 기대한다.

키워드: 유전특성, 압전특성, 강유전특성

Practical Guide to the Characterization of Piezoelectric Properties

Woo-Seok Kang, Geon-Ju Lee, and Wook Jo

Department of Materials Science and Engineering & Jülich-UNIST Joint Leading Institute for Advanced Energy Research (JULIA),
Ulsan National Institute of Science and Technology (UNIST), Ulsan 44919, Korea

(Received August 9, 2021; Revised August 14, 2021; Accepted August 16, 2021)

Abstract: Theoretical background for the meaning of various piezoelectric properties can be easily found in a number of textbooks and academic papers. In contrast, how they are actually measured and characterized are rarely described, though this information would be the most important especially to the researchers who just started working on the field. It follows that this report was intended to provide a practical guidance for measuring basic but essential properties of ferroelectric-based piezoelectric materials. The discussion begins with how to measurement dielectric properties such as dielectric permittivity and loss (dissipation factor), followed by piezoelectric properties such as piezoelectric constants, electromechanical coupling factor, and quality factor as well as ferroelectric features, i.e., electric field dependent polarization hysteresis. Though our discussion here is limited to the techniques that are already well-standardized, it is expected to make a seed to be developed into more challenging and creative ones.

Keywords: Dielectric properties, Piezoelectric properties, Ferroelectric properties

✉ Wook Jo; wookjo@unist.ac.kr

1. 서 문

- 압전 특성은 하나의 결정학적 축에 대해 점대칭이 결여될 때 나타나는 현상이므로 원칙적으로 단결정에서만 발현되는 특성이다. 강유전성은 외부 전기장의 영향 없이 자발분극(spontaneous polarization)이 형성되고 그 자발분극의 방향을 외부 전기장에 의해 바꿀 수 있는 특성을 지칭한다. 외부 전기장에 의해 자발분극의 방향을 바꿀 수 있는 강유전성으로 인해 강유전 세라믹스에서도 충분히 큰 외부 전기장을 인가하는 폴링(poling)이란 공정을 통해 압전특성을 유도할 수 있다. 따라서 압전 세라믹이라는 용어 자체는 이미 해당 소재가 강유전 특성을 가지고 있음을 의미한다.
- PZT와 더불어 가장 많이 활용되는 강유전 재료 중 하나인 $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$ system 중 $x=0.325$ 인 $0.675\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-0.325\text{PbTiO}_3$ (PMN-0.325PT) 세라믹의 특성 보고한 예를 Table 1에 제시하였다 [1].
- 일반적으로 재료의 특성 값은 대상 재료의 기하학적 형상 및 치수와 무관한 값으로 정규화(normalized)하

여 보고하는 것이 바람직하다. 따라서 유전용량은 유전율(ϵ_r)로 표시하고, 압전성의 핵심인 전기기계결합 계수(k_p)의 지표로 활용되는 공진 주파수(f_r), 반공진 주파수(f_a)는 각 진동모드에 대한 주파수 상수로 제시하는 것이 좋다.

- 강유전 특성의 기본은 유전 특성이므로 강유전 재료의 제반 특성은 기본적으로 유전성에 기반한다고 할 수 있다. 즉, 압전성 및 강유전성은 유전특성의 특수한 경우에 해당한다는 의미이다. 따라서 강유전 및 압전소재의 특성 분석은 기본적으로 임피던스에 기반한 유전 특성 분석을 전제로 한다. 소재가 압전성 또는 강유전성을 가질 경우, 측정 주파수 및 온도에 따른 임피던스 거동에서 일반적인 유전소재와 다른 거동을 보이기 때문에, 이를 활용하여 압전 및 강유전성에 대한 1차 특성치를 도출하고, 압전 및 강유전 특성 분석에 특화된 추가 측정 방법을 활용하여 각 현상에 대한 주요 특성치를 도출할 수 있다. 각각의 현상에 대한 표준화된 측정 파라미터와 상하위 특성치 간의 상관 관계를 그림 1에 도시하였다.

Table 1. Dielectric, piezoelectric and ferroelectric properties of PMN-PT [1].

Sample name	ϵ_r	D_f [%]	N_p [Hz•m]	Z_r [Ω]	N_t [Hz•m]	Z_a [Ω]	Δf	k_p	Q_m	d_{33} [pC/N]	g_{33} [mV•m/N]	Strain [%]	S_{\max}/E_{\max} [pm/V]	P_{\max} [$\mu\text{C}/\text{cm}^2$]	P_r [$\mu\text{C}/\text{cm}^2$]	ρ [g/cm^3]
PMN-0.325PT	2,239	1.02	2,047.5	8.4	119.7	14,167	29.4	0.5413	132.3	392	19.78	0.137 (at 3kV/mm)	456.6 (at 3kV/mm)	31.28 (at 3kV/mm)	25.00 (after poling at 3kV/mm)	7.938

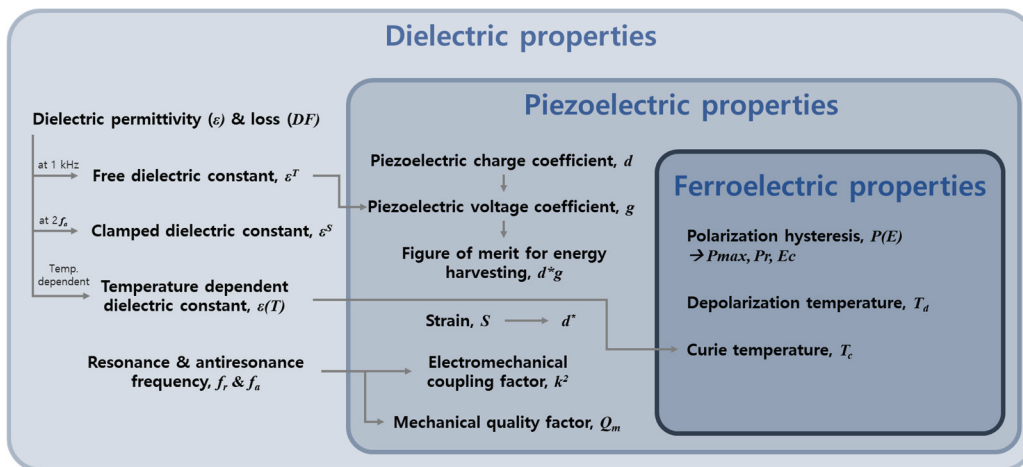


Fig. 1. Schematic diagram of ferroelectric piezoelectric material properties that can be measured experimentally (because ferroelectricity is a special case of piezoelectricity and piezoelectricity is a special case of dielectricity, it is reasonable to proceed in the order of dielectricity, piezoelectricity, and ferroelectricity for actual measurement).

1.1 해외 및 국제 기관 표준화 현황

■ 압전 소재 및 소자의 관련 특성들은 측정 환경 및 방법에 따라 상이한 결과로 도출될 수 있기 때문에 세계 여러 기관에서 표준을 만들기 위해 노력해 왔다. 해당 분야에서 표준을 제정하기 위해 노력한 기관과 표준서를 아래와 같이 소개한다.

1) 유럽 전기 표준화 위원회, Comité Européen de Normalisation Électrotechnique (CENELEC)는 전기 기술 표준화를 위한 유럽 위원회이며 지침 83/189/EEC에서 유럽 위원회에 의해 해당 분야의 유럽 표준 기구로 공식 인정받았다. 압전 관련 35개의 표준서를 출판하였고 현재 21개의 표준서를 수정, 1개의 표준서를 작업 중이다. 해당 기관에서 작성한 압전 기초 및 측정과 관련된 표준서는 아래와 같다.

