

저온소결 PMgN-PMnN-PZT 세라믹스의 압전 및 유전 특성

이상호, 유주현, 홍재일¹, 정광현, 정영호
 세명대학교, 동서울대학¹, 한전전력공사²

Piezoelectric and Dielectric Characteristics of Low Temperature Sintering PMgN-PMnN-PZT Ceramics

Sangho Lee, Juhyun Yoo, Jaeil Hong¹, Kwanghyun Chung and Youngho Jeong²
 Semyung Univ., Dongseoul Coll¹.and KEPCO²

Abstract - In this study, in order to develop low temperature sintering piezoelectric ceramics for multilayer piezoelectric actuator, PbSr(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O₃-(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-(ZrTi)O₃ ceramics were fabricated using Na₂CO₃-Li₂CO₃ as sintering aids and their piezoelectric and dielectric characteristics were investigated according to the sintering temperature. At the sintering temperature of 900℃, the density, electromechanical coupling factor(kp), mechanical quality factor(Qm) and dielectric constant(εr) of specimen showed the optimum value of 7.730[g/cm³], 0.552, 1134, 1492 and 330[pC/N], respectively.

(Agilent 4294A)를 사용하여 유전 및 압전 특성을 측정하였다.

1. 서 론

2.2 결과 및 고찰

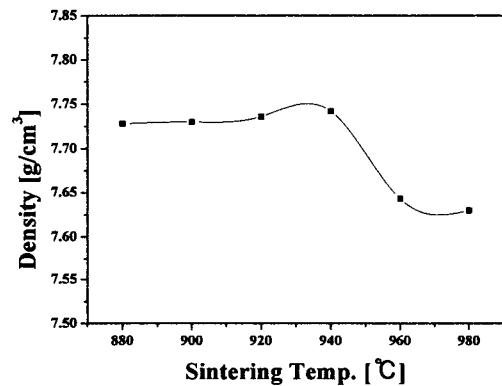
압전액추에이터 및 초음파진동자는 전자제품의 소형화 및 경량화, 의료기기, 모바일기기 및 소형로봇의 발전에 힘입어 그 활용범위가 넓게 확장되고 있다[1, 2]. 압전액추에이터 및 초음파진동자의 응용범위가 넓어짐에 따라 변위량, 출력 등을 개선시키기 위해 전기기계결합계수 kp 및 압전 d상수가 종전보다 큰 재료가 요구되고 있으며, 적응형 압전액추에이터 개발에 대한 연구도 활발히 이루어지고 있다. 또한 고전압 하에서 장시간 구동이 필요한 의료용 초음파진동자나 압전 모터와 같이 마찰에 의한 열손실이 많이 발생하는 액추에이터에 적용할 큰 기계적품질계수를 가지는 저손실 압전액추에이터 및 초음파진동자용 재료가 필요한 실정이다.

그림 1은 소결온도에 따른 시편의 밀도를 나타낸 것이다. 880℃의 낮은 온도에서 시편이 치밀화된 것을 확인할 수 있다. 이러한 결과는 액상소결에 의한 결과로 약 514℃의 낮은 용점을 갖는 Na₂CO₃-Li₂CO₃를 소결조제가 시편의 소결을 촉진시키기 때문이다. 시편의 밀도는 소성온도가 940℃일 때 7.74최대치를 보이고 이후에 급격히 감소하는 것을 볼 수 있다. 이러한 결과는 과소성에 의한 밀도의 급격한 저하로 해석 된다.

그림 2는 소결온도에 따른 시편의 유전상수를 나타내었다. 유전상수는 소성온도가 920, 940℃일 때 1542로 최대치를 보였으며, 이러한 결과는 높은 온도에서 그레인의 성장이 용이하기 때문으로 사료되며, 이후의 감소는 과소성에 의한 영향으로 사료된다. 그림 1에서의 밀도의 급격한 감소와 유사한 경향을 확인할 수 있다.

그림 3은 소결온도에 따른 전기기계결합계수 kp를 나타낸 것이다. 전기기계결합계수 kp는 900℃의 소결온도에서 0.552의 값으로 최고 값을 보였으며 이후에 감소하였다. 이러한 결과는 과소성에 의한 전기기계결합계수의 감소로 사료되며, 본 조성에서 최적의 소성온도가 900℃로 생각된다.

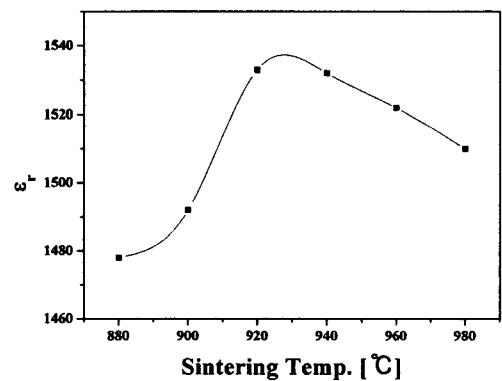
적층형 압전세라믹스는 제작 시 그 구조적 특성상 내부전극이 필요하게 되며 1200 [℃]이상의 높은 소결온도에서는 용해되지 않는 Pd나 Pt가 함유된 값비싼 전극을 사용하여야 한다. 그러나 세라믹스의 소성온도를 950 [℃]이하에서 저온소결 할 경우 값싼 Ag/Pd 전극을 사용하여 가격경쟁력을 높일 수 있다[3~6].



