

PCW-PNN-PZT계 세라믹의 유전 특성에 관한 연구

신혜경, 이성호, 정보람, 배선기
인천대학교 전기공학과

A Study on Dielectric Properties of PCW-PNN-PZT ceramics

Shin Hye-gyeong, Lee Sung-Ho, Jung Bo-Ram, Bae Seon-Gi
Incheon Uni.

Abstract - This study was to measure the minuteness structure, dielectric properties of 0.03PCW-0.07PNN-0.9PZT ceramics according to sintering temperature manufacture the specimens with a general method. The results of this study were gotten such as follows. The crystal structure of ceramic changed the rombohedral structure into teteragonal structure according to rising sintering temperature in XRD. Dielectric constant at 20°C showed its maximum value 510.599 in specimens sintered at 1100°C, and dielectric loss showed its minimum value 7.43% in specimens sintered at 1100°C. The variation rate of dielectric constant according to the change of frequency showed its minimum value 0.029/kHz at 1100°C. The variation rate of dielectric constant according to the change of temperature showed its minimum value 1.40/°C at 1150°C.

1. 서 론

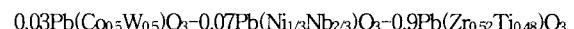
강유전체는 우수한 유전특성, 압전특성, 초전특성을 갖고 있어 각종 전자 소자에 유용하게 응용되고 있다. 특히 강유전성 세라믹스는 1947년 미국의 Roberts에 의해 BaTiO₃가 발견된 것을 시작으로 하여 이후 압전 특성이 뛰어난 2성분계의 Pb(Zr,Ti)O₃ 일명 PZT계 세라믹스가 개발됨으로써 압전 재료의 응용이 크게 확대되고 있다. PZT계 세라믹스는 보다 높은 압전성, 안정된 온도특성을 갖추고 있어 BaTiO₃계 세라믹스로는 응용이 어려웠던 세라믹 필터, 리조네이터, 통신용 필터, 압전착화소자, 초음파 모터, 각종 센서, 발진자 및 음향 필터 등의 분야에 있어 실용화가 급속히 진행되고 있다.

압전 변압기의 응용이 확대됨에 따라 압전 세라믹스의 연구가 활발해지고 있다. 기본조성으로 사용되는 PZT계 세라믹스는 압전 특성이 우수하며 유전상수가 높으나, 1200[°C]이상의 높은 소결온도에서의 PbO의 휘발로 인한 환경오염과 값비싼 Pt, Pd 전극 사용에 따른 경제적인 부담이 문제점으로 지적된다. 이를 줄이기 위하여 전기전도도가 우수하고 상대적으로 값이싼 Ag나 Cu를 내부전극으로 사용하기 위한 저온 소결이 요구된다.^{[1]-[4]} PNN계는 낮은 저온에서 소결되는 장점이 있으며, 낮은 온도에서의 소결에도 불구하고 매우 높은 압전상수 (Piezoelectric Constant)와 전기기계 결합계수를 나타낸다.^[5]

본 연구에서는 높은 압전 이방성을 보인 PCW계 세라믹스를 포함한 PCW-PNN-PZT계 세라믹을 기본 조성으로 선정하여 이에 따른 결정구조, 소결온도변화에 따른 유전상수, 유전손실 등에 미치는 영향에 대해 연구한다.

2. 실험

본 연구는 고순도의 시료를 산화물 혼합법으로 합성하였으며, 아래와 같은 조성을 사용하여 실험하였다.



시편의 조성에 따른 시료의 [mol%]를 구하기 위하여 전자 천평을 사용하여 평랑한 후 볼밀에서 아세톤을 분산매로 하여 24시간 동안 140[rpm]으로 혼합 분쇄하였다. 100[°C]에서 전조시킨 후 완료된 시료는 알루미나 유발로 분쇄한 후 알루미나 도가니에 넣어 전기로(Motoyama co, su-2025NP)에서 850[°C]로 2시간 동안 1차 하소하였다. 1차 하소가 끝난 시료를 재분쇄한 후 200mesh로 sieving 하여 입도를 균일하게 한 다음 알루미나 도가니에 넣어 전기로에서 850[°C], 2시간 동안 2차 하소하였다. 이 후 시료를 유발로 분쇄하여 200mesh로 sieving 하여 입도를 균일하게 한 후 바인더로 PVA용액을 2[wt%] 혼합한 다음 원통형 금형(Φ12mm)에 1.5[g]씩 넣고 1[ton/cm²]의 압력으로 성형하였다. 3중 도가니 구조를 사용하여 1000, 1050, 1100, 1150, 1200[°C]에서 2시간 동안 소결하였다.

