

첨가제에 의한 PWM-PSN-PZT계 세라믹의 유전특성에 관한 연구

신혜경, 송현재, 김유신, 배선기
인천대학교 전기공학과

A study on the dielectric characteristics of PWM-PSN-PZT ceramics with additive

Hyea-Kyoung Shin, Hyun-Jea Song, Yu-shin Kim, Seon-Gi Bae
Electrical Engineering Dept. University of Incheon

Abstract - This paper was to measure the structure, piezoelectric properties of $0.03\text{Pb}(\text{Mg}_{0.5}\text{W}_{0.5})\text{O}_3 - 0.12\text{Pb}(\text{Sb}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})\text{O}_3 - 0.85\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3 + 0.5[\text{wt}\%]\text{MnO}_2$ ceramics doped with additive CuO after manufacturing the specimens with a general method. It is shown that X-ray diffraction pattern variation of lines (211) have tendency to move minutely by addition of additive CuO. According to doping with Cu, the dielectric constant at 20[°C] reduced to CuO 3.0[wt%]. In case of sintering at 1050[°C], dielectric constant was maximum value 623.59 at CuO 1.0[wt%]. Dielectric loss was maximum value 2.7[%] at Cu 2.0[wt%] in case of sintering at 1050[°C].

- 0.85PZT 세라믹이며 MnO_2 를 0.5[wt%] 첨가한 후, 일반소성법으로 제조하였다. 전자천평을 사용하여 평량한 후 불밀에서 아세톤을 분산매로 하여 24시간 동안 140rpm으로 혼합 분쇄하였다. 100°C에서 건조시킨 후 완료된 시료는 알루미늄 유발로 분쇄한 후 CuO를 각각 0.0, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0[wt%]까지 첨가하여 알루미늄 도가니에 넣어 전기로에서 850°C로 2시간 동안 2차 하소하였다. 2차 하소가 끝난 시료를 유발로 분쇄하여 200mesh로 sieving 하여 입도를 균일하게 한 후 바인더로 PVA용액을 2[wt%] 혼합한 다음 원통형 금형(Φ 12mm)에 1.5[g]씩 넣고 1[ton/cm²]의 압력으로 성형하였다. 3중 도가니 구조를 사용하여 1000, 1050, 1100, 1150 [°C]에서 2간 동안 소결하였다.

1. 서 론

압전현상을 이용한 압전 트랜스는 1957년 미국의 G.E사의 C.E Rosen[1], P.A. Berkum[2], H.W.Katz[3] 등이 실험적인 연구를 하면서 주목받게 되었으나 당시의 세라믹스인 BaTiO₃는 승압비가 낮고 실용성이 적었다. 1954년 H.Jaffe 등은 PbTiO₃와 PbZrO₃의 고용체로부터 PZT세라믹스를 얻는데 성공하였다.[4] 이러한 PZT세라믹스는 공진 주파수의 온도특성이 뛰어나고 상전이 온도가 높으며 여러 상들이 혼재하는 상경계 영역에서 압전특성이 우수하게 나타난다.

더욱이 최근에는 PZT계 세라믹스에 복합 Perovskite 화합물을 고용시킨 3성분계 세라믹스가 개발되어 PZT계 세라믹스에 비해 유전 및 압전 특성이 우수한 조성변태 상경계 영역이 확대되었다. 조성의 변화에 따라 재료특성의 선택폭이 확대되었다는 장점이 있으며, 각종의 미량의 첨가물을 가함으로서 응용 용도에 따라 그 특성을 높여나갈 수 있다. 3성분계는 PZT계와 비교하여 첨가제를 복합적으로 넣은 조성에서 고용시킬 수 있어 압전 제정수의 값을 사용목적에 따라 쉽게 변화시킬 수 있는 장점을 가지고 있다. Perovskite형 Pb(Zr, Ti)O₃를 기본 조성으로 한 강유전 세라믹스는 조성에 의해 결정계가 변하는 상경계(MPB)를 가지고 있으며 이 상경계 근처에서 비유전율(εs), 전기기계 결합계수(Kp)가 가장 높은 값을 가진다.

따라서 본 연구에서는 비교적 유전 및 압전 특성이 높은 $\text{Pb}(\text{Sb}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})\text{O}_3 - \text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$ (이하 PSN-PZT)계 세라믹스에 $\text{Pb}(\text{Mg}_{0.5}\text{W}_{0.5})\text{O}_3$ (이하 PMW)를 치환하여, 일정량의 MnO_2 를 첨가한 후, 첨가제 CuO의 첨가량의 변화에 따른 유전특성을 연구하여, 이 조성의 응용범위를 고찰하고자 한다.

