

PCN 치환이 PMN-PZT 세라믹스에 유전 및 압전특성에 미치는 영향

남승현, 류주현, 이수호*, 정영호**, 박창엽
세명대학교, 경성대학교*, 한전전력연구원**

The effect of PCN substitution on dielectric and piezoelectric properties of PMN-PZT Ceramics

Seung-Hyon Nam, Ju-Hyun Yoo, Su-Ho Lee*, Yeong-Ho Jeong**, Chang-Yub Park
Semyung Univ, Kyung Sung Univ.*, KEPRI**

Abstract

In this study, to develop the composition ceramics for the Ultrasonic vibrator, $Pb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ - $Pb(Zr.Ti)O_3$ system ceramics were manufactured as a function of PCN substitution. Its dielectric and piezoelectric characteristics were investigated. With increasing the amount of PCN substitution, electromechanical coupling factor(kp) were increased until 3mol% PCN and that after decreased. mechanical quality factor(Qm) showed the maximum value at 2mol% PCN. Eletromechanical coupling factor, mechanical quality factor and dielectric constant were showed optimum value at PCN 2mol% as 0.58, 1630 and 1407, respectively for ultrasonic vibrator applications.

Key Words : PCN substiution, PMN-PZT ceramic, Ultrasonic vibrator

1. 서 론

최근들어, 압전 변압기, 초음파 진동자, 압전모터등 압전 세라믹스의 응용이 확산됨에 따라, 보다 우수한 특성과 응용 분야에 맞는 재료의 개발을 위한 연구가 활발히 진행되고 있다[1-3]. 특히 압전 초음파 진동자는 전기적인 에너지를 기계적인 에너지인 진동으로 변환시켜 20kHz에서 2MHz까지 진동주파수를 발생시킨다. 따라서 전기계결합계수, 기계적품질계수가 높아야 하며 또한 기계적 진동으로 발생하는 열에 대한 온도 안정성을 가질 수 있는 특성이 필요하다. 이러한 요구를 만족시키기 위해 높은 큐리온

도와 제반특성이 우수하다고 알려져 있는 PZT계열의 압전 세라믹스가 많이 연구되고 있다. 일반적인 PZT계열의 압전 세라믹스는 강한 강유전성을 가지며, 높은 전기기계결합계수와 기계적품질계수를 가지며 온도안정성이 좋고 고밀도의 특성을 가진다. 또한 첨가물의 변화와 삼성분계 고용에 따라서 특성을 크게 개선시킬 수 있다[4].

따라서, 본 연구에서는 삼성분계 PMN-PZT계 세라믹스에 PCN을 첨가함에 따라 유전 및 압전특성을 조사하였으며, 가장 우수한 특성을 나타내는 것으로 초음파 진동자 재료로의 응용하고자 한다.

2. 실험

2.1 시편의 제조 및 특성측정

본 연구에서는 조성 $Pb_{0.97}Sr_{0.03}(Cu_{1/4}Nb_{3/4})_x(Mn_{1/3}Nb_{2/3})_{0.06}(Zr_{0.51}Ti_{0.49})_{0.94-x}O_3+0.3wt\%Fe_2O_3+0.25wt\%CeO_2+0.3wt\%Nb_2O_5$ ($x = 0, 0.02, 0.03, 0.04, 0.06, 0.08$) 을 사용하여 조성에 따라 시료를 $10^{-4}g$ 까지 평량하여 아세톤을 분산매로 볼밀에서 24시간 혼합 분쇄하였고, 건조 후 알루미늄 도가니로 $850^{\circ}C$ 에서 2시간 하소하였다. 하소 후 볼밀에서 24시간동안 재 분쇄하여 건조한 시료에 PVA (5wt% 수용액)을 첨가하여 $1,000[kg/cm^2]$ 의 압력으로 성형하였고, $1230^{\circ}C$ 에서 2시간 소결하였다. 특성 측정을 위해 두께 1mm로 연마해 Ag paste를 도포하고 $650^{\circ}C$ 에서 10분간 열처리하였다. 전극이 형성된 시편들은 $120^{\circ}C$ 실리콘유 속에서 $30[kV/cm]$ 의 전계를 인가하여 분극하였고, 24시간 후 제특성을 측정하였다. 유전특성을 조사하기 위하여 LCR meter(ANDO AG-4304)로 1kHz에서 정전용량을 측정하여 유전상수를 계산하였고, 압전 특성을 조사하기 위하여 전기기계결합계수 및 기계적 품질계수 등을 IRE 규정에 따라 Impedance Analyzer(Agilent 4294)로 공진 및 반공진 주파수를 측정하여 산출하였다.