소결이 끝난 시편은 사포로 연마한 후 polishing 처리를 하여 초음파 세척기로 세척한다. 세척한 시편은 완전 전조시킨 후 실버페이스트를 균일하게 도포하여 열처리한다. 전극이 형성하여 DC 30[KV/mm]의 전압을 40분간 인가하여 분극 시킨 후 impedance analyzer (HP-4194A)를 사용하여 유전특성을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 결정 구조 분석

표 3-1은 PCW-PNN-PZT계 세라믹스의 XRD 회절 분석 결과 얻어지는 격자 상수와 결정 구조이며, 그림 3-1은 PCW-PNN-PZT계 세라믹스의 XRD pattern을 나타낸 것이다. 결정구조를 분석하여 보면 Rhombohedral상과 tetragonal상이 서로 공존하고 있으며, cell volume이 점차적으로 증가하고 있다. XRD pattern을 살펴보면 소결온도가 증가함에 따라 pychlore상이 감소함을 알 수 있다. 이는 소결온도가 낮으므로 PCW, PNN, PZT 사이의 생겨났던 중간생성물이 소결온도가 높아짐에 따라 줄어들고, 점차 완전한 고용체를 나타낸다.

표 3-1. PCW-PNN-PZT계 세라믹스의 결정구조

NO	소결온도	Lattice Constant			Cell Volume [A ³]	Crystal Structure	비고
		a[Å]	α [°]	c[Å]			
1	1000	4.075871	90.11359		67.71095	Rhombo	
2	1050	4.078496	90.15030		67.84153	Rhombo	
3	1100	4.081100	90.11506		67.97187	Rhombo	
4	1150	4.082830	4.062345		67.71746	Tetra	
5	1200	4.082830	4.707711		78.47520	Tetra	

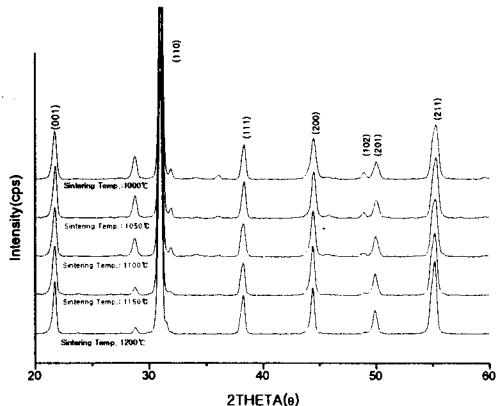


그림 3-1. PCW-PNN-PZT계 세라믹스의 XRD pattern

3.2 유전 특성

그림 3-2와 그림 3-3은 소결온도에 따른 PCW-PNN-PZT계 세라믹스의 유전상수와 손실을 나타내고 있다. 소결온도가 증가함에 따라 유전상수가 점차 증가를 하다가 1100[°C]를 기준으로 유전상수가 감소하고 있다. 유전손실은 점차 감소하다가 1100[°C]이상의 경우 미세하게 증가하는 것으로 나타났다. 소결온도 1100[°C]근처에서 MPB영역을 나타내어 유전상수를 최대치를 보이며, 최대값은 510.599이다. 유전손실 최소값은 소결온도 1100[°C]에서 7.43%으로 나타났다.

그림 3-3과 그림 3-4는 주파수 및 온도 변화에 따른 유전상수를 나타낸 것이다. 그림 3-3에서 주파수 변화에 따른 유전상수의 변화폭이 가장 적은 것은 소결온도 1100[°C]에서의 세라믹스이며, 변화폭은 0.029/kHz이다.

