

소결온도에 따른 PMN-PNN-PZT 미세구조 및 압전특성

이현석, 류주현, 윤현상*

세명대학교, 경문대학*

Microstructure and Piezoelectric Properties of PMN-PNN-PZT with the Sintering Temperature

Hyunseok Lee, Juhyun Yoo and Hyunsang Yoon*

Semyung Univ., Kyungmoon coll.*

Abstract : In this study, in order to develop the low temperature sintering multilayer piezoelectric actuator, PMN-PNN-PZT system ceramics were manufactured with the sintering temperature, and their microstructure and piezoelectric properties were investigated. At the composition ceramics sintered at 900°C, dielectric constant(ϵ_r), electromechanical coupling factor(k_p), piezoelectric constant(d_{33}) and mechanical quality factor(Q_m) showed the optimal value of 1095, 0.60, 363 and 1055, respectively, for multilayer piezoelectric actuator application.

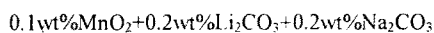
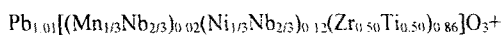
Key Words : attrition milling, sinter temperature, microstructure

1. 서론

압전 액추에이터 및 초음파진동자의 응용범위가 넓어짐에 따라 변위량, 응력등을 개선시키기 위해 전기기계결합계수 k_p 및 압전 d 상수가 종전보다 큰 재료가 요구되고 있으며, 초음파진동자나 압전 모터와 같이 마찰에 의한 열손실이 많이 발생하는 액추에이터에 적용할 큰 기계적 품질계수를 가지는 저손실 압전 액추에이터 및 초음파진동자용 재료가 필요한 실정이다. PZT계 세라믹스는 높은 유전상수와 압전특성으로 전자세라믹스분야에서 가장 널리 사용되어지고 있지만, 1200°C 이상의 높은 소결온도 때문에 1000°C 부근에서 급격히 휘발되는 PbO로 인한 환경오염과 기본조성의 변화로 인한 압전특성의 저하가 문제시 되고 있다. 따라서 이러한 문제를 해결하기 위해서는 소결온도를 최대한 감소시키고 저온소결시 나타나는 압전 및 유전특성의 저하를 억제할 수 있는 고품성 저온소결 압전세라믹스 조성의 개발이 위하여 콜럼바이트 방식과 ATTRITION 밀링방식이 연구되고 있다. 따라서, 본 연구에서는 이러한 문제점들을 해결하기 위하여 높은 압전특성을 갖는 PZT계 세라믹스를 ATTRITION 밀링을 하여 소결온도에 변화에 따른 압전 및 유전특성을 조사하여 압전 액추에이터 조성으로의 응용가능성을 조사하였다.

2. 실험

본 실험의 기본조성식은 다음과 같으며 산화물 혼합법으로 시편을 제조하였다.



위 조성에서 PbO, NiO, NbO₅, MnO₂, Nb₂O₅, ZrO₂, TiO₂를 출발원료로 사용하였으며, 조성에 따른 시료는 10⁻⁴g

까지 평량하여 아세톤을 분산매로 3mm 지르코니아볼을 사용하여 24시간동안 혼합, 분쇄 후 건조한 뒤, 알루미늄 도가니에 넣고 850°C에서 2시간 하소하였다. 하소된 분말에 소결조제로 Na₂CO₃, Li₂CO₃를 첨가하여 5시간동안 attrition밀링을 하여 건조하였다. 다시 24시간 불일하여 건조한 후, PVA(5% 수용액) 5%를 첨가하고 21mmφ 몰더에서 1ton/cm²으로 성형하였다. 이 성형된 시편을 600°C에서 3시간동안 결합제를 태워버린 뒤, 승하강온도 3°C/min로 하여 소결온도를 변화하여 2시간 소결하였다. 시편의 전기적 특성을 측정하기 위하여 1mm의 두께로 연마한 시편에 Ag전극을 도포한 뒤, 600°C에서 10분간 열처리하고 120°C의 절연유 속에서 30kV/cm의 직류전계를 30분간 인가하여 분극처리를 하였으며, 24시간 후에 제 특성을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1은 소결온도에 따른 밀도를 X-ray 회절패턴이다.

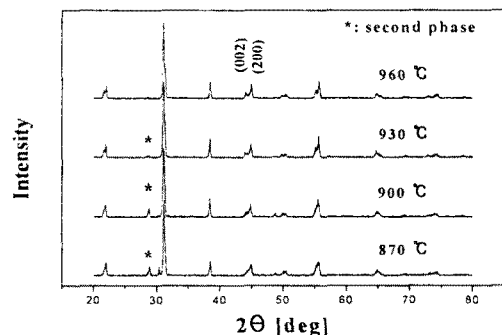


그림 1. X 선 회절 패턴.