- EN 50324-1:2002 Piezoelectric properties of ceramic materials and components - Part 1: Definitions and classifications
- EN 50324-2:2002 Piezoelectric properties of ceramic materials and components - Part 2: methods of measurement and properties - Low power
- EN 50324-3:2002 Piezoelectric properties of ceramic materials and components - Part 3: methods of measurement - High power
- prn 50ZZZ-1 (BTTF 63-2(CONV)12) Properties of multilayer actuators - Part 1: Terms and definitions
- prn 50ZZZ-2 (BTTF 63-2(CONV)12) Properties of multilayer actuators - Part 2: Methods of measurement
- prn 50PPP (BTTF 63-2(CONV)12) Properties of piezoelectric thick films

2) 국제전기기술위원회, International Electrotechnical Commission (IEC)는 전기, 전자, 통신, 원자력 등의 분야에서 각국의 규격·표준의 조정을 행하는 국제기관이다. 기관 내에서 압전 분야와 관련된 표준서를 출판하는 위원회는 TC-49 (Piezoelectric and Dielectric Devices for Frequency Control and Selection), TC-87 (Ultrasonics), SC-47E (Discrete Semiconductor Devices)로 TC-49는 97개의 표준서를 출판, 4개의 표준서를 진행 중이고, TC-87은 59개의 표준서를 출판, 12개의 표준서를 진행 중이다. 압전 분야에서 참고할 만한 표준서는 아래와 같다.

- IEC 60483 (1976-01) Guide to dynamic measurements of piezoelectric ceramics with high electromechanical coupling
- IEC 60302 (1969-01) Standard definitions and methods of measurement

for piezoelectric vibrators operating over the frequency range up to 30 MHz

- IEC 60642 (1979-01) Piezoelectric ceramic resonators and resonator units for frequency control and selection - Chapter I: Standard values and conditions - Chapter II: Measuring and test conditions
- IEC 60642-2 (1994-02) Piezoelectric ceramic resonator units - Part 2: Guide to the use of piezoelectric ceramic resonator units
- IEC 60642-3 (1992-03) Piezoelectric ceramic resonators - Part 3: Standard outlines
- IEC 61253-1 (1993-12) Piezoelectric ceramic resonators - A specification in the IEC quality assessment system for electronic components (IECQ) - Part 1: Generic specification - Qualification approval
- IEC 61253-2 (1993-12) Piezoelectric ceramic resonators - A Specification in the IEC quality assessment system for electronic components (IECQ) - Part 2: Sectional specification - Qualification approval
- IEC 61253-2-1 (1993-12) Piezoelectric ceramic resonators - A specification in the IEC quality assessment system for electronic components (IECQ) - Part 2: Sectional specification - Qualification approval - Section 1: Blank detail specification - Assessment level E
- IEC 61261-1 (1994-03) Piezoelectric ceramic filters for use in electronic equipment - A specification in the IEC quality assessment system for electronic components (IECQ) - Part 1: Generic specification - Qualification approval
- IEC 61261-2 (1994-03) Piezoelectric ceramic filters for use in electronic equipment - A specification in the IEC quality assessment system for electronic components (IECQ) - Part 2: Sectional specification - Qualification approval
- IEC 61261-2-1 (1994-03) Piezoelectric ceramic filters for use in electronic equipment - A specification in the IEC quality assessment system for electronic components (IECQ) - Part 2: Sectional specification - Qualification approval - Section 1: Blank detail specification - Assessment level E
- IEC 61994-4-2 TS Ed. 1.0 B 1CD Piezoelectric and dielectric devices for frequency control and selection - Glossary - Part 4-2: Piezoelectric materials - Piezoelectric ceramics
- IEC 61088 (1991-09) Characteristics and measurements of ultrasonic piezoceramic transducers
- IEC 60747-14-1 (2000-10) Semiconductor devices - Part 14-1: Semiconductor sensors - General and classification

3) 전기 전자 기술자 협회, Institute of Electrical and Electronics Engineers (IEEE)는 전기전자공학 전문

가들의 국제조직으로 전기 및 전자 관련 분야의 산업 표준을 제정하고 표준화를 진행한다. 전기전자공학에 관한 최대 기술 조직이며 압전 및 강유전 분야에서 가장 많이 인용된 아래의 표준서를 출판했다.

- 176-1987 IEEE standard on piezoelectricity
- 180-1986 IEEE standard definitions of primary ferroelectric electric terms

IEEE의 협의회 중 하나인 IEEE-UFFC (Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control Society of the Institute of Electrical and Electronics Engineers)에서 진행 중인 아래의 표준서 역시 압전 분야와 연관성이 있다.

- IEEE subcommittee on loss in acoustic materials
- A draft of the IEEE standard on ferroelectricity

4) 미국 군사규격, United States Military Standard (MIL-SPEC)은 미군이 방위에 사용하는 물자들의 공급과 관련된 사양 및 기준을 나타내는 것으로 주로 해군의 SONAR 기술에 사용되는 고성능 압전 단결정에 관한 내용이며 관련 표준서는 아래와 같다.

- MIL-STD 1376B (SH) Piezoelectric ceramic material and measurements - Guidelines for sonar transducers
- Committee on standard protocols for single crystal piezoelectrics

■ 이 외에도 Versailles Project on Advanced Materials and Standards, The Electronic Industries Alliance (EIA), Japanese Industrial Standards Committee (JISC), Japan Electronics

and Information Technology Industries Association (JEITA) 등 기관이 있다.

2. 각 특성별 측정 방법

2.1 유전특성

2.1.1 유전 상수 및 유전 손실

- 강유전체의 대표적인 유전특성으로는 유전상수와 유전손실이 있다. 강유전체의 유전상수 측정에 일반적으로 사용하는 10^8 Hz 이하 주파수 영역의 경우 측정시료를 포함한 회로를 구성해 전압을 가해 준 뒤, 부하 임피던스를 측정한 뒤 유전상수와 유전손실을 계산하는 방법이 대표적이며 이 외에도 다양한 회로가 알려져 있다. 임피던스 측정 회로의 경우 직접 제작하여 사용하기에는 기생 임피던스나 반사파 등의 문제를 제어하기 힘들기 때문에 LCR meter나 impedance analyzer 등의 장비에 탑재된 회로를 사용한다. 측정시 전압의 크기는 V_{osc} (oscillation voltage) 또는 V_{rms} (root-mean-square voltage)로 나타내며 앞서 말한 장비와 측정하고자 하는 재료의 상황에 맞는 전압 크기를 사용해야 한다. Sine 파형의 전압을 사용하기 때문에 측정되는 임피던스는 위상각을 가지는 복소수 형태이다.
- 그림 2(a)는 유전상수의 온도 의존성을 측정하기 위해 구축한 시스템의 예이다. 재료의 양 끝단에 신호선을 대는 홀더를 제작하여 전기로 안에 넣어 온도 의존성을 측정한다. 그림 2(b)와 같이 전기로 안에 사용되는 신호선은 고온에서의 기생 임피던스를 최소화할 수 있는 금속인 백금이 사용된다. 장비에서 전기로까지의 신호 전달 역시 백금선을 사용하는 것이 가장 이상적

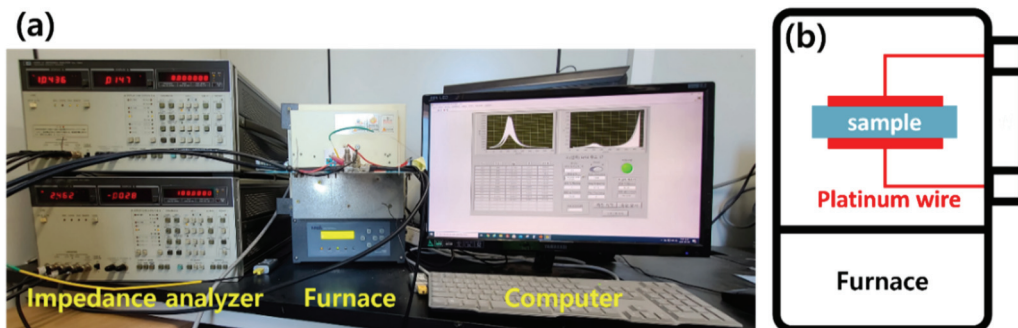


Fig. 2. (a) Measurement system for dielectric permittivity and (b) schematic diagram of sample with wire.

이나 가격적인 측면을 고려하여 동축 케이블이나 전용 fixture 등을 사용할 수 있다. 유전율의 온도 의존성은 상전이 온도를 알 수 있는 지표임과 동시에 relaxor 특성 분석에 중요한 자료이다 [2-5].