전극이 형성하여 DC 30[KV/cm]의 전압을 40분간 인가하여 분극시킨 후 impedance analyzer(HP-4194A)를 사용하여 압전특성을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 결정 구조의 관찰

그림 3-1은 소결온도 1150[°C]에서 소결한 PWM-PSN-PZT계 시편의 XRD분석결과이다. 시편들이 전반적으로 정방정계에 가까운 구조를 가지고 있으며, (110), (111), (200), (211)면에 대응하는 회절피크가 나타나고 있어 강유전체로써 비교적 소결이 잘 이루어졌음을 알 수 있다. ↓

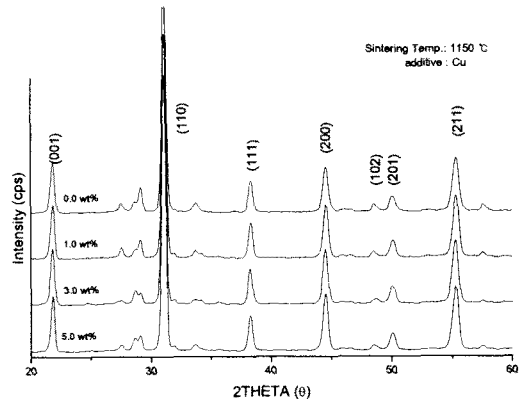


그림 3-1 Cu 첨가에 따른 PWM-PSN-PZT계 세라믹스의 조성별 X선 회절곡선(소결온도 : 1150[°C])

2. 실험 방법

본 실험에 사용된 기본 조성은 0.03PMW- 0.12PSN

3.2 유전특성 고찰

그림 3-2는 Cu 첨가량에 따른 PMW-PSN-PZT + 0.5MnO₂ 시편의 유전상수를 나타낸 것이다. 첨가제 Cu의 첨가량이 증가함에 따라 증가하다가 첨가량 3.0[wt%]를 기준으로 점차 감소하고 있다. 이는 CuO의 첨가량 3.0[wt%]까지 증가할수록 그래인 크기의 성장이 이루어졌으며 조성변태상경계 영역으로 근접하고 있음을 알 수 있으며 3.0[wt%] 이상 첨가할 경우 밀도가 증가하면서 유전상수가 감소하고 있다. 첨가량이 1.0[wt%]인 시편을 1050[°C]에서 소결하였을 경우 유전상수는 623.59로 최대 값을 나타내었다.

그림 3-3은 Cu 첨가량에 따른 PMW-PSN-PZT +0.5MnO₂ 시편의 유전손실을 나타낸 것이다. 첨가제 Cu의 첨가량이 증가함에 따라 감소하다가 첨가량 3.0[wt%]를 기준으로 점차 증가하는 경향을 보이고 있으며, 첨가량이 2.0[wt%]인 시편을 1100[°C]에서 소결하였을 경우, 2.7[%]으로 가장 낮은 값을 나타내었다.

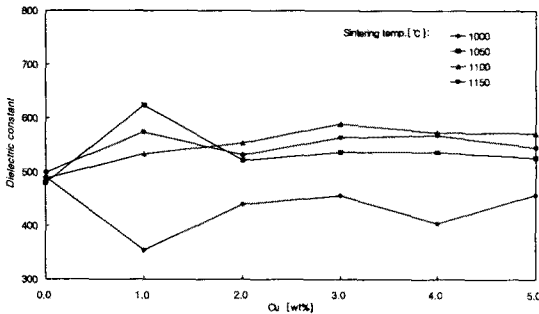


그림 3-2 Cu 첨가량에 따른 PMW-PSN-PZT + 0.5MnO₂ 시편의 유전상수 (at 20[°C], 1KHz)

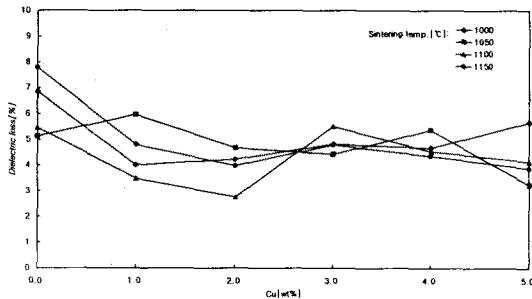
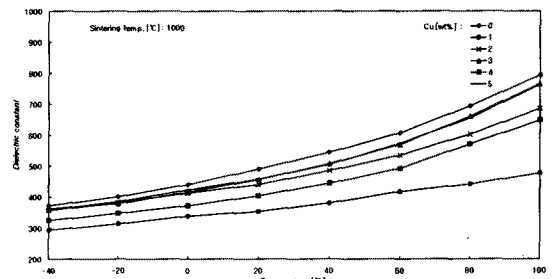


그림 3-3은 Cu 첨가량에 따른 PMW-PSN-PZT +0.5MnO₂ 시편의 유전손실 (at 20[°C], 1KHz)

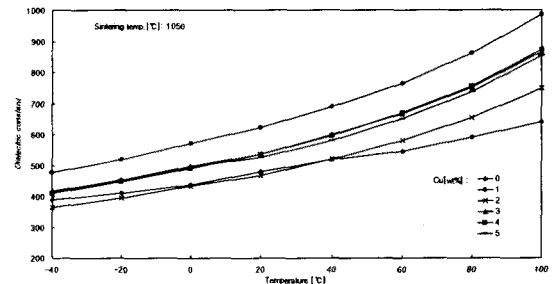
그림 3-4는 온도변화 및 Cu 첨가량에 따른 PMW-PSN-PZT + 0.5MnO₂ 시편의 유전상수를 나타낸 것이다. 전반적으로 온도가 상승함에 따라 유전상수는 증가하였으며 소결온도 1000[°C]에서 Cu 첨가량이 1.0[wt%]인 경우 온도변화에 따른 변화율이 가장 작은 것으로 나타내었다. 또한 첨가량이 증가함에 따라 유전상수는 증가추세를 나타내었다.