3. 결과 및 고찰

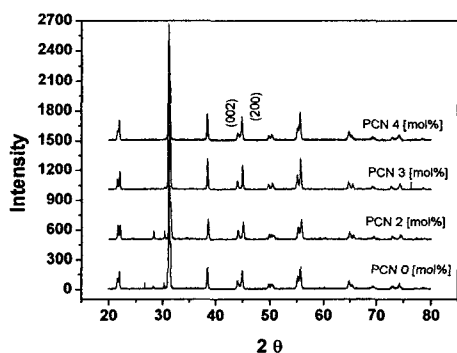
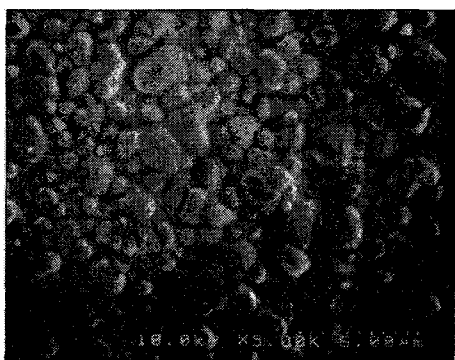


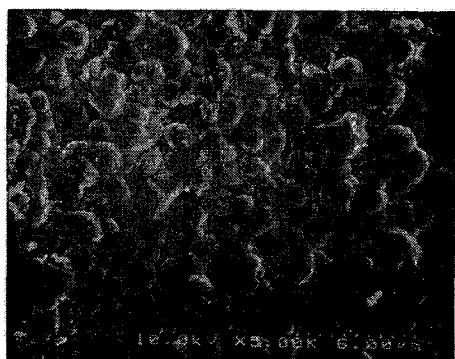
그림 1. PCN 치환량에 따른 X선 회절모양



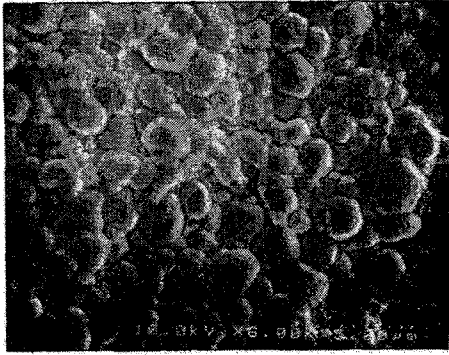
(a) PCN 0 mol [%]



(b) PCN 2 mol [%]



(c) PCN 3 mol [%]



(d) PCN 4 mol [%]

그림 2. PCN 치환량에 따른 미세구조(SEM)

그림 1은 PCN의 치환량에 따른 XRD 특성을 분석한 것으로 치환량이 증가하여도 정방정계임을 알 수 있다. 또한 치환량에 따른 tetragonality가 별 차이가 없음을 알 수 있다. 그림 2은 PCN 치환량에 따른 미세구조를 나타낸 것이다. 2 mol[%]의 PCN이 치환될 때에는 평균 그래인의 크기는 감소하였지만 그래인의 불균일성이 증가하였다. 그러나 그 이상의 첨가시에는 그래인 크기에는 큰 차이를 보이지 않았지만 입경의 균일함을 얻을 수 있었다.

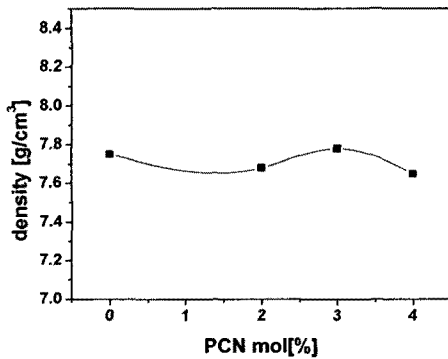


그림3. PCN 치환량에 따른 밀도

그림 3은 PCN에 치환량에 따른 밀도를 나타낸 것이다. 밀도에는 큰 변화가 없었다. 이는 그림 2의 미세구조에서 관찰하였듯이 PCN의 치환량이 2 mol[%]인 경우 그래인의 크기는 감소하였지만 그래인의 불균일성이 증가하였고, 그 이상에서는 그래인의 크기에 별 변화가 없었기 때문으로 생각된다.

다.

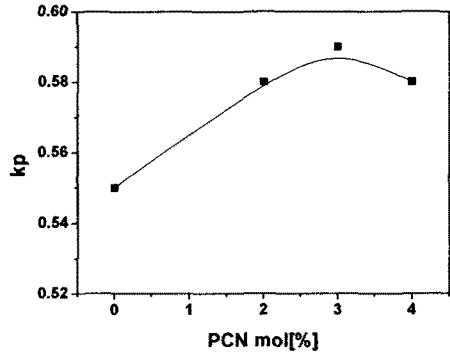


그림4. PCN 치환량에 따른 전기기계 결합계수(kp)

그림 4은 PCN 치환량에 따른 전기기계결합계수(kp)를 나타낸 것이다. PCN 3mol[%]에서 최대값을 보였으며, 그 이후에는 감소함을 알 수 있었다. 이는 미세구조와 밀도에서 알 수 있었듯이 치환량이 3mol[%]일 경우 가장 치밀한 구조를 가지고 있기 때문으로 생각된다.