- 이렇게 계산된 강유전체의 유전상수 온도 의존성은 상전이 온도 근방에서 나타나는 임계 현상을 직접적으로 보여준다. 이를 통해 강유전체가 입방정계로 상전이 되어 더 이상 압전 특성을 가질 수 없게 되는 큐리 온도, Curie temperature (T_c)를 명확하게 알 수 있게 해 준다. 다시 말해, 압전체로서의 사용 가능 온도범위를 알려주는 중요한 판단요소이다. 또한 각종 전자제품에 필수적으로 들어가는 수동소자인 MLCC의 경우 온도에 따른 유전특성의 편차가 안정적일수록 더 좋은 평가를 받기 때문에 MLCC의 주요한 성능 지표 중 하나로 사용되기도 한다 [6-8].

2.1.2 임피던스 주파수 특성(공진/반공진)

- 임피던스의 주파수 특성은 전기 기계 결합 계수와 기계적 품질계수를 계산할 때 사용하는 공진/반공진 주파수를 도출하는 중요한 데이터이다. 이는 분극 공정이 선행되어야 하는데 이는 추후 압전 특성을 다루는 문단에서 자세하게 설명할 예정이다. 주파수 특성을 알기 위해서는 임피던스 분석기를 통해 주파수 sweep 모드로 임피던스를 측정해야 한다. 그림 3(a)와 같이 컴퓨터와 통신하여 data를 기록할 수 있는 시스템을 만드는 것이 편의상 좋다. 분극을 하지 않은 압전 시편은 그림 3(b)와 같이 공진, 반공진 현상을 보이지 않는

데 잘 분극 된 압전 시편은 그림 3(c)와 같이 주파수에 따라 다양한 모드의 공진, 반공진 모드 및 하모닉픽을 보인다. 임피던스의 주파수 특성은 소재 등가 회로의 유전 및 전기적 특성과 관련이 높다 [9].

- 일반적으로 두께 0.5~1 mm, 지름 8~12 mm 크기의 얇은 디스크 형태의 소자는 200~300 kHz 사이에서 반경방향 진동모드의 공진, 반공진 구간이 나타나며 가장 많이 사용되는 데이터이다. 그림 3(d)는 임피던스 분석기의 시편 지그에 압전 시편을 로딩한 사진인데 그림과 같이 양쪽 팁 사이에 압전 시편의 중심을 맞추어 로딩해야 그림 3(e)와 같이 원하는 진동 모드만의 데이터를 얻을 수 있다. 이때 범위 내에서 임피던스의 최솟값일 때 주파수가 공진 주파수(resonance frequency, f_r)이고 최댓값일 때 주파수가 반공진 주파수(anti-resonance frequency, f_a)가 된다.
- 만약 시편의 중심을 맞추지 않으면 그림 3(f)처럼 또 다른 진동모드가 간섭된 데이터를 얻게 된다. 이는 시편이 물리적으로 훼손되거나 비대칭성이 클 때에도 그림 3(f)와 같은 현상을 보일 수 있다.

2.1.3 밀도

- 세라믹은 소결 중 결정립이 성장하면서 치밀화가 동시에 진행된다. 잘 소결된 압전 세라믹의 밀도는 이론 밀도에 근접하기 때문에 최적 소결 조건을 찾을 수 있는 판단 지표가 될 수 있다. 문헌에서는 상대 밀도의 사용 빈도가 높다.

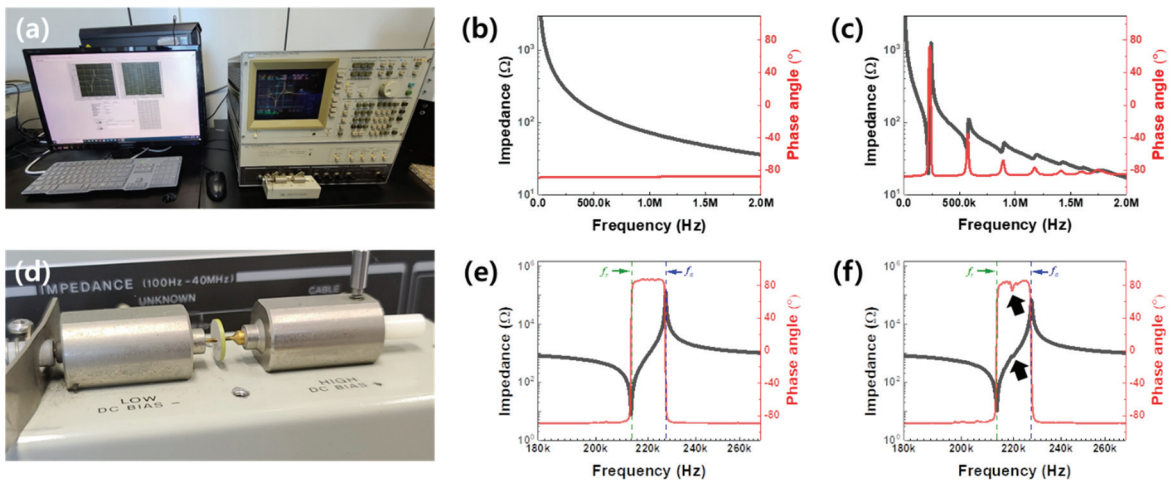


Fig. 3. Impedance measurement pictures (a) and (d) and measurement examples: (b) before poling, (c) after poling, (e) resonant/anti-resonance waveforms expanded from 180~270 kHz, and (f) impedance waveforms with oscillation mode interference.

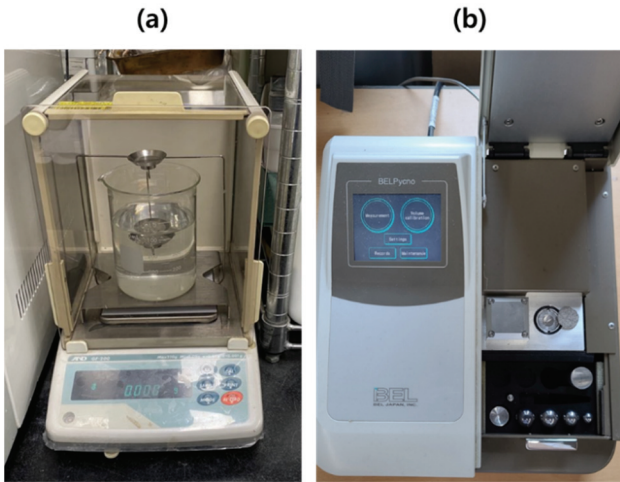


Fig. 4. Density measuring equipment depending on (a) weight buoyancy measurement kit and (b) gas displacement method equipment.

- 세라믹의 밀도 측정 방식은 중량 부력 방식과 가스 변위 방법 두 가지가 있다. 중량 부력 방식은 아르키메데스의 원리를 이용하며 측정 시간이 짧고 샘플 크기에 큰 영향을 받지 않으며 저렴한 비용으로 측정이 가능하지만 측정 환경에 따라 오차가 커질 수 있다. 일반 전자 저울과 트레이 등의 자재를 사용해도 되지만 편의상 그림 4(a)와 같은 비중 측정 세트를 많이 사용한다.
- 중량 부력 방식으로 밀도를 계산하기 위해서는 공기 중 시편의 무게(W_1)와 밀도를 알고 있는 액체에 담근 표면의 열린 기공(open pore)이 완전히 제거된 시편의 무게(W_2) 그리고 액체에서 꺼내고 표면의 물기를 제거한 시편의 무게(W_3)를 측정해야 한다. 이때, 액체는 증류수가 보편적으로 사용되며 측정 시료를 액체에 넣고 끓는점까지 가열하거나 진공펌프로 압력을 낮추어 끓임으로써 열린 기공의 충전한 후 W_2 를 측정한다. W_3 측정 시 마른 수건을 사용하면 open pore의 충전된 액체 또한 흡수될 가능성이 높기 때문에 동일 액체로 적신 수건으로 닦아준다. 각 무게 측정 후 밀도의 계산식은 아래와 같다.

$$\text{겉보기 비중} = W_1 / (W_1 - W_2) \quad (1)$$

$$\text{부피 비중} = W_1 / (W_3 - W_2)$$

- 가스 변위 방법은 중량 부력 방식보다 정밀한 값을 얻을 수 있으나 측정 장비가 고가이며 장비 또는 모델 별 시편의 크기 또는 최소 수량 등의 제한을 받는다. 그림

4(b)는 가스 변위 방법을 사용하는 사용 밀도 측정기 중 하나이며 측정 원리는 부피를 아는 특정 챔버/베스 안에 시편을 넣고 가스를 주입하여 부피를 측정하고 무게를 이용해 밀도를 측정하는 방식이다. 챔버/베스의 크기, 사용 가스 및 장비의 조작법은 제조사마다 다르기 때문에 제조사 및 장비 모델에 따른 매뉴얼을 참고해야 한다.

