

## Glass Frit 첨가량에 따른 PMN-PSN-PZT계 세라믹의 유전 및 압전특성

### The Dielectric and Piezoelectric Characteristics of PMN- PSN-PZT Ceramic as a Function of Glass Frit

김 성진\*, 류 주현\*, 이 수호\*\*, 홍재일#, 윤현상##

S. J. Kim, J. H. Yoo, S. H. Lee, J. I. Hong, H. S. Yoon

\*: 세명대학교 전기공학과, \*\*: 세경대학 전기과,  
#: 동서대학교 전기과, ##: 경문대학 전기과

#### Abstract

The purpose of this study is to develop the material for multilayer piezoelectric ceramic transformer because multilayer piezoelectric transformer must need low sintering temperature. So that PMN-PSN-PZT family ceramics were added with glass frit( $\text{SiO}_2 \cdot \text{PbO}$ ). The dielectric and piezoelectric properties were increased with increasing it until the amounts of additive 0.8wt%. Sintering temperature were low about 100[°C]. Accordingly, This material could be used to multilayer piezoelectric transformer.

## 1. 서론

점차 소형화 되어가는 전자제품에 전원공급 장치 및 DC-DC 컨버터등도 소형화가 요구되어진다. 일반적으로 사용되고 있는 권선형 트랜스포머의 경우 소형화를 위하여 스위칭 주파수가 높아야 한다. 그러나 주파수의 증가에 따라 동손과 철손의 증가에 의한 큰 손실이 발생하여 소형의 컨버터의 제작에는 부적절하다. 그러나 최근에 고주파수에서 높은 전력전송 밀도를 가지는 압전 트랜스포머는 소형 및 박형화가 가능하여 많은 연구가 진행되고 있다.<sup>1-3)</sup> 고전압 출력을 위해서는 Rosen형의 길이방향 진동을 이용하는 압전 트랜스포머를 사용하지만 이는 내부 임피던스가 커서 손실이 크며, 또한 고전력 밀도를 가지기 어려워 DC-DC 컨버터로서의 사용이 어렵다. 그러나 두께진동을 이용하는 압전 트랜스포머는 1MHz이상의 공진 주파수를 가져 소형의 컨버터 제작에 유리하다.<sup>3-7)</sup> 그러나 MHz대에서 구동하기 위하여  $\mu\text{m}$  정도의 두께로 가공하여야 하기에 제작이 어려운 문제점을 가지고 있다. 또한 출력의 증대를 위해서는 적층으로 제작하여야 한다. 적층으로 제조시 소결온도가 높을 경우 전극의 내부 침투등으로 인한 절연성의 저하와 분극의 어려움을 가지게 된다. 따라서 본 연구에서는 저온에서 소결이 가능한 압전 세라믹을 제조하고자 하였다.

일반적으로 소결온도를 낮추기 위하여 1차 분말 입자의 순도, 균질성 및 조성비를 비롯하여 분말의 입경, 입도 분포 및 형상등의 제어가 필요하다. 따라서 입자의 제어가 용이한 액상법을 사용한 여러 가지 제조방법이 제시되고 있으나, 이러한 액상법을 이용할 경우 분말의 미세화, 고순도화등에 장점이 있으나 제조공정이 복잡하다는 문제점이 있어 대량 생산에는 적당하지 않다. 따라서 본 실험에서는 frit를 첨가하여 일반적인 고상반응법으로 제조하여 소결온도를 낮추고자 하였으며, 또한 이렇게 제조한 세라믹을 이용하여 적층형 압전 트랜스포머를 제작하고자 하였다.