<그림 1> 소결온도에 따른 시편의 밀도

Pb(Zr,Ti)O₃ 세라믹스에 Pb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O₃을 고용한 삼성분계 Pb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O₃-Pb(ZrTi)O₃ 세라믹스는 높은 기계적품질계수를 갖는 재료로서 압전변압기등의 저손실용 재료로 많이 응용되어지고 있다 [7, 8]. Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃는 pseudo cubic 구조를 띠며, 약 -80 [℃] 정도의 큐리온도를 가지는 강유전체로 Pb(Zr,Ti)O₃계 세라믹스에 치환시 유전상수와 전기기계결합계수를 개선시키는 대표적인 성분이다 [6]. 또한 희토류 원소인 Sr의 경우 세라믹의 소결성을 개선시키며, 실온에서의 유전율을 개선시킬 수 있으며, 상정계 부근에서의 전기기계결합계수도 크게 만든다.

따라서, 본 연구에서는 적응형 압전 액추에이터에 적용할 저온소결 압전 세라믹스를 개발하기 위해 PbSr(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O₃-(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-(ZrTi)O₃ 세라믹스를 기본조성으로 하여, PZT계에서 acceptor와 doner로 동시에 작용한다고 알려진 CeO₂를 첨가하고, 저온소결하기 위해 Na₂CO₃-Li₂CO₃를 소결조제로 첨가하여 소결온도에 따른 압전 및 유전 특성을 관찰하고자 한다.

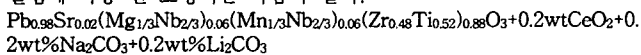


<그림 2> 소결온도에 따른 유전상수

2. 본 론

2.1 실험

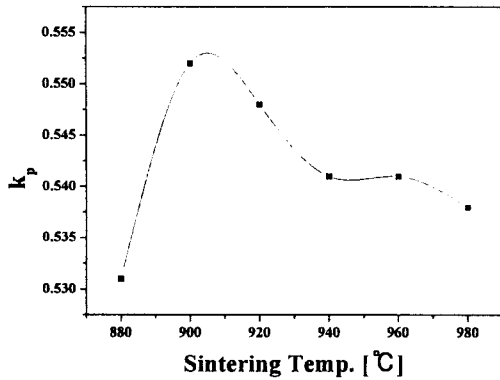
본 실험에서는 일반적인 산화물 혼합법으로 시편을 제작하였으며, 실험에 사용 된 조성식은 다음과 같다.



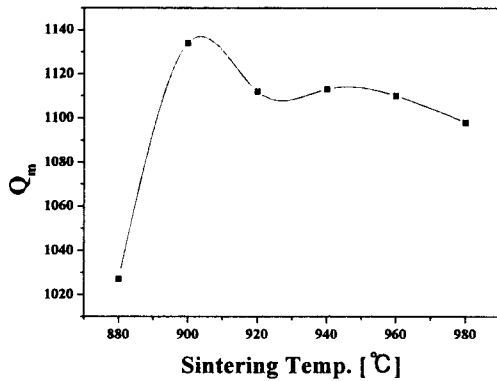
조성에 따른 시료의 정확한 물질을 10⁻⁴까지 평량하였고, 아세톤을 분산매로 불밀을 사용하여 24시간동안 혼합 분쇄하였으며, 항온조에서 건조 후 850℃에서 2시간동안 하소하였다. 하소된 시료에 소결조제로 Na₂CO₃-Li₂CO₃를 첨가하여 24시간동안 재 혼합 분쇄 후 PVA(5wt% 수용액)를 5wt% 첨가하여 k_p mode로써 제작하기 위해 직경 21[mm] 몰더로 1[ton/cm²]의 압력을 가하여 성형하였다. 성형한 시편을 600℃의 온도로 3시간동안 burn out 과정을 거치고, 980, 960, 940, 920, 900, 880℃의 온도로 각각 2시간동안 소결하였다. 소결을 마친 후 특성 측정을 위해 1[mm] 두께로 연마하였고, Ag paste를 도포하고 650℃에서 10분간 열처리하였다. 전극이 형성된 시편을 120℃ 실리컨유 속에서 30[W/cm²]의 전계를 30분 동안 인가하여 분극 하였다. 24시간이 지닌 후에 공진 및 반공진법에 따라 impedance analyzer

그림 4는 소결온도에 따른 기계적품질계수 Qm를 나타내었다. 기계적 품질계수 Qm는 900℃의 소성온도에서 1134로 최대 값을 보이고 이후에 감소하는 경향을 보였다. 이러한 결과는 전기기계결합계수와 같이 900℃의 소성

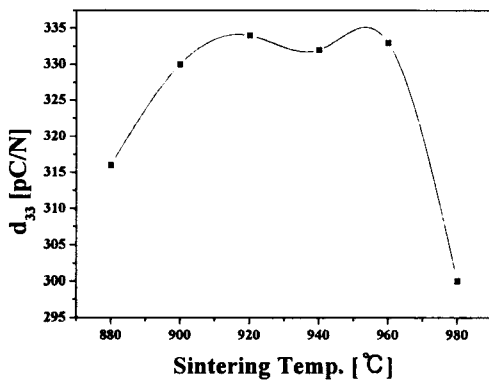
온도가 최적의 소성온도임을 나타내는 결과이며 900°C 이후의 소성온도에서의 감소는 과소성에 의한 결과로 사료된다.