2.2 압전특성

2.2.1 압전 계수

- 압전 계수는 정압전 효과를 수치화할 수 있는 지표로 단위당 인가된 힘에 대해 발생한 전하량 또는 전압을 평가하는 지표이다. 발생 전하량의 경우 piezoelectric charge coefficient로서 [pC/N]의 단위를 사용하며 d_{ij} 기호를 사용하고 발생 전압의 경우 [V · m/N] 단위를 사용하며 g_{ij} 기호를 사용한다. 각 기호의 아래 첨자는 3차원 좌표계에서 발생된 전하/전압의 방향 (i), 인가된 힘의 방향 (j)을 순서대로 표기한 것이다. 이때 보통 압전 세라믹의 경우 분극처리된 방향을 3축으로 기준 설정한다. 압전 계수, d_{33} 값은 종종 meter per volt, [m/V] 단위와 혼용하여 사용되기도 하지만 인가 전압당 발생하는 변위 값이기 때문에 d_{33}^* 로 표기하는 것이 일반적이다. 이론적으로 [C/N]과 [m/V]의 단위는 유도 변환이 가능하고 1:1 비율이지만 현실에서는 완벽하게 선형성을 따르지 않아 실제 측정 시 d_{33} 와 d_{33}^* 를 동일한 값으로 얻을 수 없는 경우가 많기 때문에 d_{33} 와 d_{33}^* 는 구별해서 사용하는 것이 좋다.
- 발생 전하/전압과 인가한 힘의 방향에 대해서는 그림 5(a)와 같이 좌표계에 표시된 숫자로 표기한다. 예를 들어 d_{33} 값이 300 pC/N이라면 3 방향으로 1 N을 가했을 때 3 방향으로 300 pC의 전하가 발생한다는 의미이다. 압전 효과가 단위 구조의 비대칭성에 기인한 만큼 인가된 힘에 대해 발생하는 전하/전압의 수치는 방향별로 차이를 보인다. 이는 역압전 효과를 확인할 때 소자의 형태에 따라 확실하게 확인할 수 있는데, 그림 5(b)와 같이 두께 방향, 전단 방향, 길이방향 등 다른 진동 모드를 보이는 결과를 낳는다 [10,11]. 압전 및 유전 특성(d , g , k , ϵ 등)은 그 방향성에 대해 상호간 긴밀한 관계를 갖고 있기 때문에 연구하는 소자의 형태의 진동 모드를 알고 있어야 하며 상황에 적합한 관계식을 사용하여 측정/계산해야 한다.

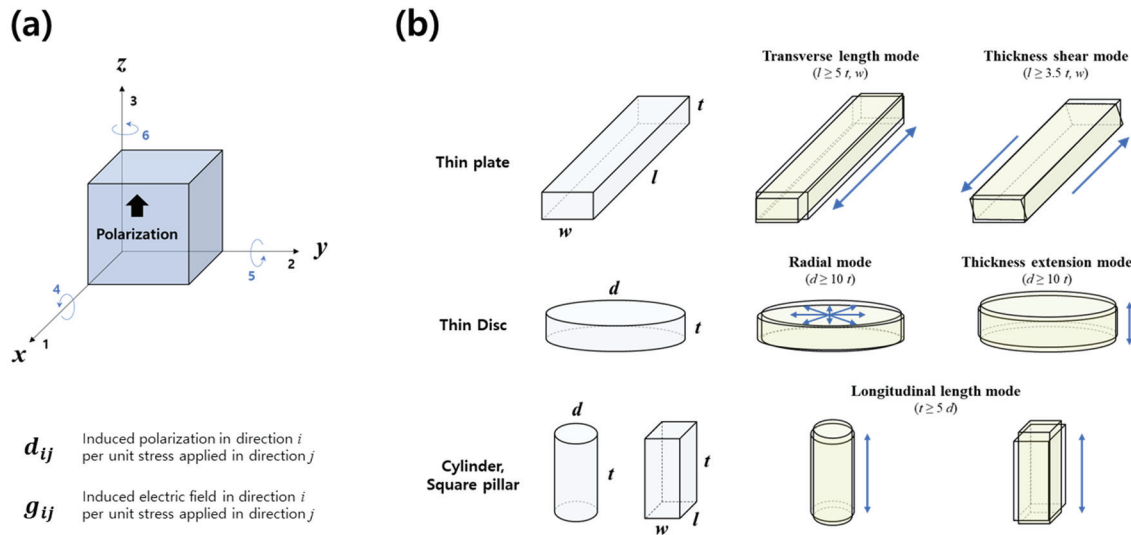


Fig. 5. (a) Schematic image for defining direction of piezoelectric coefficient and (b) vibration mode for each type of piezoelectric element.

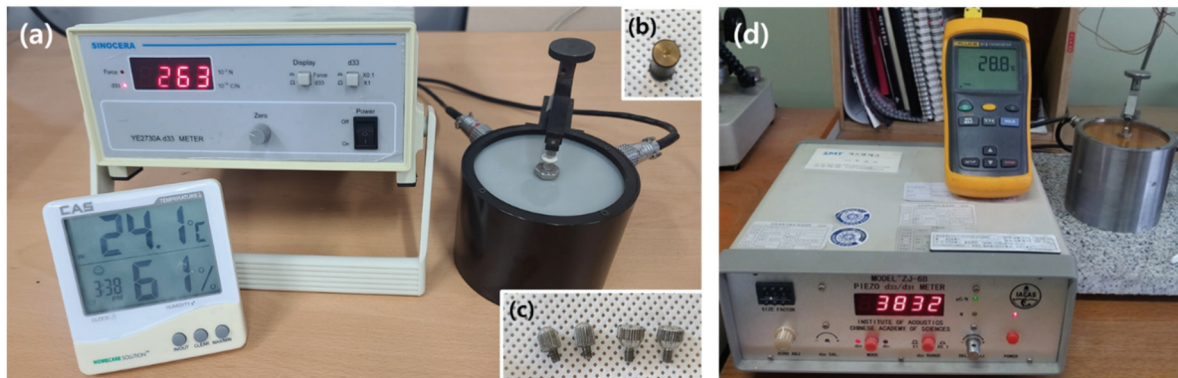


Fig. 6. (a) Photo of usual piezoelectric coefficient (d_{33}) measurement, (b) photo of reference specimen, (c) photo of measuring tip, and (d) photo of high-performance piezoelectric coefficient meter model.

■ 압전 계수(piezoelectric charge coefficient), d_{ij} 는 압전 소재 및 소자의 연구 분야에서 가장 보편적으로 사용되는 특성 지표로서 분극 공정을 거친 압전체에서 측정할 수 있다. 압전 설명과 같이 압전 소자는 진동 모드에 따라 다양한 진동 모드를 보이기 때문에 압전 계수 또한 진동 모드에 상응하는 지표를 가지고 있으나 편이상 측정이 가장 간단한 d_{33} 값이 많이 사용되고 있다. 압전 계수의 측정은 d_{33} meter 장비를 사용하여 측정할 수 있다. 가장 보편적으로 사용되는 d_{33} meter 는 그림 6(a)와 같다.