## 2. 실험방법

본 실험에서는  $(\text{Pb}_{0.96}\text{Sr}_{0.04})(\text{Sb}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})_{0.05}(\text{Mn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.07}\text{Zr}_{0.4}\text{Ti}_{0.48}\text{O}_3$ 의 기본조성을 가지는 압전 세라믹스에 frit로  $\text{SiO}_2 \cdot \text{PbO}$ 를 0~4wt%로 변화시켜 첨가하여 산화물 혼합법으로 제조하였다. 시편의 제조는 조성비대로 전자 천평을 이용하여  $10^{-4}$ [g]까지 평량한 후 아세톤과 알루미늄 불을 사용하여 24시간 습식 혼합하였으며, 혼합된 분말을 건조한 다음 850[°C]에서 2시간 하소 후 24시간 동안 2차 milling을 하였

다. 하소분말을  $1[t/cm^2]$ 의 압력으로 성형한후 1170 [°C]에서 2시간 동안 소결하였다. 이렇게 제조된 시편을 연마한 후 초음파 세척기로 세척한 후 실크스크린법으로 전극을 부착하여 600[°C]에서 10분간 열처리하였다. 그리고 시편을 3.5[KV/mm]의 전계로 150[°C]의 실리콘 오일속에서 각각 30분동안 분극처리하였다. 또한 EMAS의 규격에 따라 경진동 모드의  $k_p$ 를 측정하기 위하여  $17.5 \times 1.1[mm]$ 로 시편을 가공하였으며, 미세구조는 SEM으로 결정구조는 XRD를 이용하여 관찰하였으며 유전상수는 LCR meter를 이용하여 계산식으로 구하였다. 전기적 특성은 Impedance Analyzer[HP 4194A]를 사용하였으며, 또한 소결된 시편의 밀도는 아래의 식 (1)과 같이 구하였다.

$$\rho = \frac{A}{(A-B)} \times \rho_0 \quad \text{----- (1)}$$

여기서 A는 시편의 공기중의 무게이며, B는 물속의 현수무게이다. 또한  $\rho_0$ 는 물의 밀도이다.

### 3. 실험결과 및 고찰

그림 1은 frit의 양의 변화에 따른 1,170[°C]에서 소결한 시편의 밀도를 나타낸 것으로 0.8wt% 첨가시에 가장 높은 밀도를 나타냄을 알수 있다. 이는 frit의 첨가에 따라 소결입자의 증가를 억제하여 열확산 면적을 증가시킨 것으로 생각된다. 그러나 1wt%이상의 첨가시에 소결 밀도가 떨어지는 것은 과잉 첨가에 따라 제 2상의 생성 및 부분적으로 입자의 이상성장이 발생됨에 따라 밀도의 저하를 가져온 것으로 사료된다.

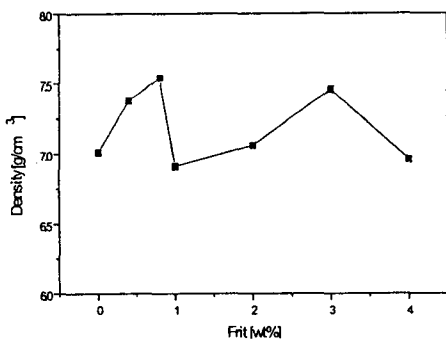
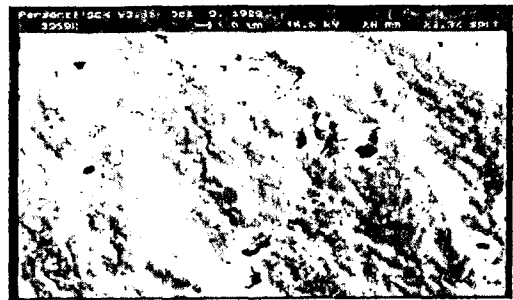
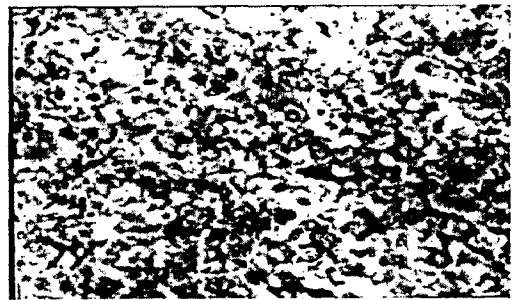


