

## CuO첨가에 따른 저온소결 PMN-PZN-PZT 세라믹스의 압전 및 유전특성

이일하, 이갑수, 류주현, <sup>1</sup>백동수

세명대학교, <sup>1</sup>E2S

### Piezoelectric and Dielectric Characteristics of Low Temperature Sintering PMN-PZN-PZT Ceramics with the Amount of CuO addition

Ilha Lee, Kabsoo Lee, Juhyun Yoo, <sup>1</sup>Dongsoo Paik

Semyung Univ. <sup>1</sup>E2S

**Abstract :** In this study, in order to develop low temperature sintering ceramics for multilayer piezoelectric actuator application, PMN-PZN-PZT ceramics were manufactured as a function of the amount of CuO addition and their dielectric and piezoelectric characteristics were investigated. With the amount of CuO addition, the physical characteristics of specimens decreased. The specimens showed the optimum value at 0.5wt%CuO addition. Their optimum values were density=7.93g/m<sup>3</sup>,  $\epsilon_r=1398$ ,  $k_p=0.560$ ,  $Q_m=1706$ ,  $d_{33}=327\text{pC/N}$ , respectively.

**Key Words :** CuO addition, low temperature sintering

### 1. 서 론

현재 압전특성이 우수한 압전세라믹 제조기술의 발전으로 압전체를 이용한 압전 디바이스의 연구가 활발히 이루어지고 있다. 특히 압전 액츄에이터 및 초음파진동자의 응용범위가 넓어짐에 따라 변위량·응력 등을 개선시키기 위해 전기기계결합계수 및 압전 d상수가 큰 재료가 요구되고 있으며 초음파진동자나 압전 모터와 같이 마찰에 의한 열손실이 많은 액츄에이터에 적용할 큰 기계적 품질계수를 가지는 저손실 재료가 필요한 실정이다. 그러므로 손실이 적고, 저온소결 할 수 있는 압전세라믹스의 조성개발이 시급하다.[1,2]

CuO는 PbO와 반응하여 액상을 증진시켜 치밀화를 유도하는 소결조제로서 작용하며 전기적 특성을 저하시키는 이차상을 저하시키고 PbO의 휘발을 억제할 수 있다. 또한 소결온도를 낮출 수 있으며, 압전상수의 온도 의존성을 낮출 수 있다. 따라서 최적의 CuO첨가량을 찾을 필요가 있다.[3] 이번 연구에서는 적층 압전 액츄에이터에 적용할 손실이 적고, 소결온도가 낮은 압전세라믹스를 개발하기 위해서 PMN-PZN-PZT 세라믹스를 가지고 CuO첨가에 따른 압전 및 유전 특성을 조사하였다.

### 2. 실 험

본 실험에서는 다음과 같은 조성식을 사용하여 실험하였다.

$\text{Pb}[(\text{Mn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.07}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.06}(\text{Zr}_{0.48}\text{Ti}_{0.52})_{0.87}\text{O}_3]+0.25\text{wt\%CeO}_2+0.3\text{wt\%Nb}_2\text{O}_5 + \text{sintering aids}(\text{Li}_2\text{CO}_3+\text{Bi}_2\text{O}_3+\text{CuO})$

조성에 따라 PbO를 제외한  $\text{MnO}_2$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{ZnO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{CeO}_2$ 의 조성을  $10^{-4}\text{g}$ 까지 평량하여 24시간 불밀하였다. 건조된 혼합시료를  $1100^\circ\text{C}$ 에서 4시간 하소하였으며,

하소된 시료에 PbO를 평량에 따라 첨가하여 불밀한 뒤  $750^\circ\text{C}$ 에서 2시간 하소하였다. 하소된 시료에 소결제로  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 를 첨가하였고 CuO는 0.3~0.6wt%까지 변화를 주어 첨가하였다. 건조된 혼합시료를 PVA(5wt% 수용액) 5wt%를 첨가하여 21mm<sup>2</sup>를 사용하여 1ton/cm<sup>3</sup>의 압력으로 성형하였다. 특성측정을 위해 시편에 Ag전극을 도포한 후  $120^\circ\text{C}$  실리콘유에서 30kV/cm의 전계를 가해 30분간 분극하였다. 분극된 시편을 24시간 후 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

그림 1은 CuO첨가에 따른 X선 회절 패턴을 나타낸 것이다. 모든 시편은 tetragonal phase를 보였으며, 이차상이 없는 순수한 페로브스카이트 구조를 나타냈다.

그림 2은 CuO첨가에 따른 시편의 미세구조를 나타낸 것이다. 입경의 크기는 CuO첨가에 따라 감소하다가 0.5wt% 이 후 다시 증가하였다. 0.3wt%CuO첨가시  $2.77\mu\text{m}$ 의 가장 큰 입성장을 보였다.

