

PMB-PZT계 세라믹스의 유전 특성에 관한 연구

신혜경, 김현철, 김진섭, 배선기
 인천대학교 전기공학과, 목포 기능대학교 전기공학과

A study on the dielectric characteristics of PMB-PZT ceramics

Hyea-Koung Shin, Hyun-Chul Kim, Jean-Shop Kim, Seon-Gi Bae
 Electrical Engineering Dept., University of Incheon, Mokpo Polytechnic College.

Abstract - In this thesis, specimens was manufactured in general method annexing PMB-PZT system ceramic, and the following conclusion has been deduced. In XRD, the crystal structure of ceramic has the tetragonal structure which is close to rhombohedral structure, and consequently the specimen characterized by MPB was manufactured. According to doping with xPMB, the dielectric constant at 20(°C) reduced on the whole. dielectric constant was maximum value 8.0×10^2 at xPMB 0.01[mol%]. Dielectric loss was maximum value 4.1[%] at xPMB 0.01[mol%].

다. 100°C에서 건조시킨 후 완료된 시료는 알루미나 유발로 분쇄한 후 알루미나 도가니에 넣어 전기로에서 850°C로 2시간 동안 2회 하소하였다.

하소가 끝난 시료를 유발로 분쇄하여 200mesh로 sieving 하여 입도를 균일하게 한 후 바인더로 PVA용액을 2[wt%] 혼합한 다음 원통형 금형(φ12mm)에 1.5[g]씩 넣고 1[ton/cm²]의 압력으로 성형하였다. 소성은 3중 도가니 구조를 사용하여 1150, 1200, 1250[°C]에서 2시간 동안 소결하였다.

소결이 완료된 시편은 두께 1[mm] 이내로 연마하여 만든 후 전극을 형성하였으며, DC 30[KV/cm]의 전압을 40분간 인가하여 분극시킨 후 impedance analyzer (HP-4194A)를 사용하여 압전특성을 측정하였다.

1. 서론

BaTiO₃세라믹스에서 압전성이 발견된 이래 다수의 페로브스카이트계의 압전성에 관한 연구가 활발히 이루어져 왔다. 이러한 압전 세라믹스의 응용분야는 전기적 응답을 응용한 압전 진동자에서 점화장치, 압전 변압기 등에 이르기까지 폭넓게 응용되어왔다.

그러나 BaTiO₃ 세라믹스를 압전 변압기로 응용하였을 경우, 상전이 온도가 낮고, 공진 주파수의 온도 특성이 안정하지 못하여 그 한계성을 나타내고 있다.

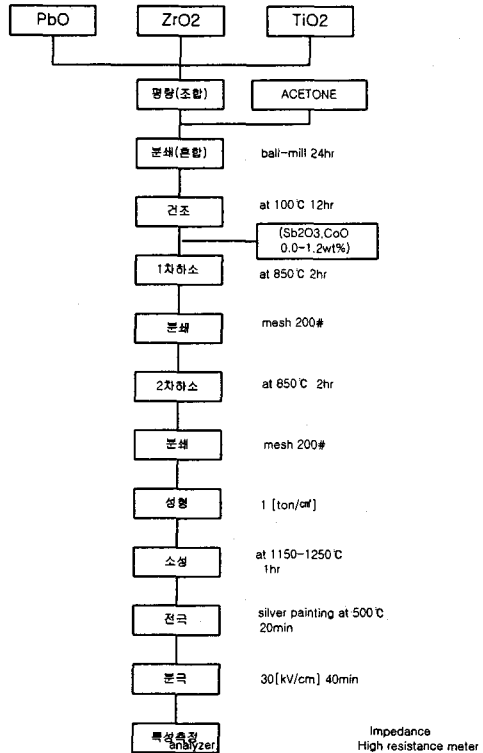
그 후, H.Jaffe 등은 PbTiO₃와 PbZrO₃의 고용체로부터 PZT세라믹스를 얻는데 성공하였다. 이러한 PZT세라믹스는 공진 주파수의 온도특성이 뛰어나고 상전이 온도가 높으며 여러 상들이 혼재하는 상경계 영역에서 압전특성이 우수하게 나타난다. 한 편, 1965년부터 PbTiO₃

- PbZrO₃(PZT)에 복합 Perovskite 화합물을 고용시킨 3 성분계 세라믹스에 첨가물을 소량 첨가하려는 연구가 시도되고 있다. 이 때, 3성분계는 PZT계와 비교하여 첨가제를 복합적으로 넓은 조성에서 고용시킬 수 있어 압전계정수의 값을 사용목적에 따라 쉽게 변화시킬 수 있는 장점을 가지고 있으며, Perovskite형 Pb(Zr, Ti)O₃를 기본조성으로 한 강유전 세라믹스는 조성에 의해 결정계가 변하는 상경계(MPB)를 가지고 있으며 이 상경계 근처에서 비유전율(εs), 전기기계 결합계수(Kp)가 가장 높은 값을 가진다.