■ d_{33} meter의 calibration은 필수적인데 장비 구매 시 함께 있는 기준 시편을 사용하는 것이 제일 좋다. 기준 시편은 그림 6(b)와 같이 홈이 있는 금속판으로 압전 세라믹을 위, 아래에서 고정시키고 외관 패키징한 형태로 제작되는데 이는 장비의 힘과 진동을 수직 방향으로 시편에 정확히 전달하여 정밀한 검교정을 하기 위함이다. 자체 제작한 시편을 기준 시편으로 사용해야 한다면 두께 방향 진동만 발생하도록 두께/길이 비가 5 이상인 것이 좋다. 측정 시 팁 사이에 압전 소자를 로딩하고 스크류타입으로 고정시키기 때문에 너무 크거나 작은 힘으로 고정시키지 않아야 한다. 측정 시

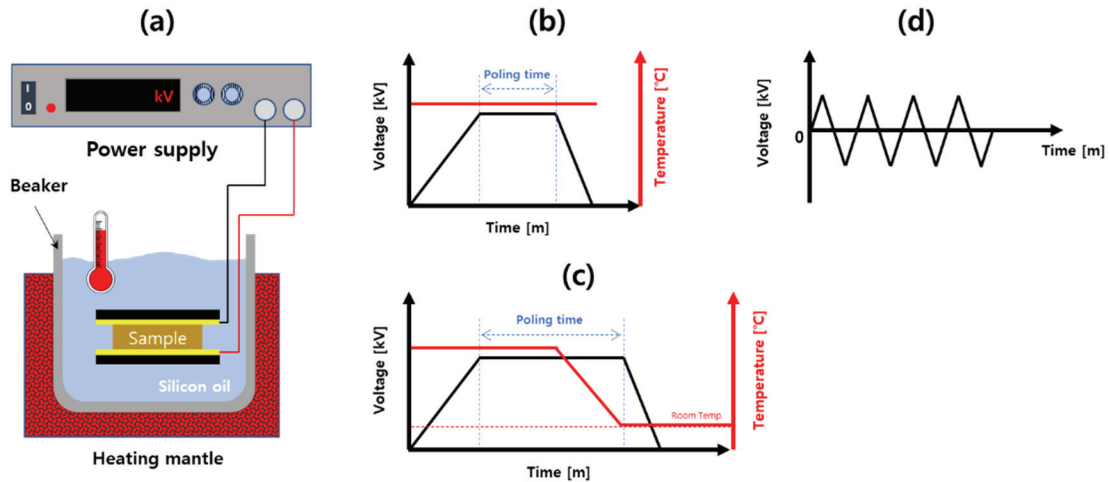


Fig. 7. (a) Schematic diagram of poling process and condition profile, (b) DC poling, (c) field cooling poling, and (d) AC poling.

편 고정 강도에 따라 압전 특성이 크게 변할 수 있기 때문에 항상 같은 힘으로 시편을 고정시킬 수 있는 기준을 마련하는 것이 좋다. 측정 시편이 극히 얇거나 외부 충격에 취약할 경우 그림 6(c)의 우측과 같은 평형팁으로 교체하여 측정하는 것이 좋다. 평형팁은 시편에 전달되는 힘을 분산시키기 때문에 일반적인 측정에는 추천하지 않는다. 그림 6(d)는 중국의 압전 계수, d_{33} 2,000 pC/N 이상의 고성능 시편을 측정할 수 있는 장비 모델이다 [12]. 제조사 및 모델별로 측정 가능한 압전 계수의 범위가 다르고 일부 장비 모델은 d_{33} 뿐만 아니라 d_{31} , d_{15} 및 정전용량, ϵ_{33}^T , $\tan \delta$ 등의 측정이 가능하기 때문에 필요한 지표에 적합한 장비와 모델을 선택해야 한다. 압전 계수는 온도 및 습도의 영향을 받기 때문에 측정 시 온도와 습도를 기록할 필요가 있다.

- 압전 계수(piezoelectric voltage coefficient), g_{ij} 는 측정보다는 d_{ij} 값을 측정하고 아래 식을 이용하여 계산한다. 압전 에너지 하베스팅 시스템의 성능 지수로 사용되는 $d_{ij} \times g_{ij}$ 값의 계산을 위해서 필요하다.

$$d_{ij} = \epsilon_r \epsilon_0 g_{ij} \quad (2)$$

- 압전 계수 측정 전 필수적으로 선행되어야 하는 분극 공정은 전압을 압전 소자에 인가하여 분극을 한 방향으로 정렬시키는 작업으로 직류 전압을 인가하는 것이 일반적이다. 분극 공정을 위한 상용 장비가 없기 때문에 기관별로 실험실에서 자체 제작하여 사용하고 있는데 대부분 그림 7(a)와 같이 전압을 인가할 수 있는 금

속 판 사이에 압전 소자를 밀착시키고 실리콘 오일 안에 진행하며 온도 조절은 주로 히팅 맨틀 또는 플레이트를 사용한다. 그림 7(b)는 통상적인 직류 분극(D.C. poling) 공정의 전압과 온도 그래프로 목표 전압의 유지시간이 문헌 상 분극 시간이다.

- 직류 분극 공정은 소재의 항전계(coercive field, E_c) 보다 높은 전계가 인가되도록 시편의 두께를 고려하여 전압을 인가하는 것이 효과적이다. 보통 분극 공정의 인가 전계가 증가될수록 분극 효과는 증가하지만 일정 수준 이상에서는 효과를 보이지 않고, 전압 증가에 따른 누설 전류 발생과 절연 파괴 가능성이 증가하기 때문에 적절한 인가 전계를 찾는 것이 효율적이다. 이때 전계뿐만 아니라 시편의 온도와 전계 유지 시간에 따라 압전 계수가 영향을 받을 수 있다. 직류 분극의 경우 탈분극 온도(depolarization temperature, T_d) 또는 큐리 온도, T_c 이상의 온도에서 분극 공정을 진행할 경우 분극 공정의 효과는 없기 때문에 온도 설정 시 주의해야 한다. 학계와 산업계에서 관습적으로 사용되는 분극 공정 조건이 있지만 분극 공정 조건과 압전 특성에 관한 이론적 모델과 실험적 증명 사례가 없기 때문에 합성한 조성 및 소자에 맞는 최적의 분극 공정 조건은 반드시 시행오차법을 통해 찾아야 한다. 또한, kV 단위의 매우 높은 전압이 필요한 실험이기 때문에 안전에 각별히 유의해야 한다.
- 문헌상 드물게 등장하는 field cooling 분극은 그림 7(c)와 같은 profile을 따르는데 일반 D.C. poling과 다르게 온도가 상온에 도달할 때까지 전압을 유지시켜 준다. 최근 압전 단결정 분야에서 주목받고 있는 교류

분극(A.C. poling)은 그림 7(d)와 같이 직류 대신 교류를 인가하여 시편을 분극 시킨다. 직류 분극과는 다르게 시간이 오래 걸리지 않고 상온에서 이루어져도 그 특성이 직류 분극보다 높다는 장점이 있다. 다만, 관련된 메커니즘에 대한 의견이 분분하고 특성과 분극조건의 상관관계에 대한 보고들에 일관성이 없다는 문제가 있어 실제 산업에서 적용되지 못하고 있다.

2.2.2 변위(strain)

- 압전 재료의 변형률은 압전 액추에이터 적용 시 사용되는 주요 성능 지수다. 일반적인 벌크 압전 재료의 변형 거리는 두께 1 mm당 수십 nm 또는 수 μm 스케일이기 때문에 실제 변형 거리를 측정하기 위해서는 매우 정밀한 측정 장비가 필요하다.
- 현재 많이 사용되는 방법은 Michelson interferometer를 이용한 방법으로 측정 개념도는 그림 8(a)와 같다. 압전 소자에 전압이 인가되고 변형이 발생하면 거울이 변형 거리만큼 이동된다. 이때 반사 광파장의 위상 변화로 인해 간섭 현상이 일어나고 이를 통해 거울의 이동거리를 계산할 수 있다. 거울의 이동거리는 곧 시편의 발생 변위와 동일하기 때문에 재료의 변형률 또한 계산이 가능하다. 이 방법은 전압 발생기, 증폭기, 레이저 등이 있어도 광파장의 간섭을 이용한 거리 계산 등의 후처리 공정을 위한 장비가 추가로 필요하기 때문에 연구실에서 자체 제작하기는 어렵다.
- 다른 방식은 변위 센서(linear variable displacement transducer, LVDT)를 이용한 것으로 그림 8(b)와 같이 LVDT를 시편에 직접 접촉시키고 시편에 전압을 인가하여 발생하는 변위를 측정하는 것이다. 압전 재

료의 변위 거리를 고려하여 수십 nm에서 수 μm 스케일의 측정이 가능한 고정밀 LVDT를 사용해야 한다.

