

LaYbO₃ 첨가가 PbYb_{1/2}Nb_{1/2}O₃-PbTiO₃계의 상전이에 미치는 영향

Effect of LaYbO₃ substitution on the relaxor 0.85

PbYb_{1/2}Nb_{1/2}O₃ - 0.15PbTiO₃ system

임 기빈, 주 응길

한국과학기술원 재료공학과

1. 서론

PbYb_{1/2}Nb_{1/2}O₃[PYN]는 B-site에 위치한 Yb와 Nb가 규칙배열을 한 orthorhombic구조를 갖는 전형적인 반강유전체로 알려져 있으며 최근 들어서는 학문 및 응용적 관점에서 다른 Pb계 유전체들인 PbZrO₃[PZ], PbTiO₃[PT] 등과의 고용체에 대한 연구가 보고 되어지고 있다. (1-x)PYN-(x)PT 고용계의 경우 PT함량이 증가함에 따라 orthorhombic 반강유전상($x<0.1$), relaxor 거동을 보이는 pseudocubic 강유전상 ($0.1< x < 0.3$), 전형적인 강유전상이 차례로 나타나며 각상간의 경계부근에서 우수한 전기적 특성을 보이는 것으로 보고되었다. Pb 계열 강유전체에서 La 치환효과는 그 동안 폭넓게 연구되어 왔으며 (Pb,_{La})(Zr,Ti)O₃ 계의 경우 La 치환에 의해 강유전체의 전기적 특성이 크게 변화되는 것으로 보고되었다. 본 실험에서는 pseudocubic구조를 갖고 relaxor 거동을 보이는 PYN-PT 계에 La 및 Yb 를 첨가하여 얻어지는 결정구조와 상전이 양상의 변화로부터 La와 Yb의 치환효과를 연구하였다.

2. 실험방법

99% 이상의 고순도 PbO, La₂O₃, Yb₂O₃, Nb₂O₅, TiO₂ 를 사용하여 La 첨가시 발생하는 공공의 생성을 억제하기 위해 다음과 같은 화학조성으로 평량한 후 전통적인 고상반응법으로 상을 합성하였다. (1-y)[0.85PYN-0.15PT]-(y) LaYbO₃.

800°C에서 3시간 하소된 분말을 재분쇄하여 성형한 후 1000°C에서 2시간 소결하였다. 소결 시편에 대하여 X-선 회절분석과 TEM 회절분석으로 결정구조의 변화를 관찰하였고 HP4194A를 사용하여 유전상수를 측정하였다.

3. 실험결과

결정구조가 Pseudocubic이고 relaxor거동을 보이는 0.85PYN-0.15PT계에서 LaYbO₃첨가로 인해 결정구조 및 유전특성의 변화를 조사하였다. 첨가량이 6%가 되면 상온의 결정구조는 orthorhombic이 되었으며 Pb 이온의 엇갈림 배열에 의한 회절무늬가 나타남과 함께 전기이력곡선이 소멸하였다. 이러한 결과들은 6%이상 LaYbO₃가 첨가되면 상온상이 relaxor에서 반강유전상으로 변화됨을 보여준다. 유전을 측정으로부터 구한 겉보기 상전이 온도는 강유전상 영역 ($0 < y < 0.06$)에서는 첨가량[y]이 증가함에 따라 감소하였고 반강유전상 영역($y > 0.06$)에서는 상전이 온도가 증가하여 LaYbO₃ 치환이 반강유전상을 안정화시키는 것으로 고려된다. X-선 회절 분석을 통해 B-site 규칙화에 기인된 (111) 회절선의 상대강도가 첨가량[y]의 증가에 따라 증가하는 현상이 관찰되었는데 이로부터 LaYbO₃ 첨가로 Yb이온과 Nb, Ti 이온 간의 규칙화 정도가 향상되었음을 확인할 수 있었다.