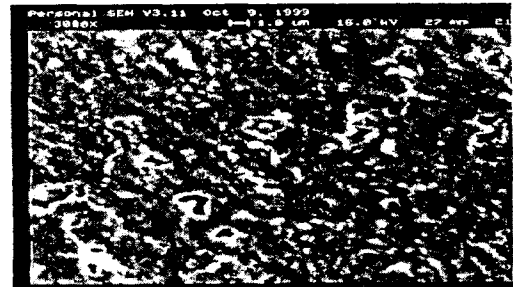
그림 1. Frit양에 따른 밀도  
Fig. 1. Density of ceramic as a function of frit



(a) 0wt%



(b) 0.8wt%



(c) 3wt%

그림 2. frit양에 따른 SEM  
Fig. 2. SEM of ceramic as a function of frit.

그림 2는 frit의 첨가량의 변화에 따른 SEM 사진으로서 0wt% 첨가시에는 소결이 이루어지지 않은 것으로 생각되며 0.8wt% 첨가시 비교적 소결이 잘 이루어진 것으로 생각된다. 그러나 그 이상 첨가시는 과잉의 frit에 의해 제 2상이 생성됨을 알수 있고, 따라서 밀도의 감소 및 제반특성의 저하를 가져올 것으로 사료된다.

그림 3은 유전상수의 변화를 frit 첨가량에 따라 나타내었다. frit의 첨가량이 0.8wt% 첨가시에 높게 나타남을 알 수 있다. 이는 그림 1의 밀도의 특성에서 알 수 있듯이 frit의 첨가가 시편의 소결성을 향상시켜 유

전율의 증가와 입자의 성장이 억제되어 입계의 증가에 기인한 것으로 생각된다.

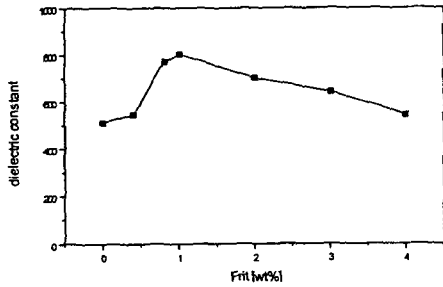


그림 3. frit의 증가에 따른 유전상수  
Fig. 3. Dielectric constant of ceramic as a function of frit

그림 4는 경방향 전기기계 결합계수  $k_p$ 를 frit의 첨가량에 따라 나타내었으며, 이 또한 다른 결과들 처럼 frit의 첨가량이 0.8wt%인 경우 가장 높게 나타남을 알 수 있다. 그러나 순수 PZT에 비해 다소 특성의 저하를 나타내고 있는데 이는 완전한 소결이 이루어지지 않아 특성의 저하를 가져온 것으로 생각된다. 따라서 앞으로 2차 밀링 시간 및 원료분말제조시부터 입경을 제어할 수 있는 제조공정의 개발이 필요하리라 생각된다.

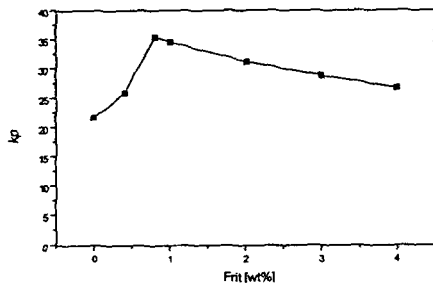


그림 4. frit 첨가량에 따른 전기기계결합계수  
Fig. 4. Electro mechanical coupling factor of ceramic as a function of frit

그림 5는 기계적 품질계수  $Q_m$ 을 frit 첨가량에 따라 구하였으며, frit의 첨가에 따라 증가하였음을 알 수 있다. 또한 표 1에 각종 특성을 정리하여 나타내었다.

