

소결조제 변화에 따른 PZW-PMN-PZT 압전 세라믹의 압전 및 유전 특성

이갑수, 이일하, 류주현, 류성림*
 세명대학교, *충주대학교

Piezoelectric and dielectric properties of PZW-PMN-PZT piezoelectric ceramic according to variation of sintering aids.

Kad-soo Lee, Il-ha Lee, Ju-hyun Yoo, Sung-lim Ryu¹
 Semyung Univ. Chungju National Univ.¹

Abstract : In this study, in order to develop the low temperature sintering multilayer piezoelectric actuator, PZW-PMN-PZT system ceramics were manufactured according to variation of sintering aids. At the sintering temperature of 900 °C, 0.3wt%Li₂CO₃, 0.2wt%Bi₂O₃ and 0.2wt%CuO added specimen showed a maximum value of $k_p = 0.552$, $d_{33} = 344\text{pC/N}$ and $Q_m = 1320$, respectively.

Key Words : sintering aids, electromechanical coupling factor(k_p), mechanical quality factor(Q_m),

1. 서론

최근에 압전액츄에이터의 연구개발이 활발하게 이루어지고 있으며, 관심이 높아지고 있다. 압전액츄에이터란 전기적 에너지를 기계적 에너지로 변환시키는 변환 소자로서, 일반적으로 압전액츄에이터용 재료는 압전상수(d_{33})와 전기기계결합계수(k_p)가 높은 것이 좋으나 반면에 이러한 재료는 기계적품질계수(Q_m)가 낮기 때문에 기계적 손실이 매우 크다. 따라서 압전상수(d_{33})는 다소 낮더라도 curie온도의 향상과 기계적 손실이 적은 재료개발이 필요하다.

Pb-based 세라믹스의 저온 소결은 비용절감, 환경오염 방지, 그리고 MLCC(multilayer ceramic capacitor)와 MLCA(multilayer ceramic actuator)에 적용 등의 여러가지 장점으로 인해 관심이 높아지고 있는 연구분야이다[1-2].

본 실험에서는 저온 소결한 PZW-PMN-PZT 세라믹의 압전 및 유전 특성을 향상시키기 위해 소결조제를 변화하여 각각의 소결조제에 따른 압전 및 유전 특성을 측정하였다.

2. 실험

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

$[0.05\text{Pb}(\text{Zn}_{1/2}\text{W}_{1/2})-0.07\text{Pb}(\text{Mn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})-0.88\text{Pb}(\text{Zr}_{0.48}\text{Ti}_{0.52})]\text{O}_3+0.2\text{wt}\%$
 $\text{MnO}_2+\text{Xwt}\%\text{Li}_2\text{CO}_3+\text{Ywt}\%\text{Bi}_2\text{O}_3+\text{Zwt}\%\text{CuO}$

- a → X = 0.1, Y = 0.2, Z = 0.2
- b → X = 0.2, Y = 0.2, Z = 0.2
- c → X = 0.3, Y = 0.2, Z = 0.2
- d → X = 0.2, Y = 0.3, Z = 0.2

PbO와 소결첨가제를 제외한 나머지를 조성에 따른 시료의 정확한 몰비율 10⁻⁴까지 평량하였고, 아세톤을 분산매로 불밀을 사용하여 24시간동안 1차 혼합 분쇄하였으며, 80°C의 황온조에서 12시간 이상 건조 후 1100°C에서 4시간동안 1차 하소하였다. 하소한 파우더에 PbO를 넣고

2차 혼합 분쇄를 하였고, 건조 후 750°C에서 2시간동안 2차 하소를 하였다. 하소한 파우더에 각각의 소결첨가제를 넣고 재 혼합분쇄 후 PVA(5wt% 수용액)를 5wt%첨가하여 21mmφ 몰더로 1ton/cm²의 압력으로 성형하였다. 성형된 시편을 600°C에서 3시간동안 결합제를 휘발시킨 뒤, 900°C의 온도에서 2시간 소결한 후, 시편의 전기적 특성을 측정하기 위하여 1mm의 두께로 연마하고 Ag전극을 도포한 뒤, 열처리 후 120°C의 절연유 속에서 3kV/mm의 직류전계를 30분간 인가하여 분극처리를 하였으며, 24시간 후에 제 특성을 측정하였다. 유전특성을 조사하기 위하여 LCR meter(ANDO AG-4304)를 사용하였고, 또한 IRE규정에 따라 Impedance Analyzer(Agilent 4294A)로 공진 및 반공진 주파수와 공진저항을 측정하여 전기기계결합계수(k_p)와 기계적 품질계수(Q_m)를 산출하였고, d_{33} -meter (APC)를 사용하여 압전상수를 측정하였다.

3. 결과 및 검토

그림 1은 소결조제 변화에 따른 시편의 XRD 패턴을 나타낸 것이다. Li₂CO₃의 양이 증가하면서 (002) 피크가 감소하여 tetragonality가 감소하는 경향을 나타내었다.

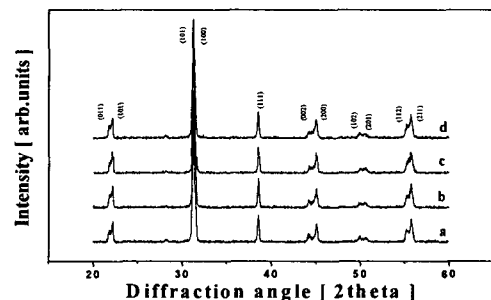


그림 1. 소결조제의 변화에 따른 시편의 XRD 패턴.