- 각 원리를 이용한 측정 장비의 사진은 그림 9(a), (b)와 같다. 그림 9(c)의 검은색으로 표시된 회로도 는 시료의 분극(polarization) 값을 측정하기 위한 Sawyer-Tower법 회로인데 polarization 측정과 strain 측정 모두 고전압 인가를 필요로 하기 때문에 그림 9(c)와 같이 2개의 신호 채널을 이용해 polarization과 strain을 동시에 측정하는 것이 일반적이며 레이저 간섭법을 이용한 장비 strain 측정 장비 역시 polarization과 strain을 동시에 측정한다. 하지만 polarization의 측정 방식은 Sawyer-Tower 방식이 아닐 수 있으며 이는 다음 장에서 자세히 다룰 것이다.
- 변형률은 A.C. 전압[예: 그림 10(a)]을 인가하여 측정하는 bi-polar strain과 삼각파형 양전압[예: 그림 10(d)]을 인가하여 측정하는 uni-polar strain 두 가지 종류가 있다. Bi-polar strain은 압전 재료의 강유전 및 분극 거동을 분석할 수 있고 uni-polar는 액추에이터 적용 시 구동 범위에서 실제 변형률을 측정할 수 있다. 압전 재료에 최초 전압이 인가될 경우 그림 10(b)와 같이 1-2-3-4-5 순서로 변형이 일어나고 이를 virgin curve라 한다. 최초 전압이 인가된 후 재료는 분극효과를 갖기 때문에 삼각파형 A.C. 전압을 인가하면 그림 10(c)와 같은 그래프 형태를 보인다. 그래프 모양은 대표적인 강유전 압전소재의 나비형 그래프 모양으로 표현했으나 반강유전 소재(anti-ferroelectric materials) 또는 초기 압전 소재(incipient piezoelectric materials)의 경우 다른 형태의 그래프를 얻을 수도 있다. 연구 시 분석 의도에 따라 필요한

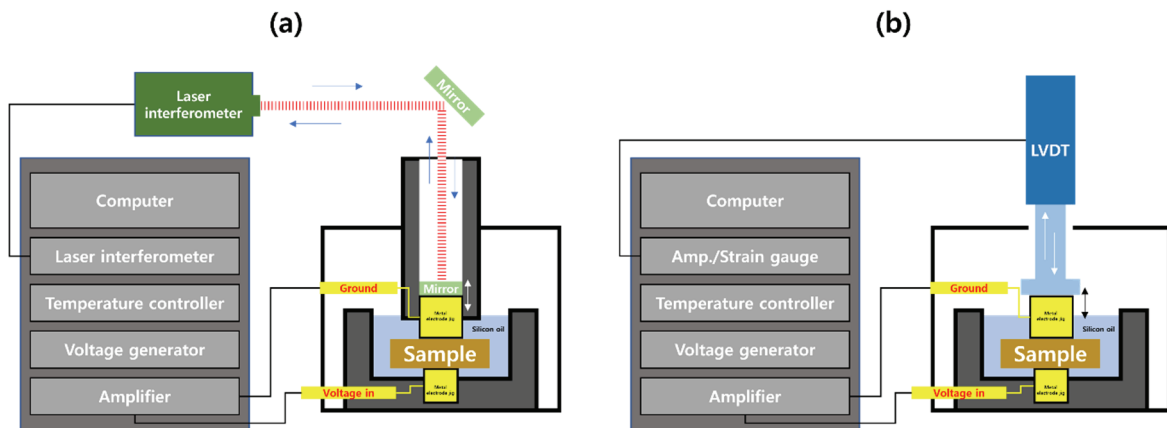


Fig. 8. Schematic diagram of measurement system for Strain through (a) michelson interferometer and (b) linear variable displacement transducer (LVDT).

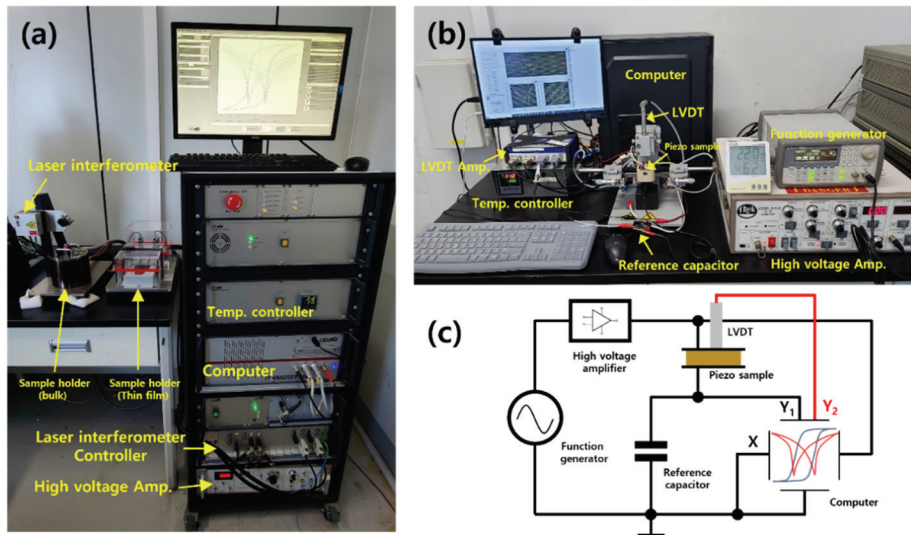


Fig. 9. Equipment photos by strain measurement method. (a) Michelson interferometer application method, (b) linear variable displacement transducer (LVDT) application method, and (c) a circuit diagram of sawyer tower.

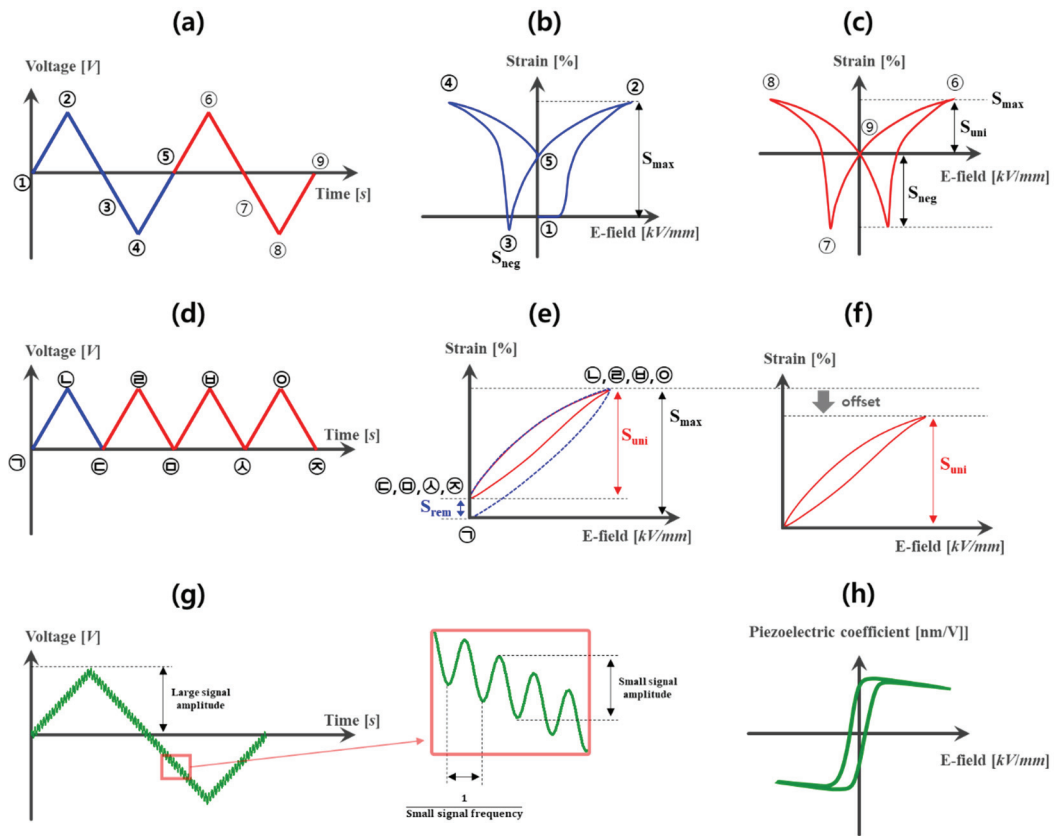


Fig. 10. Applied voltage waveforms (a), (d), and (g) for measuring piezoelectric characteristics and strain curves (b), (c), (e), (f), and (h) by waveform. Bi-polar strain (a)~(c), uni-polar strain (d)~(f), small signal d_{33} (g)~(h).