본 연구에서는 고순도의 PbO, ZrO₂, TiO₂, MnCO₃, Bi₂O₃ 등의 시료를 산화물 혼합법으로 합성하여 xPb(Mn_{1/3}Bi_{2/3})O₃ - yPbZrO₃ - zPbTiO₃ 세라믹스의 유전특성을 연구하였으며, 이 재료의 응용범위를 고찰하였다.

2. 실험 방법

본 실험에서는 xPb(Mn_{1/3}Bi_{2/3})O₃ - yPbZrO₃ - zPbTiO₃를 선택하여 일반소성법으로 시편을 제조하였다. 전자천평을 사용하여 평량한 후 불밀에서 아세톤을 분산매로 하여 24시간 동안 140[rpm]으로 혼합 분쇄하였



3. 결과 및 고찰

3.1. 결정 구조의 관찰

그림3-1은 소결온도 1200℃에서 소결한 시편의 XRD 분석 결과와 회절 곡선이다. 시편들이 전반적으로 약간의 능면체정계에 가까운 정방정계 구조를 가지고 있어 조성 변화 상경계 조성의 특성을 가지는 시편이 제작되었음을 알 수 있으며 (110), (111), (200), (201), (211)면에 대응하는 회절피크가 나타나고 있어 강유전체로서 비교적 소결이 잘 이루어졌음을 알 수 있다.

전반적으로 미반응 물질에 의한 peak들이 관찰되지 않아 PMB는 PZT에 완전 고용되었을 것으로 보인다.

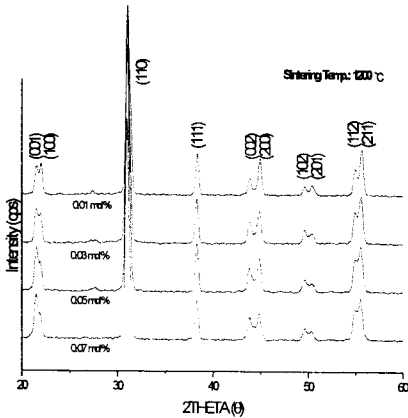


그림 3-1. xPb(Mn₁/3Bi₂/3)O₃ - yPbZrO₃ - zPbTiO₃계 세라믹의 XRD pattern

3.2 유전 특성 고찰

그림 3-2은 고용체를 MnCO₃과 Bi₂O₃로 사용하여 그 양을 0.01, 0.03, 0.05, 0.07 mol%로 xPb(Mn₁/3Bi₂/3)O₃ - yPbZrO₃ - zPbTiO₃계 세라믹스에 차례대로 고용시켜 나온 소결온도 1200℃, 상온(at 20℃)에서의 시편의 유전 상수이다.

고용량이 0.01 mol%일 때 유전 상수값은 8.0 × 10²를 나타내었으며 고용체의 양이 증가 할수록 유전상수의 값은 점차적으로 감소하는 추세를 보이고 있다.

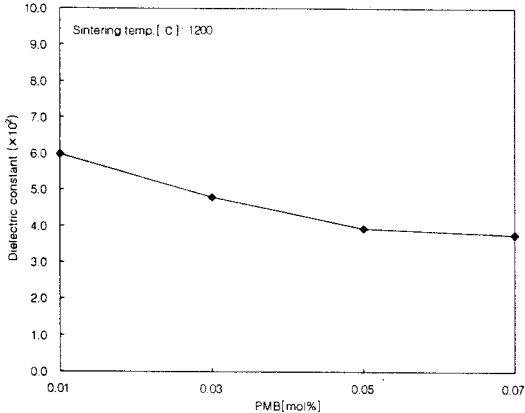


그림 3-2. xPb(Mn₁/3Bi₂/3)O₃ - yPbZrO₃ - zPbTiO₃계 세라믹스의 시편의 유전 상수(at. 20℃, 1kHz)

이러한 현상은 PMB의 고용량이 증가할수록 시편 내부의 pyrochlore상 및 미반응 물질 등이 억제되어 균질한 결정립 내부를 형성하기 때문에 안정성이 증대하는 것으로 생각된다.