그림 2는 소결조제 변화에 따른 시편의 밀도를 나타낸 것이다. Li₂CO₃를 변화한 시편에서는 b번 소결조제에서

7.72g/cm³의 최대 밀도를 나타내었고, Bi₂O₃를 변화한 b, d 번에서는 각각, 7.72, 7.63g/cm³의 값을 나타내었다. Bi₂O₃의 첨가량이 증가하면 밀도는 감소하는 특성을 나타냈다.

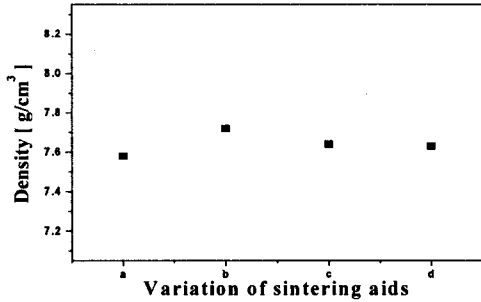


그림 2. 소결조제 변화에 따른 시편의 밀도.

그림 3은 소결조제 변화에 따른 시편의 전기기계결합계수(kp)를 나타낸 것이다. 밀도 특성과 같은 경향을 나타내었다. b번에서 0.556의 최대 전기기계결합계수(kp)를 나타내었고, d번에서는 0.542의 값을 나타냈다. 이것은 밀도 특성에 기인한 것으로 사료된다.

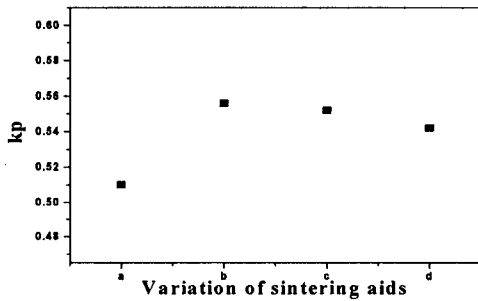


그림 3. 소결조제 변화에 따른 시편의 전기기계결합계수(kp).

그림 4는 소결조제 변화에 따른 시편은 압전상수(d₃₃)를 나타낸 것이다. 압전상수(d₃₃)는 밀도와 같은 경향을 보이며, b번과 d번에서 압전상수(d₃₃)는 각각, 347, 334pC/N의 값을 나타내었다.

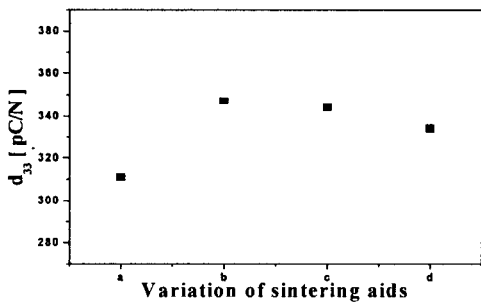


그림 4. 소결조제 변화에 따른 시편의 압전상수(d₃₃).

그림 5는 소결조제 변화에 따른 시편의 기계적품질계수(Qm)를 나타낸 것이다. c번에서 기계적품질계수(Qm)는

1320의 값을 나타내었다. 기계적품질계수(Qm)는 전기기계결합계수(kp)와 압전상수(d₃₃)에 정반대의 경향을 나타내었다.

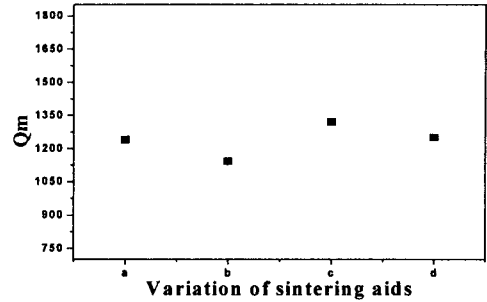


그림 5. 소결조제 변화에 따른 시편의 기계적품질계수(Qm).

표 1에 소결조제 변화에 따른 시편은 특성을 정리하였다.

표 1. 소결조제 변화에 따른 물성

Sintering temp. [°C]	Sintering aids	Density [g/cm ³]	Dielectric constant	kp	Qm	d ₃₃ [pC/N]
900	a	7.58	1292	0.510	1240	311
	b	7.72	1424	0.556	1142	347
	c	7.64	1349	0.552	1320	344
	d	7.63	1297	0.542	1250	334

4. 결론

본 연구에서는 저온소결 압전세라믹스를 개발하기 위해 Pb(Zn_{1/2}W_{1/2})-Pb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})-Pb(Zr_{0.48}Ti_{0.52})O₃ 조성을 이용하여 압전세라믹스를 제작하여 다음과 같은 결론은 얻었다.

1. Li₂CO₃의 양이 증가하면서 (002) peak가 감소하여 tetragonality가 감소하는 특성을 나타내었다.
2. 0.3wt%Li₂CO₃, 0.2wt%Bi₂O₃ 그리고 0.2wt%CuO의 소결조제가 첨가된 시편에서 kp, d₃₃, Qm이 각각, 0.552, 344pC/N, 1320의 최적의 특성을 나타내었다.

감사의 글

본 연구는 2005년도 학술진흥재단 선도연구자지원사업(과제번호 : KRF-2005-041-D00307)으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고 문헌

- [1] I. Burn, M.T. Raad, and Sasaki. "New High-performance, Low-fire MLC Dielectric for SMT Applications," *Ferroelectrics*, 102, 101-115 (1990).
- [2] W.R. Buessen and T.I. Prokopowicz, "Electrode and Material Problems in Ceramic Capacitors," *Ferroelectrics*, 10, 225-230 (1976).