

MnO₂치환된 PMN계 세라믹스의 유전특성

지승한*, 유도현**, 이은학***, 김영일#, 박광현##, 이덕출*

*인하대학교, **안산공업전문대학, ***한라공업대학, #신구전문대학, ##제일엔지니어링

A study on Dielectric Properties usig PMN Ceramics with MnO₂ substitution

S. H. Ji^{*}, D. H. You^{**}, Y. H. Lee^{***}, Y. I. Kim[#], K. H. Park^{##}, D. C. Lee^{*}
^{*}Inha Univ., ^{**}Ansan Tech. Col., ^{***}Hanla Tech. Univ., [#]Shinkoo Col.,
^{##}Jeil Eng.

Abstract

In this study, the dielectric properties of Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-PbTiO₃ Ceramics have been investigated as a addition of the amount of MnO₂(0≤x≤0.9wt%). The Temperature-dependant dielectric characteristics of 0.9PMN-0.1PT relaxor ferroelectric system were improved by enhencing the extent of the diffuse phase transition(DPT). The maximum dielectric permittivity decreased by substitution MnO₂ and the dielectric loss decreased with increasing MnO₂ substitution amount. It is expected decreasing in inner heat energy for temperature with increasing MnO₂ substitution.

러한 재료를 이용한 초음파 모터, 세라믹 액츄에이터 등의 고전력 디바이스로 이용되기 때문에 이에 따 많은 내부 열 발생 뿐만 아니라 전왜 성질의 커다란 변화를 볼 수 있다. 고전력 이용에 있어서의 변위 레벨의 크기는 이러한 원인에 의해 제한될 수 있다.[3]

이에 본 연구에서는 전왜재료인 PMN-PT에 손실을 줄이고자 MnO₂를 첨가하여 유전특성에 관해 조사하였다.

1. 서 론

복합 페로브스카이트 구조를 갖는 Pb계 완화형 강유전성 재료인 Lead magnesium niobate Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃(PMN)은 1950년대 후반에 Smolenskii 등에 의해 처음 보고된 이후로 높은 유전율 및 유전율의 완만한 온도 의존성으로 인하여 광범위하게 연구되고 있다.[1]

특히 PMN계 세라믹스는 우수한 전왜특성을 가지는 완화형 강유전 재료로 높은 변형값을 갖기 때문에 미소 변위소자로서 부하의 운동을 전기적으로 제어하는 디바이스로 고속, 고정밀도의 제어가 가능하며 낮은 소비전력 및 저 잡음등의 특성을 갖는 액츄에이터로서 각광을 받고있다.[2] 그러나 최근에는 이

2. 실 험

본 실험에서는 합성시 저유전율을 갖는 이차상(pyrochlore phase)을 억제하기 위해 columbite precursor 합성법을 사용하였다. 0.9PMN-0.1PT 조성에 MnO₂를 0, 0.1, 0.3, 0.5, 0.7, 0.9wt%로 첨가하였다. Columbite precursor인 MgNb₂O₆를 먼저 합성하기 위해 MgO와 Nb₂O₅를 Y₂O₃로 안정화시킨 ZrO₂분을 이용하여 48시간 혼합하였다. 건조된 분말을 알루미나 도가니를 이용하여 1000℃에서 1차 하소를 하고 나머지 분말을 첨가하여 혼합, 건조시킨 다음 800℃에서 2차하소를 하였다. 하소까지 마친 분말을 알루미나 유발에 넣어 분쇄한 후 원동형 금형에 넣고 1[ton/cm²]의 압력으로 성형하였다. 소결은 1200℃에서 PbO의 휘발을 억제하기 위해 분위기 분말속에서 행하였으며 3중 도가니 구조를 이용하였다. 소결된 시편의 양면을 잘 연마하고 고온용 Ag paste를 도포한 다음 590℃에서 20분간 열처

리하여 시편을 제작하였다.