그래프를 얻기 위해 전압 파형 설정에 유의해야 한다.

- 압전 소재/소자의 액추에이터 응용 시 실제 작동 구간은 그림 10(c)에서 그래프 1사분면의 양전압 구간이기 때문에 S_{max} 값으로 액추에이터 특성을 예상할 수 있으나 정확한 특성은 그림 10(d)와 같은 양전압 삼각파를 통해 측정해야 한다. 양전압 삼각파를 압전 소재에 인가하면 재료의 최대 변형이 일어나고 전압이 0으로 돌아와도 재료의 변위는 초기상태 즉, 0으로 돌아오지 않는다. 재료의 변형률이 0으로 돌아오기 위해서는 반대방향으로 전압을 인가하거나 스트레스가 없는 상태에서 일정 시간이 지나야 하고 이 시간은 소재마다 다르며 이는 relaxation 특성과 관련이 있다. 그림 10 (d)와 같은 연속 파형을 인가 시 시편은 relaxation 특성으로 처음 상태, 변형률 0%로 돌아가지 못하고 잔류 변형지점부터 최대 변형지점까지 그림 10(e)의 빨간색 그래프처럼 변형된다. 실제 압전 액추에이터는 동작대기와 연속동작이 상황에 따라 사용되므로 uni-polar 그래프의 S_{max} 값을 액추에이터의 최대 변형률로 설계할 경우 필요 변위보다 작게 동작하는 액추에이터가 설계될 수 있다. 따라서 상황에 무관하게 실제 사용할 수 있는 uni-polar 변형률은 그림 10(f)와 같이 잔류 변형률을 영점으로 계산한 변형률임을 유념해야 한다.
- Small signal d_{33} 는 그림 7(g)와 같은 파형 전압을 인가하여 측정할 수 있다. 이때 large signal 크기는 재료가 충분히 포화될 수 있는 전압을 사용하고 small signal의 전압 크기는 재료 항전계(coercive field, E_c)의 1/10 수준으로 인가해야 외부 효과(extrinsic effect) 없이 내부 효과(intrinsic effect)만 측정할 수 있다 [1,13].

2.2.3 전기 기계 결합 계수

- 전기 기계 결합 계수는 압전 재료의 전기적 에너지와 기계적 에너지 간의 변환효율을 나타내는 계수로 아래 식과 같이 표현 및 계산될 수 있다.

$$\begin{aligned}
 k^2 &= \text{Mechanical energy converted to electrical energy} / \text{Input mechanical energy} \\
 &= \text{Electrical energy converted to Mechanical energy} / \text{Input electrical energy} \\
 &= \frac{\pi f_r}{2 f_a} \cot\left(\frac{\pi f_r}{2 f_a}\right) \quad (3)
 \end{aligned}$$

- 앞서 설명한 바와 같이 압전 소재는 그 형태에 따라 다양한 진동 모드를 가지고 있기 때문에 전기 기계 결합

계수 또한 진동 모드에 따라 k_{ij} , k_t , k_p 로 나타낼 수 있다. k_{ij} 의 아래 첨자는 앞서 설명한 압전 계수, d_{ij} 의 아래 첨자 의미와 동일하다. 압전 소재를 평가하는 성능지수, figure of merit (FOM)은 k^2 지만 문헌상 k_p 의 사용빈도가 더 높다. 이는 압전 소재를 연구한 대부분의 문헌에서 두께 1 mm 이하, 지름 10 mm 크기의 원판형 디스크로 압전 특성을 측정하는데, 지름과 두께의 비가 10:1 이상의 원판 형태에서는 반경방향 진동 모드(radial mode)가 우세하기 때문이다. 각 진동 모드별 전기 기계 결합 계수는 측정된 공진주파수와 반공진 주파수를 통해 계산할 수 있는데 정확한 값은 아니지만 간단하게 아래 식과 같이 계산할 수 있다 [14,15].

$$k_p = \sqrt{\frac{\Delta f}{0.395f_r + 0.574\Delta f}} \quad (4)$$

$$k_{31} = \sqrt{\left\{1 + \left[\frac{\pi}{2} \cdot \frac{f_s}{f_p} \tan\left(\frac{\pi f_p - f_s}{2 f_p}\right)\right]^{-1}\right\}^{-1}}$$

$$k_{33} = \sqrt{\frac{\pi}{2} \cdot \frac{f_s}{f_p} \tan\left(\frac{\pi f_p - f_s}{2 f_p}\right)}$$

$$k_t = \sqrt{\frac{\pi}{2} \cdot \frac{f_s}{f_p} \tan\left(\frac{\pi f_p - f_s}{2 f_p}\right)}$$

$$k_{15} = \sqrt{\frac{\varepsilon_1^T \cdot E_1^2 - \varepsilon_1^S \cdot E_1^2}{\varepsilon_1^T \cdot E_1^2}}$$

- 이때, f_s 는 직렬 공진주파수, f_p 는 병렬 공진 주파수를 나타내며 $(f_p - f_s)$ 는 $(f_a - f_r)$ 으로 계산해도 무방하다. ε_1^S 는 변형이 없는 상태에서의 1 방향 유전 상수로 압전체의 relaxation보다 빠른 신호 대역인 약 수십 MHz 주파수 대역에서의 측정하며 통상적으로 반공진 주파수의 2배에 해당하는 주파수 대역에서 측정한다 [16,17]. ε_1^T 는 기계적 응력이 없는 상태에서의 유전 상수로 시편에 걸리는 응력을 최소화하기 위해 약 1 kHz 수준의 주파수 대역에서 측정해야 한다 [15]. 각 유전율은 임피던스 분석기 또는 LCR 미터를 이용하여 정전용량 값을 측정하고 계산할 수 있다.
- 정전용량 측정 시 사용 지그/픽스처는 압전체 전극과 밀착력이 좋아야 하며 팁 형태로 중앙에 고정되어 공중에 뜬 상태여야 한다. 중심이 맞지 않거나 다른 구조물에 닿게 되면 진동 모드에 간섭이 일어나 공진 및 반공진 주파수가 영향을 받기 때문에 정확한 값을 측정

할 수 없다. 또한, 사용기기별 매뉴얼에 따른 calibration을 시행 후 측정해야 정확한 값을 얻을 수 있다.