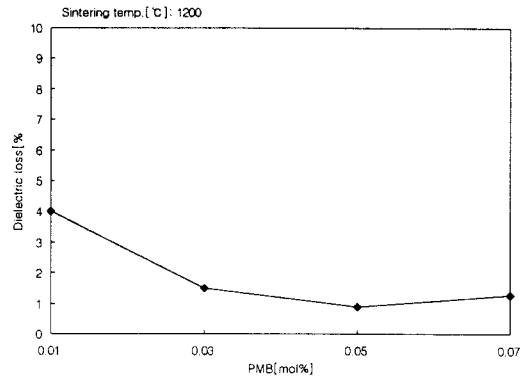


그림 3-3 xPb(Mn₁/3Bi₂/3)O₃ - yPbZrO₃ - zPbTiO₃계 세라믹스의 시편의 유전 손실[%]

그림 3-3은 소결 온도 1200℃에서 고용체 MnCO₃과 Bi₂O₃의 양이 증가함에 따라 xPb(Mn₁/3Bi₂/3)O₃ - yPbZrO₃ - zPbTiO₃ 세라믹스에 미치는 손실의 값을 나타낸 것이다.

고용량이 0.01 mol%일 때 손실값은 4[%]로 최대값을 가지며, 전반적으로 고용량이 증가함에 따라 그 손실값이 감소하고 있음을 알 수 있다. 또, 고용량이 0.01 mol%에서 0.02 mol%으로 증가할 때 손실값은 4[%]에서 1.25[%]로 감소폭이 크게 나타났으며, 고용량이 0.05 mol% 이상에서는 손실값이 증가함을 보인다. 이는 PMB의 고용량에 한계가 있으며, 이 한계 이상의 PMB는 오히려 유전손실을 증가시키는 것으로 생각된다.

그림 3-4은 주파수가 0.1, 1, 10, 100, 1000으로 변화하였을 때 유전 상수를 나타낸 것이다.

소결 온도가 1200℃일때의 주파수의 변화에 따른 유전 상수의 변화는 감소추세를 보이고 있다. 고용량이 증가함에 따라 주파수의 변화에 따른 기울기의 변화가 적어지며, 이는 고용량의 증가에 따라 주파수의 변화가 유전 상수에 미치는 영향이 적어지고 있음을 나타내고 있다.

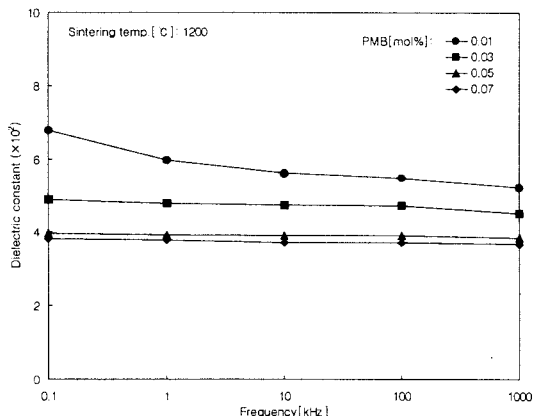


그림 3-4 xPb(Mn₁/3Bi₂/3)O₃ - yPbZrO₃ - zPbTiO₃계 세라믹스의 시편의 주파수에 따른 유전상수의 변화

3. 결 론

본 연구에서는 $x\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Bi}_{2/3})\text{O}_3 - y\text{PbZrO}_3 - z\text{PbTiO}_3$ 계 세라믹의 유전특성을 일반소성법으로 제조하여 고찰한 결과, 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 결정구조분석에서는 약간의 능면체정계에 가까운 정방정계 구조를 가지고 있어 상경계 영역(MPB) 조성의 특성을 가지는 시편이 제조되었으며 xPMB의 고용량이 안정적인 구조 형성에 영향을 주는 것으로 나타났다.
2. 상온에서 유전상수는 고용량이 증가함에 따라 점차적으로 감소하는 추세를 보이고 있다. 고용량이 0.01mol%일 때 유전 상수값은 8.0×10^2 으로 최대값을 나타내었다.
3. 유전 손실은 소결온도 1200°C에서 고용량이 0.01mol%일 때 7(%)로 최대값을 가지며, 전반적으로 고용량이 증가함에 따라 그 손실값이 감소하고 있음을 알 수 있다.
4. 소결 온도가 1200°C일때의 주파수의 변화에 따른 유전상수의 변화는 감소추세를 보이고 있다. 고용량이 증가함에 따라 주파수의 변화에 따른 기울기의 변화가 적어지고 있다.

(참 고 문 헌)

- [1] B. Jaffe, "Piezoelectric ceramics", Academic Press, pp. 140-142, 1971.
- [2] 강연활, "[$\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$] - [$\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$] 세라믹의 유전특성에 관한 탐구유전 및 압전", 인천대학교 교육대학원 논문지, pp 15-19, 1991
- [3] 강도원, 김태열, 김범진, 김명호, 박태곤, " $x[\text{Pb}(\text{Y}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3] - (1-x)\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$ 세라믹스의 유전 및 압전 특성에 관한 연구", 전기전자재료학회추계학술대회논문집, pp.294-295, 1999.