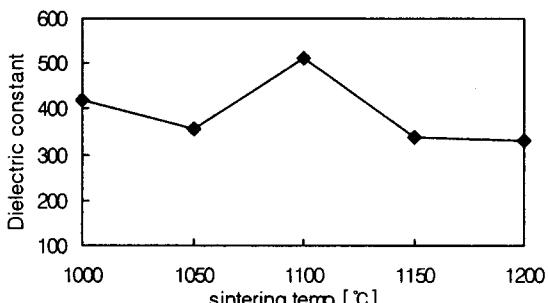


그림 3-2 소결온도 변화에 따른 PCW-PNN-PZT계 세라믹스의 유전상수(at 20°C)

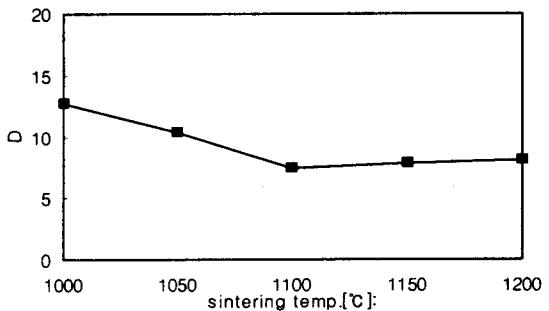


그림 3-2 소결온도 변화에 따른 PCW-PNN-PZT계 세라믹스의 유전 손실

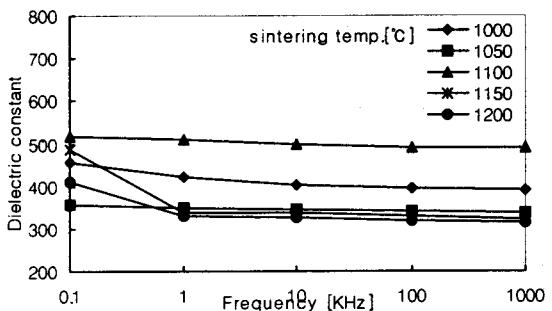


그림 3-3 주파수 변화에 따른 PCW-PNN-PZT계 세라믹스의 유전상수

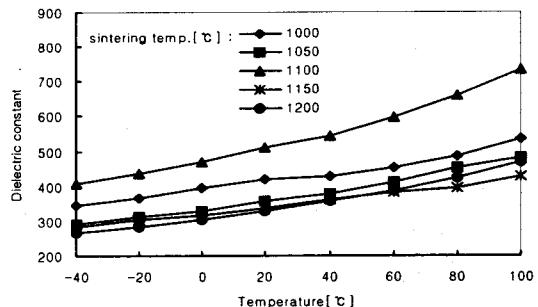


그림 3-4 온도 변화에 따른 PCW-PNN-PZT계 세라믹스의 유전상수

그림 3-4에서 온도변화에 따른 유전상수의 변화폭이 가장 적은 것은 소결온도 1150[°C]에서의 세라믹스이며 그 변화폭은 1.40/°C으로 나타난다.

4. 결 론

본 연구에서는 0.03PCW-0.07PNN-0.9PZT계 세라믹을 일반 소성법으로 시편을 제작한 후 소결온도에 따른 미세구조와 유전 특성을 측정한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 결정구조 분석에서 결정구조는 격자상수를 구한 결과 Rhombohedral상과 tetragonal상이 서로 공존하고 있으며, 소결온도가 올라감에 따라 pychlore상이 점차 감소한다.
2. 상온(at 20°C)에서의 유전상수는 소결온도 1100[°C]의 세라믹스에서 510.599의 최대값을 나타내었으며, 유전

손실은 소결온도 1100[°C]에서의 세라믹스에서 7.43[%]의 최소값을 나타내었다.

3. 소결온도 1100[°C]인 PCW-PNN-PZT계 세라믹스에서 주파수 변화폭이 0.029/kHz으로 가장 적게 나타났으며, 소결온도 1150[°C]인 PCW-PNN-PZT계 세라믹스에서 온도 변화폭이 1.40/°C으로 가장 적게 나타났다.

【참 고 문 헌】

- [1] P. G. Lecuta, F. Constatinescu and D. Brab: J. am. Ceram. Soc. 68, p. 533, 1985
- [2] S.Takahashi : Jpn. J. Appl. Phys. 19, p. 771, 1980
- [3] G. Zhilun, L. Longtu, G. Sunhua, and Z. Xiaowen : J. Am. Ceram. Soc. 72, p.486, 1989
- [4] S. Y. Cheng, S. L. Fu, C. C. Wei and G. M. Ke: J. Mater. Sci. 21, p.571, 1986
- [5] Banno, H., Tsunooka, T., Shimano, I: Article on PP.339 in[77tl]