2.2.4 품질계수

- 품질계수는 유전적 품질계수와 기계적 품질계수로 나눌 수 있다. 유전적 품질계수는 주로 정전용량의 품질을 나타낼 때 사용하며 유전손실($\tan\delta$)의 역수로 계산할 수 있다. 압전 특성을 사용하는 압전 소자에서는 기계적 품질계수는 에너지 변환과정에서의 손실 정도를 평가하는 지표로 분극 공정을 거친 시편의 주파수 및 임피던스 특성을 통해 계산할 수 있다. 기계적 품질계수는 재료 상수로서 이온상 진동모드에 무관하지만 실제 측정 시 차이가 있기 때문에 진동모드에 따라 다른 정전용량 값을 사용해 주는 것이 좋다.

$$Q_m = \left\{ 2\pi f_s \cdot Z_m \cdot C_3^T \left(\frac{f_p^2 - f_s^2}{f_p^2} \right) \right\}^{-1} \quad (5)$$

2.3. 강유전 특성

2.3.1 분극(Polarization) 특성

- 자발분극은 분극의 축에 수직인 표면의 단위 면적당 전하의 값으로 정의된다. 시료 표면의 전하 측정은 공기 중의 불순물들이나 누설 전류 등의 문제 때문에 직접적인 측정이 힘들어 강유전 이력곡선의 측정을 통해 간접적으로 측정한다. 통상적으로 사용되는 강유전 이력곡선 측정 방법으로는 sawyer-tower법과 shunt법이 있다.
- Sawyer-Tower법은 그림 9(c)에서 나타낸 회로에 시료를 넣고 교류전압을 걸어 주면서 두 축전기에 걸리는 전압을 측정한다 [18]. 회로는 시료 capacitor [그림 9(c)의 piezo sample, C_x]와 전기용량을 미리 알고 있는 reference capacitor, C_{ref} 2개의 capacitor로 구성되어 있다. C_{ref} 에서 발생하는 전압 강하가 C_x 에서의 전압 강하보다 훨씬 적도록 C_{ref} 값을 잘 채택해야 하며 두 capacitor는 직렬로 되어 있다. 이에 따라, C_{ref} 에 충전되는 전하량은 C_x 에 충전되는 전하량과 거의 같아진다. 이를 다음 식을 통해 나타내면 다음과 같다.

$$Q = C_{ref}V_{ref} = C_xV_x \quad (6)$$

- 시료의 분극에 대한 정보를 주는 C_{ref} 의 전압(V_{ref})은 오실로스코프의 수직 플레이트에 적용하여 측정하고 외부에서 걸어 주는 전압은 회로 전체에 걸쳐 생기는 전기장을 측정하기 위해 오실로스코프의 수평 플레이트에 적용하여 측정한다. 이후 계산된 전하량(Q)과 측정 시료의 dimension을 통해 이력곡선을 측정할 수 있다.
- Sawyer-Tower법을 이용한 측정은 비용적인 측면에서 상당한 이점을 가지고 있고 원리가 간단하여 금방 구축할 수 있다. 그러나 누설전류가 심하게 나타나는 강유전 재료의 경우 고주파대의 교류전압을 걸어 측정을 시도하게 되는데, reference capacitor에 전하가 충전되는 속도가 느려 측정이 어려울 수 있으며 이때 발생하는 열 또한 측정에 악영향을 미칠 수 있다. 교류전압을 연속적으로 가해 측정할 경우, 필히 reference capacitor에 충전된 전하를 방전시켜야 하며 이를 충분히 수행하지 않을 경우 reference capacitor가 폭발하는 문제가 생길 수 있다.
- Shunt법은 sawyer-Tower 회로에서 기준 capacitor를 기준 저항(shunt 저항)으로 대체하여 전류를 측정하는 방식이다. 강유전체에 외부 전계가 가해질 때, 항전계에서 발생하는 분극 반전전류가 shunt 저항에서의 전압 강하로 나타나게 되는데, 이때 측정되는 전류와 시간을 다음 식을 통해 적분하여 강유전 이력곡선을 측정할 수 있다.

$$Q = \int I dt \quad (7)$$

- Sawyer-Tower법의 기준 capacitor의 크기를 정할 때보다 shunt 저항을 정할 때가 더욱 정밀한 측정을 위한 기준점을 제시할 수 있다는 장점이 있다. 그러나 shunt 저항의 크기를 선택할 때에 측정 샘플의 capacitor에 더해 측정 주파수까지 고려해야 한다. 측정 주파수가 증가할수록 shunt 저항에서의 전압 강하가 증가하게 되므로 측정 시스템을 구성할 때에 더 많은 종류의 저항을 준비하여 각 상황에 맞는 저항을 달아 측정을 진행해야 한다.

ORCID

Wook Jo

<https://orcid.org/0000-0002-7726-3154>

감사의 글

This research was supported by the Leading Foreign Research Institute Recruitment Program (No.2017K1A4A3015437) through the National Research Foundation of Korea (NRF) funded by Ministry of Science and ICT.

REFERENCES

- [1] W. S. Kang, T. G. Lee, J. H. Kang, J. H. Lee, G. Choi, S. W. Kim, S. Nahm, and W. Jo, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **41**, 2482 (2021). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2020.12.028>]
- [2] A. Kumar, J. Y. Yoon, A. Thakre, M. Peddigari, D. Y. Jeong, Y. M. Kong, and J. Ryu, *J. Korean Ceram. Soc.*, **56**, 412 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.4191/kcers.2019.56.4.10>]
- [3] C. H. Hong and W. Jo, *J. Am. Ceram. Soc.*, **101**, 1949 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1111/jace.15344>]
- [4] C. H. Hong, Z. Fan, X. Tan, W. S. Kang, C. W. Ahn, Y. Shin, and W. Jo, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **38**, 5375 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2018.08.006>]
- [5] S. S. Lee, C. H. Lee, T. A. Duong, H.T.K. Nguyen, H. S. Han, and J. S. Lee, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **34**, 1 (2021). [DOI: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2021.34.1.1>]
- [6] T. M. Noh, J. S. Kim, J. S. Ryu, and H. S. Lee, *J. Korean Ceram. Soc.*, **48**, 323 (2011). [DOI: <https://doi.org/10.4191/kcers.2011.48.4.323>]
- [7] J. S. Lee, E. C. Shin, D. K. Shin, Y. Kim, P. A. Ahn, H. H. Seo, J. M. Jo, J. H. Kim, G. R. Kim, Y. H. Kim, J. Y. Park, C. H. Kim, J. O. Hong, and K. H. Hur, *J. Korean Ceram. Soc.*, **49**, 475 (2012). [DOI: <https://doi.org/10.4191/kcers.2012.49.5.475>]
- [8] J. R. Yoon, H. Moon, and H. Y. Lee, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **23**, 216 (2010). [DOI: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2010.23.3.216>]
- [9] C. H. Hong, H. P. Kim, B. Y. Choi, H. S. Han, J. S. Son, C. W. Ahn, and W. Jo, *J. Materiomics*, **2**, 1 (2016). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jmat.2015.12.002>]
- [10] J. Fialka and P. Beneš, *Proc. 2012 IEEE International Instrumentation and Measurement Technology Conference Proceedings (IEEE, Graz, Austria, 2012)*. [DOI: <https://doi.org/10.1109/i2mtc.2012.6229293>]
- [11] S. Zhang, F. Li, F. Yu, X. Jiang, H. Y. Lee, J. Luo, and T. R. Shrouf, *J. Korean Ceram. Soc.*, **55**, 419 (2018). [DOI: <https://doi.org/10.4191/kcers.2018.55.5.12>]
- [12] H. Y. Lee, *Proc. ISAF-ICE-EMF-IWPM-PFM Meeting 2019E PFL* (Lausanne, Switzerland, 2019).
- [13] H. P. Kim, G. J. Lee, H. Y. Jeong, J. H. Jang, G. Y. Kim, S. Y. Choi, H. Y. Lee, S. G. Lee, and W. Jo, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **39**, 3327 (2019). [DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2019.04.022>]
- [14] F. Li, S. Zhang, Z. Xu, X. Wei, J. Luo, and T. R. Shrouf, *J. Appl. Phys.*, **108**, 034106 (2010). [DOI: <https://doi.org/10.1063/1.3466978>]
- [15] B. Jaffe, W. R. Cook, JR, and H. Jaffe, *Piezoelectric Ceramics* (Academic Press, New York, 1971), p. 290.
- [16] H. J. Lee, S. Zhang, and T. R. Shrouf, *J. Appl. Phys.*, **107**, 124107 (2010). [DOI: <https://doi.org/10.1063/1.3437068>]
- [17] H. J. Lee, S. Zhang, J. Luo, F. Li, and T. R. Shrouf, *Adv. Funct. Mater.*, **20**, 3154 (2010). [DOI: <https://doi.org/10.1002/adfm.201000390>]
- [18] C. B. Sawyer and C. H. Tower, *Phys. Rev.*, **35**, 269 (1930). [DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRev.35.269>]