측정은 하소 및 소결시편의 조성변화에 따른 결정구조 및 이차상 관찰을 위해 X-선 회절기(PW 1730, Philips)을 이용하여 분석하였으며, 시편의 미세구조는 SEM(Hitachi, X-650)을 이용하여 분석하였다. 온도 및 주파수에 따른 유전율과 유전손 측정은 Impedance Analyzer(Model 4192A)와 항온조(ANDO)를 이용하였으며, 측정온도의 범위는 -5°C 에서 110°C 로 하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1은 MnO_2 첨가량에 따른 시편의 밀도변화를 나타내고 있다. 0.3wt% 첨가된 경우 시편의 밀도가 가장 높은 것으로 분석된다. 그림 2은 소결한 시편의 X-선 회절분석 결과를 나타내고 있다. 전체적으로 페로브스카이트 구조를 나타내고 있음을 볼 수 있다. 하소한 분말에서의 기공 및 미 반응 물질 등의 존재로 이차상이 나타나지만 소결한 시편에 있어서는 페로브스카이트 단일상이 생성되었다.

그림 3은 실온에서의 각 시편의 유전상수를 나타내고 있다. MnO_2 첨가량이 증가함에 따라 유전상수의 감소를 나타내고 있으며, 유전손도 감소하는 결과를 보였다. 특히 MnO_2 가 0.3wt%첨가된 시편에 있어 유전손이 가장 작게 나타남을 보였다. 그림 4은 MnO_2 첨가량에 따른 유전상수의 온도 의존성을 나타내고 있다. 측정 결과 MnO_2 가 첨가될 경우 T_c 에서의 유전상수, 그리고 유전손실은 첨가량이 증가함에 따라 감소하나 T_c 부근에서 유전율의 broadness는 증가한다. 일반적으로 Pb-based 페로브스카이트 세라믹에 첨가제가 도입될 경우 T_c 에서의 유전율이 저하될 뿐 아니라 국부적인 조성의 변화로 인한 결정격자 에너지의 변화로 T_c 부근에서 유전율의 broadness가 증가한다.[4] 이에 MnO_2 의 온도에 따른 유전율의 변화는 첨가제가 도입될 때 나타나는 전형적인 양상을 보이고 있다.그림 5은 0.3wt%의 MnO_2 에서의 온도에 따른 주파수의 유전상수를 나타내고 있다. 주파수의 증가에 따라 유전상수의 감소를 나타내었으며, 유전손의 증가를 보였다. 주파수의 증가에 따라 유전상수의 감소는 시편내부의 쌍극자 회전시 마찰력의 증가에 의해 감소한 것으로 사료된다. 큐리온도는 별 차이를 보이지 않았다.

4. 결 론

PMN-PT세라믹스에 MnO_2 를 0, 0.1, 0.3, 0.5, 0.7, 0.9wt%첨가한 시편의 유전특성을 조사한 결과 얻은 결론은 다음과 같다.

1. 소결한 시편의 밀도변화에서는 0.3wt%첨가한 시편에서 가장 높게 나타났으며, X-선 회절분석 결과 전체적으로 하소한 분말에서의 이차상이 감소한 페로브스카이트 구조를 보였다.
2. 각 시편에 따른 유전상수는 첨가량의 증가에 따라 감소함을 나타내었으며, 유전손의 감소를 볼 수 있었다. 특히, 0.3wt% 첨가된 시편에서 유전손이 가장 작게 나타남을 보였다.
3. 온도에 따른 각 시편의 유전상수의 변화는 첨가량이 증가

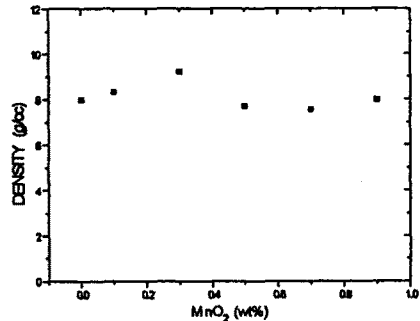


그림 1 MnO_2 첨가량에 따른 각 시편의 밀도 변화
Fig. 1 Variation of the density dependent on addition of MnO_2