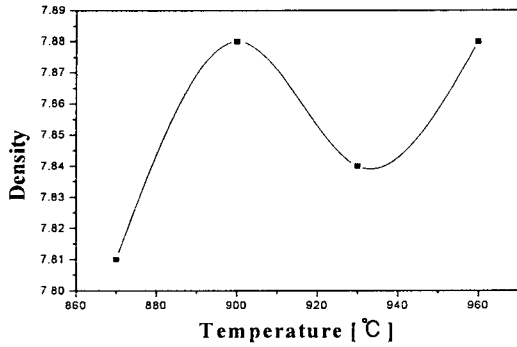


그림 2. 소결온도에 따른 밀도

모두 정방정상을 나타냈으며, 소결온도가 높아질수록 정방정상이 강해지는 것을 볼 수 있다. 또한 870°C에서 930°C까지는 이차상을 보였으며 그 이상의 온도에서는 사라지는 것을 볼 수 있었다. 그림 2는 소결온도에 따른 밀도를 나타낸 것이다. 소결온도가 증가할수록 밀도도 증가하였으며 900°C에서 7.88g/cm³으로 최대를 보였다. 그림 3은

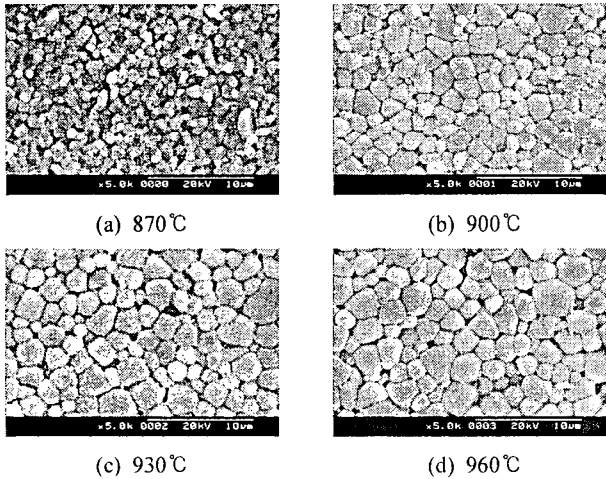


그림 3. 소결온도에 따른 미세구조

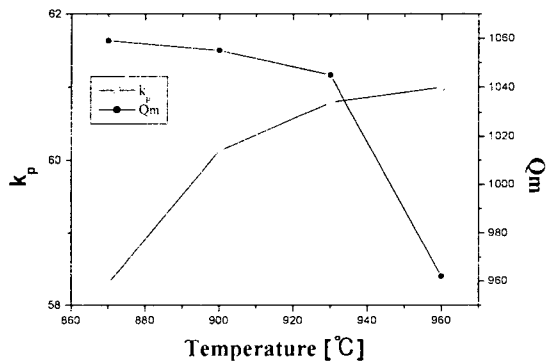


그림 4. 소결온도에 따른 전기기계결합계수(kp)와 기계적품질계수(Qm)

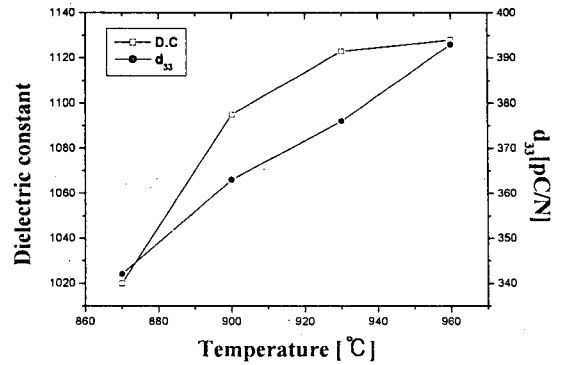


그림 5. 소결온도에 따른 유전상수와 압전상수

소결온도에 따른 미세구조를 나타낸 것이다. 소결온도가 증가할수록 그레인 사이즈가 점차 증가하였고, 기공도 증가하는 것을 보였다. 그림 4는 전기기계결합계수(kp)와 기계적품질계수를 나타낸 것이다. 일반적인 특성으로 kp가 증가할수록 Qm은 감소하였다. 이러한 결과는 attrition 밀링으로 입도는 감소하였으나 기본 조성 분말과 소결제가 분리되어 저온에서의 특성이 감소하는 것으로 사료된다. 그림 5는 유전상수(ε_r)와 압전상수(d₃₃)를 나타낸 것이다. 그림 4와 마찬가지로 일반적인 특성으로 k_p가 증가할수록 유전상수와 압전상수가 증가하는 특성을 보였다.

4. 결론

본 연구에서는 저온소결 적층형 압전액추에이터를 개발하기 위해 저온에서 소성가능하며, 압전 및 유전 특성이 우수한 압전세라믹스 조성을 개발하고자 PMN-PNN-PZT계 조성세라믹을 attrition 밀링에 따른 미세구조와 압전 및 유전 특성을 분석하였으며 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. Attrition 밀링에 따른 소결온도가 증가할수록 그레인 사이즈도 증가하는 특성을 보였다.
2. 900°C에서 소성하였을 때 PMN-PNN-PZT 세라믹스는 k_p=0.60, d₃₃=363 pC/N, Q_m=1055, ε_r=1095를 보이며, 최적의 압전 및 유전특성을 보였다.

감사의 글

본 연구는 2005년도 학술진흥재단 선도연구자지원사업(과제번호 : KRF-2005-041-D00307)의 연구비로 이루어졌으며, 이에 감사드립니다.

참고 문헌

- [1] "소결조제 변화에 따른 PCW-PMN-PZT 세라믹스의 저온소결 및 압전특성", 전기전자재료학회논문지, 17권 12호, p.1320, 2004.
- [2] "Ferroelectric Materials and Their Application", North-Holland, Amsterdam, pp.121-130, 1991.