

C24

Sol-Gel Process에 의해 합성된 강유전 $\text{Pb}(\text{Mg}, \text{Zn})_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ 박막의 상 생성 및 미세구조 특성

김 광수, 조 문규, 장 현명

포항공과대학교 재료공학과 정밀 세라믹스 공정과학 연구실

$\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ (이하 PMN-PZN으로 약기)계는 매우 높은 dielectric permittivity (ϵ_r)를 가질 뿐만 아니라 조성에 따라 $\epsilon_{r(\text{max})}$ 를 보이는 T_c 를 실온 근처로 쉽게 조절할 수 있고, ϵ_r 의 온도 의존성 (characteristics of Diffuse Phase Transition)도 조절이 가능하기 때문에 relaxor 형 MLCC, 전파 액투에이터 및 DB 모드 IR 센서로서 매우 유망한 재료이다. 본 연구에서는 DB 모드 IR 센서로의 응용을 위해 실온 바로 아래에서 T_c 를 가지면서 $(\partial\epsilon_r/\partial T)$ 가 매우 크고 낮은 $\tan\delta$ 를 가지는 PMN-PZN pseudobinary system의 조성을 선정하고, sol-gel process에 의해 박막 및 gel을 합성한 후 상 생성특성, 미세구조 및 유전특성 등을 분석하였다.

15 mol% PZN이 첨가된 PMN-PZN sol을 가수분해/중합 반응에 의해 합성하기 위해 먼저 $\text{Pb}(\text{CH}_3\text{CO}_2)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 를 2-methoxyethanol에 용해시키고 reflux, distillation을 반복하여 치환반응에 의해 Pb-alkoxide precursor 용액을 합성하였다. 동일한 방법에 의해 Zn-alkoxide를 합성한 후 Mg-alkoxide, Nb-alkoxide 용액과 결합하여 reflux함으로써 $\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x[\text{Nb}(\text{OR})_6]_2$ 형의 complex triple alkoxide를 합성하였다. 중간체인 triple alkoxide를 다시 Pb-precursor용액과 결합하여 반응함으로써 Pb-Mg-Zn-Nb 형의 complex quadruple alkoxide를 합성하였는데, 이렇게 함으로써 각 금속 성분의 가수분해/중합반응의 속도차이에 따르는 미세화학적 불균일성의 문제를 극복하였다. 다음으로 complex quadruple alkoxide의 가수분해 조건을 적절히 조절하여 부분 가수분해 조건을 유도함으로써 박막을 합성하였다.

합성된 sol의 spin-casting에 의해 Pt로 코팅된 (100) MgO면 또는 sapphire 면 상에서 치밀, 균일한 미세구조의 PMN-PZN 박막을 제조하였다. 박막을 열처리함

에 따라 pyrochlore 상이 먼저 생성되었으며 900 °C에서 10분간 소결에 의해 perovskite 상의 100% 안정화가 가능하였다. 따라서 PMN-PZN 계에서는 columbite precursor route에 의하지 않고서도 perovskite 상의 안정화가 가능함을 알 수 있었으며, 이는 합성된 complex quadruple alkoxide sol의 미세화학이 매우 균일함을 뜻한다. 또한 생성 박막에서 (100)-type planes의 선택적 배향성이 매우 뚜렷하였으며, 이는 poling 단계없이도 매우 우수한 특성의 강유전 박막 RAM 소자나 IR 센서를 제조할 수 있다는 가능성을 제시하고 있다.

또한 sol-gel 방법에 의해 합성한 박막에서 perovskite 입자들의 orientation을 좌우하는 한 중요한 인자의 하나가 sol의 rheological characteristics임을 밝힐 수 있었으며, 이는 sol의 aging 시간을 적절히 조절함으로써 제어할 수 있었다. 본 발표에서는 Drying Control Chemical Additive(DCCA)가 박막의 상 생성 및 입자들의 preferential orientation에 미치는 영향도 아울러 검토하고자 한다.