〈그림 3〉 소결온도에 따른 전기기계결합계수



〈그림 4〉 소결온도에 따른 기계적품질계수



〈그림 5〉 소결온도에 따른 압전 d33 상수

〈표 1〉 소결온도에 따른 시편의 물성

Sintering Temp. [°C]	Density [g/cm ³]	E _r	k _p	Q _m	d ₃₃ [pC/N]
880	7.728	1478	0.531	1020	316
900	7.730	1492	0.552	1134	330
920	7.736	1533	0.548	1112	334
940	7.742	1532	0.541	1113	332
960	7.643	1522	0.541	1110	333
980	7.360	1510	0.538	1098	300

그림 5는 소성온도에 따른 압전 d₃₃상수를 나타내었다. 압전 d₃₃상수는 900-960°C의 온도에서 330[pC/N]이상의 값으로 포화되는 경향을 보이다가

980°C의 온도에서 감소하였다. 940°C이상의 온도에서 압전 d₃₃상수가 감소하지 않고 일정한 값을 유지하는 결과는 추후의 연구가 필요할 것으로 사료된다.

표 1에 소결온도에 따른 시편의 물성을 나타내었다.

3. 결 론

본 연구에서는 적층형 압전 액츄에이터에 적용할 저온소결 압전 세라믹스를 개발하기 위해 PbSr(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O₃-(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-(ZrTi)O₃ 세라믹스를 기본조성으로 하여, PZT계에서 acceptor와 doner로 동시에 작용한다고 알려진 CeO₂를 첨가하고, 저온소결하기 위해 Na₂CO₃-Li₂CO₃를 소결조제로 첨가하여 소결온도에 따른 압전 및 유전 특성을 관찰하고자 하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 밀도는 940°C의 소결온도에서 최고치를 보이며, 이후에 감소하였다.
2. 960°C이상의 소성온도에서는 과소성으로 인한 특성저하가 두드러지게 발생한다.
3. 900°C의 소성온도에서 밀도 7.730[g/cm³], 전기기계결합계수 0.552, 기계적품질계수 1134, 유전상수 1492, 압전 d₃₃상수 330[pC/N]으로 최적의 특성을 나타내었다.

감사의 글

본 연구는 2006년도 과학재단에서 시행하는 특정기초 사업(과제 번호 : R01-2006-000-10120-0)으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

[참 고 문 헌]

- [1] K. Uchino, "Piezoelectric actuators and ultra sonic moters", Kluwer Academic Publishers, p. 8, 1997.
- [2] 이수호, 박정학, 사공진, "압전진동자 재료와 응용기술: 초음파 발전용 압전진동자와 응용기술", 전기전자재료학회지, 14권, 4호, p.1, 2001.
- [3] K. Murakami, D. Mabuchi, T. Kurita, Y. Niwa and S. Kaneko, "Effects of adding various metal oxides on low-temperature sintered Pb(Zr,Ti)O₃ ceramics", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 35, No. 9B, p.5188, 1996
- [4] Juhyun Yoo, Kyungjin Yoo, Hyunseok Lee, Sangho Lee, Kwanghyun Chung, Hyeung gyu Lee and Hyungwon Kang, "Dielectric and Piezoelectric Properties of Low-Temperature-Sintering Pb(Mg_{1/2}W_{1/2})O₃-Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})O₃-Pb(Zr,Ti)O₃ Ceramics for Multi layer Piezoelectric Actuator", JJAP, Vol. 44, No. 9B, p. 7042, 2005.
- [5] 정광현, 이덕출, 이창배, 이상호, 류주현, 이형규, 강형원, "MnO₂ 첨가에 따른 저온소결 PCW-PMN-PZT 세라믹스의 유전 및 압전 특성", J. of KIEEME(in Korean), Vol. 18, No. 2 p. 136, 2005.
- [6] 박창엽, "압전 세라믹스", 김영사, p.183, 1987.
- [7] 류주현, 이창배, 이상호, 백동수, 정영호, 임인호, "저온소결 PMN-PZT 압전세라믹의 소성시간에 따른 미세구조 및 압전특성", J. of KIEEME(in Korean), Vol. 18, No. 3, p. 237, 2005.
- [8] 류주현, 이상호, 이창배, 송현선, 정광현, 정영호, 박덕원, "CaCO₃첨가에 따른 저온소결 PNW-PMN-PZT의 압전 및 유전특성", J. of KIEEME(in Korean), Vol. 18, No. 3, p. 243, 2005.