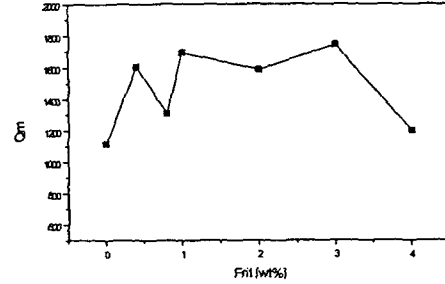


그림 5. frit 첨가량에 따른 기계적 품질계수  
Fig. 5. Mechanical quality factor of ceramic as a function of frit

표 1. frit 첨가량에 따른 각종 특성  
Table 1. Characteristics of ceramic as a function of frit

특성 frit양	밀도 (g/cm <sup>3</sup> )	유전 상수	전기기계결 합계수	기계적 품질계수
0 wt%	7.01	512	21.7	1115
0.4wt%	7.37	546	25.9	1605
0.8wt%	7.53	772	35.5	1308
1wt%	6.91	803	34.6	1695
2wt%	7.05	701	31.2	1586
4wt%	6.96	543	26.7	1199

#### 4. 결론

적층형 압전 컨버터 제작을 위하여 저온 소결용 재료를 개발하기 위하여 frit를 첨가하여 제조한 PMN-PSN-PZT계 세라믹스에서 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. frit를 첨가하지 않은 경우에 비하여 첨가시 소결성의 향상을 가져왔다.
2. 밀도는 frit의 양이 0.8wt% 첨가시까지 증가하다가 그 이상에서는 감소함을 알 수 있었다.
3. 유전상수, 전기기계결합계수 및 기계적 품질계수 등은 frit의 양이 0.8wt% 첨가시 최대값을 나타내어 적정량임을 알 수 있었다.

본연구에서는 frit를 사용하여 소결온도를 낮추고자 하였다. 소결온도를 100℃ 정도 낮추었지만 제반특성의

향상등을 위하여 소결성의 증대와 보다 소결온도를 낮추기 위하여 지속적인 연구를 진행되어야 할 것으로 생각된다.

### 참고문헌

- [1] O. Ohnishi, H. Kishie, A. Iwamoto, Y. Sasaki, T.Zaitso, and T.Inoue, "Piezoelectric ceramic transformer operating in thickness extensional vibration mode for power supply", IEEE Ultrasonic Symposium Proc., pp. 483-488, 1992.
- [2] T.Zaitso, T.Inoue, O.Ohnishi, A. Iwamoto, "2MHz power converter with piezoelectric ceramic transformer", IEEE INTELEC '92 Proc., pp.430-437, Oct. 1992.
- [3] S. Kawashima, O. Ohnishi, H. Hakamata, S.Tagami, A.Fukuoka, T.Inoue & S. Hirose, "Third order longitudinal mode piezoelectric ceramic transformer and its application to high-voltage power inverter", IEEE International Ultrasonic Symposium Proc., Nov. 1994.
- [4] 大西修, 岸江宏美, 岩本明夫, "厚み 縦振動を用いた電力電送用", 信學技報, US92-20, 1992.
- [5] 田上悟, 袴田洋代, 川島進吾, 福岡晃, 坂口龍夫, 座間浩一, "壓電トランス式インバータ 開發", NEC技報, Vol.47, pp.106~110, 1994.
- [6] 홍재일, 류주현, 윤현상, 윤광희, 장낙원, 박창엽, "MnO<sub>2</sub> 첨가에 따른 PbTiO<sub>3</sub>계 세라믹스의 구조적, 전기적 특성", 대한전기학회 논문지, Vol. 44, No. 11, pp.1488~1493, 1995.
- [7] J.H Yoo, S.H Lee, Y.H Jeong, C.Y Park, "Voltage Gain Characteristics of Piezoelectric Transformer Using PbTiO<sub>3</sub> System Ceramics" (Sensor& Actuator에 99년1.11에 accept)