그림 3은 CuO첨가에 따른 시편의 밀도를 나타낸 것이다. 밀도는 CuO첨가량 증가에 따라 감소하였고, 0.3wt%를 첨가했을 때  $7.95\text{g}/\text{cm}^3$ 로 최대값을 보였다. CuO는 PbO와

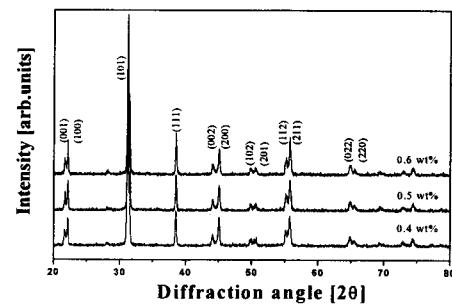


그림 1. CuO 첨가에 따른 X선 회절 패턴

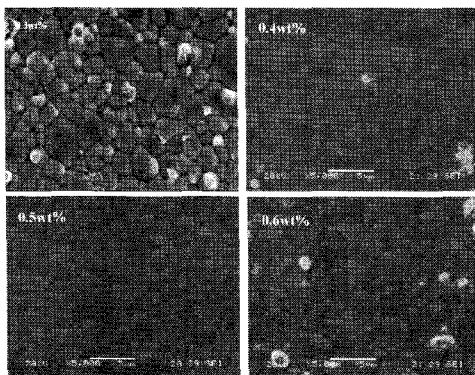


그림 2. CuO첨가에 따른 시편의 미세구조

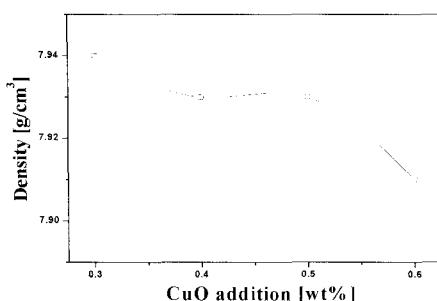


그림 3. CuO첨가에 따른 시편의 밀도

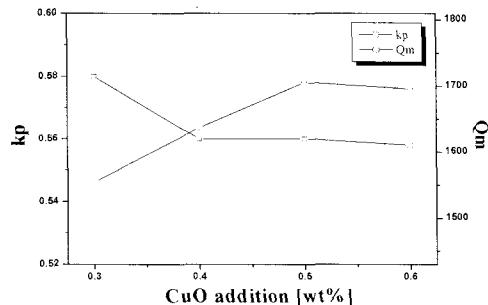


그림 4. CuO첨가에 따른 시편의 kp 및 Qm

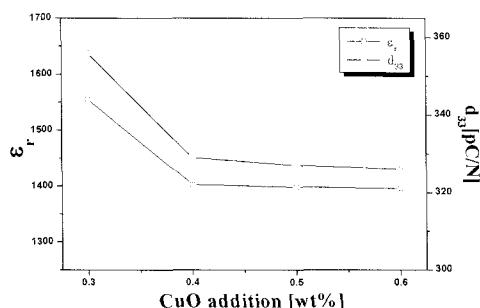


그림 5. CuO첨가에 따른 시편의 압전상수 및 유전상수

반응으로 액상을 증진시켜 치밀화를 유도하는 소결조제로 작용한 것으로 사료되고, 0.3wt%가 최적의 첨가량으로 높은 밀도를 나타낸 것으로 사료된다.

그림 4은 CuO첨가에 따른 시편의 전기기계결합계수(kp)와 기계적 품질계수(Qm)를 나타낸 것이다. kp는 CuO첨가에 따라 입경의 치밀화가 낮아져 밀도를 감소시켜 감소의

원인이 된 것으로 사료된다. Qm은 0.5wt%까지 상승하다 그 이상 첨가시 감소하였다. 이러한 결과는 입경의 감소로 Qm의 상승을 가져온 것으로 사료된다.

그림 5는 CuO첨가에 따른 시편의 압전상수 및 유전상수를 나타낸 것이다. 압전상수는 CuO첨가에 따라 감소하였고, 유전상수 또한 감소하는 경향을 나타냈다. CuO의 액상효과의 감소로 인한 밀도 저하와 kp의 감소로 압전상수 및 유전상수도 감소한 것으로 사료된다.

표 1에 CuO첨가에 따른 시편의 물성을 정리하였다.

표 1. CuO첨가에 따른 시편의 물성

Sintering Temp [°C]	CuO Addition [wt%]	Density [g/cm³]	ε <sub>r</sub>	kp	Qm	d <sub>33</sub> [pC/N]	Grain Size [μm]
930	0.3	7.95	1555	0.581	1554	356	2.77
	0.4	7.93	1403	0.560	1637	329	2.25
	0.5	7.93	1398	0.560	1706	327	1.90
	0.6	7.92	1396	0.558	1696	326	2.10

#### 4. 결 론

본 연구에서는 적층 액츄에이터에 적용하기 위한 저온 소결 압전세라믹스를 개발하기 위하여 우수한 특성을 보이는 PMN-PZN-PZT세라믹스에 CuO를 소결조제로 변화하여 시편의 특성을 조사하였고, 다음과 같은 결과를 얻었다.

- 모든 시편은 이차상이 없는 페로브스카이트 구조를 나타냈다.
- 0.3wt%CuO첨가시 가장 큰 입성장을 보였고, 입경의 크기는  $2.77\mu\text{m}$ 이었다.
- 0.5wt%CuO첨가시 밀도, 유전상수, kp, Qm,  $d_{33}$ 는 각각  $7.93\text{g}/\text{cm}^3$ , 1398, 0.56, 1706,  $327\text{pC/N}$ 으로 적층 액츄에이터에 응용하기에 가장 적합한 특성을 나타냈다.

#### 감사의 글

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

#### 참고 문헌

- [1] 이현석, 류주현, 윤현상, “소결온도에 따른 PMN-PN-PZT 미세구조 및 압전특성”, J. of KIEEME(in korea) p.217, 2006
- [2] 박창열 “압전 세라믹스”, 김영사, 1987
- [3] 나은상, 최성철, “두가지 형태의 columbite precursor법으로 제조된  $\text{Pb}(\text{Ni}, \text{Nb})\text{O}_3-\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$  세라믹스에서의 유전 및 압전 특성에 미치는 CuO의 첨가 영향”, J. of KCS, Vol. 36, No. 11, pp. 1235-1242, 1999