그림 3-5는 주파수 변화 및 Cu 첨가량에 따른 PMW-PSN-PZT +0.5MnO₂ 시편의 유전상수를 나타낸 것이다. 측정 주파수(0.1[KHz]~1000[KHz])에서 유전상수의 변화율을 살펴보면 Cu를 4.0[wt%]첨가한 시편을 1000[°C]에서 소결한 경우, 변화폭이 79.527로 가장 적으며 소결온도 1150[°C]의 경우에는 Cu의 첨가량이 3.0[wt%]인 시편에서 변화폭이 43.93으로 최소로 나타내었다. 이러한 현상은 주파수가 유전체 자체의 계면분극

이나 공간전하분극에 기인한 것으로 사료된다.[5]

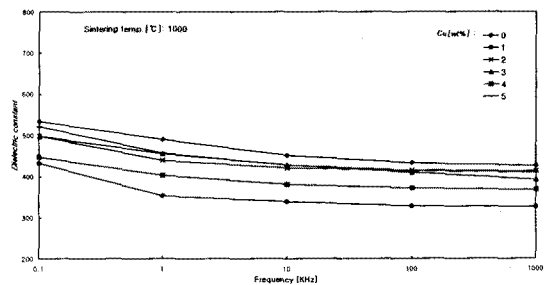


(a) 소결온도 : 1000[°C]

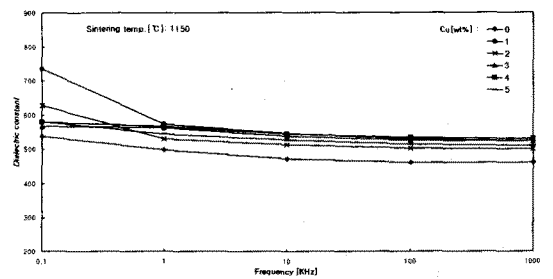


(b) 소결온도 : 1050[°C]

그림 3-4 온도변화에 따른 PMW-PSN-PZT + 0.5MnO₂ 시편의 유전상수



(a) 소결온도 : 1000[°C]



(b) 소결온도 : 1150[°C]

그림 3-5는 주파수변화 및 Cu 첨가량에 따른 PMW-PSN-PZT +0.5MnO₂ 시편의 유전상수 (at 20[°C])

4. 결 론

본 연구에서는 0.03PMW- 0.12PSN - 0.85PZT + 0.5[wt%]MnO₂계 세라믹스의 유전특성을 일반소성법으로 제조하여 고찰한 결과, 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 결정구조분석에서는 시편들이 전반적으로 정방정계에 가까운 구조를 가지고 있으며, Cu의 첨가가 안정적인 구조형성에 영향을 주는 것으로 나타났다.
2. 상온에서 유전상수는 Cu의 첨가량이 3.0[wt%]까지 증가함에 따라 증가하는 경향을 보이고 있으며 첨가량이 1.0[wt%]이며 소결온도가 1050[°C]인 시편의 경우 유전상수가 623.59으로 최대값을 가진다. 상온에서 유전손실은 Cu 첨가량 3.0[wt%]까지 증가하다가 감소하였으며, 첨가량이 2.0[wt%]인 시편을 1100[°C]에서 소결하였을 경우, 2.7[%]으로 가장 낮은 값을 나타내었다.
3. 온도변화에 따른 유전상수의 변화가 가장 낮은 시편은 소결온도 1000[°C]에서 Cu 첨가량이 1.0[wt%]인 경우이며, 주파수 변화에 따른 유전상수의 변화는 소결온도 1150[°C]에서 Cu 첨가량이 3.0[wt%]의 시편인 경우 변화폭이 43.93으로 가장 낮은 것으로 나타내었다.

[참 고 문 헌]

- [1] C.A.Rosen Proceeding of Electronic Componentosymposium, U.S. Patent. 2,830, 274, 1957.
- [2] H.W. Katz, Solid State Magnetic and Dielectric Devics, N.Y., John Wiley, 1959
- [3] C.A. Crowford, Wireless World, pp510, 1960
- [4] B. Jaffe, R. S. 캐소, and S. Marzullo, "Properties of Piezoelectric Ceramics in the Solil-Solution Series Lead Titanate -Lead Zirconata-Lead Oxside : Tin Oxid and Titanata-Lead Hafnate", J. Res. Natl. Std, Vol. 55, No.5, p239, 1955.
- [5]이경희, 세라믹 유전체 공학, 대광문화사, pp.191-201, p375, 1977