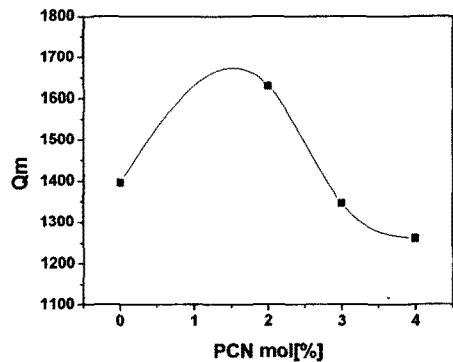


그림5. PCN 치환량에 따른 기계적 품질계수(Qm)

그림 5은 PCN 치환량에 따른 기계적 품질계수(Qm)를 나타낸 것이다. PCN 2mol[%]서 최대값을 보였으며, 그 이후에는 감소함을 알 수 있었다.

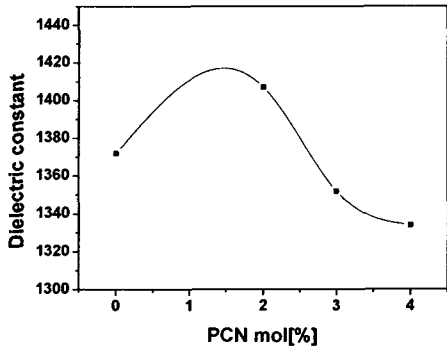


그림6. PCN 치환량에 따른 유전상수

그림 6은 PCN 치환량에 따른 유전상수 (ϵ_r)를 나타낸 것이다. 2mol[%]에서 최대값을 보였으며, 그 이후에는 감소함을 알 수 있었다

표1. PCN 치환량에 따른 물성 및 압전 특성

PCN mol[%]	Density [g/cm ³]	Grain size[μ m]	Tetragonality (c/a)	Kp	Qm	Dielectric constant	Tc (°C)
0	7.75	2.98	1.01808	0.55	1396	1372	336
2	7.68	1.91	1.021056	0.58	1630	1407	329
3	7.78	1.70	1.022433	0.59	1346	1352	323
4	7.65	1.79	1.01892	0.58	1260	1334	332

4. 결론

본 연구에서는 PMN-PZT세라믹에 PCN를 치환시켜 1230°C에서 2시간 소결 제조하였다. 제조된 시편의 유전 및 압전특성을 조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 시편의 밀도는 PCN 치환량이 2mol[%]에서는 감소하였지만, 그 이상에서는 큰 차이가 없어 밀도의 변화가 작았다.
2. PCN 치환량에 따라 전기기계 결합계수는 3mol[%]까지 증가하다가 감소하였다. 또한 3mol[%]에서 최대치 0.59를 나타내었다.
3. 기계적 품질계수는 PCN의 치환량이 2mol[%]까지 증가하다가 감소하였으며, 최대치는 1630을 얻었다.
4. 제반특성들을 검토한 결과 PCN 치환이 2mol[%]

에서 Kp 0.58, 기계적 품질계수 Qm 1620으로 가장 우수한 세라믹 조성을 나타내었다.

본 연구는, 1230°C에서 소결되는 초음파 진동자용 조성세라믹스를 개발하였으며, 추후 저온에서 소결할 수 있는 세라믹 조성을 위한 기초 연구로 활용하며 이를 추후에 보완 하고자 한다.

감사의 글

본 연구는 2003년도 한국 산업기술재단 석박사 인력 양성산업으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고 문헌

- [1] 이용우, 류주현, 윤광희, 정희승, 서성재, 김중선, "PSN-PZT계 세라믹스를 이용한 고출력 압전트랜스포머의 전기적 특성", 전기전자재료학회 논문지, 13권, 4호, p. 286, 2000
- [2] O. Ohnishi, H. Kishie, A. Iwamoto, Y. Sasaki, T. Zaitzu and T. Inoue, "Piezoelectric ceramic transformer operating in thickness extensional vibration mode for power supply", IEEE Ultrasonics Symposium Proc., p. 483, 1992
- [3] J. H. Yoo, Y. W. Lee, K. H. Yoon, S. J. Suh, J. S. Kim, and C. S. Yoo, "Electrical characteristics of the contour-vibration-mode piezoelectric transformer with ring/dot electrode area ratio", J. Appl. phys. Vol. 39, p. 2680, 2001
- [4] T. Takenaya, K. Maruyama and K. Sakata, "(Bi_{1/2}Na_{1/2})TiO₃-BaTiO₃ System for lead-free piezoelectric ceramics", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 30, No. 9B p.2236, 1991