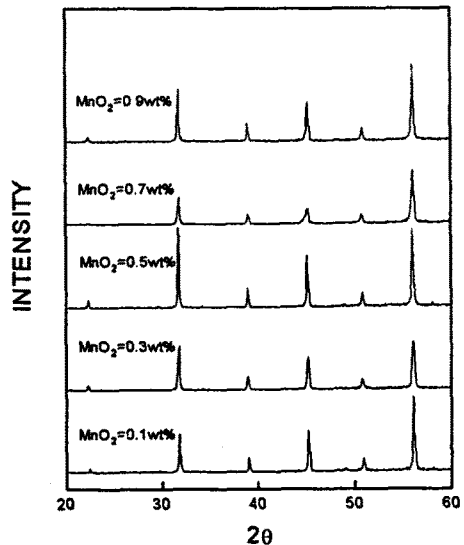


그림 2 소결한 시편의 X-선 회절분석(1200°C)
Fig. 2 XRD patterns of sintering specimens

함에 따라 유전상수가 감소함을 보였으며, 최대 유전율의 broadness의 증가를 볼 수 있었다.

4 주파수에 증가에 따른 유전상수를 온도를 변화시키면서 측정한 결과 주파수가 증가함에 따라 유전상수의 감소를 볼 수 있었으며 큐리온도의 변화는 크게 관측되지 않았다. 유전상수의 감소는 시편내부의 마찰력의 증가로 볼 수 있다.

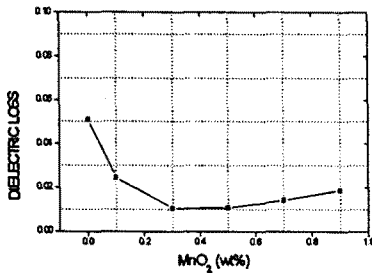
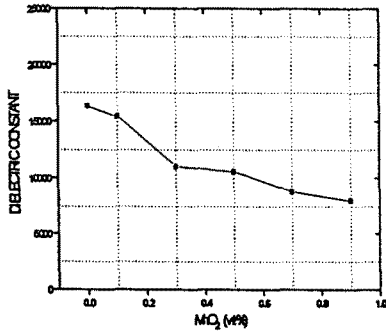


그림 3 MnO₂ 참가량에 따른 유전상수 및 유전손
Fig. 3 Dielectric permittivity & loss dependent on addition of MnO₂

참고문헌

- [1] T. R. Shrout and A. Halloiyal, "Preparation of Lead-Based Ferroelectric Relaxors for Capacitors," Am. Ceram. Soc. Bull., 66(4) 704-11 (1987)
- [2] 内野研二 : 壓電/電歪 アクチュエータ -基礎から應用まで-, 森北出版
- [3] Seiji Hirose and Kenji Uchino, "Electro-Mechanical Characteristics of Lead-Zirconate-Titanate Ceramics Under Vibration-Level Change," CH3416-50-7803-1847 -1/1995 IEEE
- [4] V. V. Kirillov and V. A. Isupov, "Relaxation Polarization of PMN-Ferroelectric with a

diffused Phase Transition," Ferroelectrics, 5, 3-9 (1973)

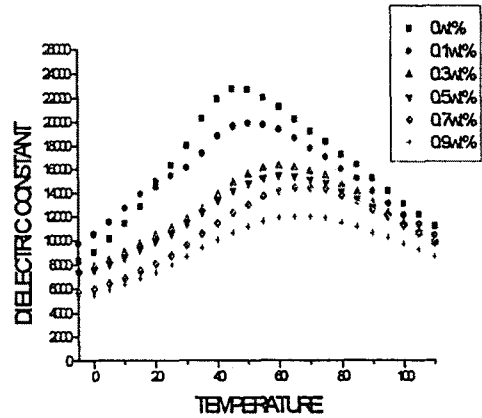


그림 4 온도에 따른 유전상수
Fig. 4 Dielectric permittivity with the temp.

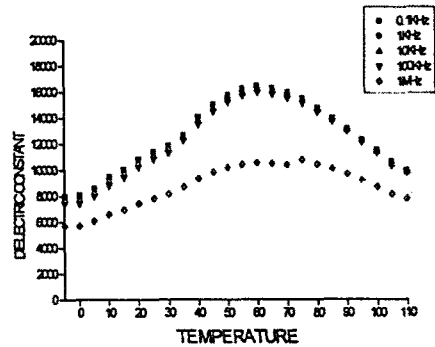


그림 5 주파수에 따른 유전상수(MnO₂=0.3wt%)
Fig. 5 Dielectric permittivity with the freq.