

# CuO첨가에 따른 $(K_{0.5}Na_{0.5})_{0.97}(Nb_{0.96}Sb_{0.04})O_3$ 세라믹스의 유전 및 압전 특성

이유형, 박민호, 노정래, 류주현, 김인성\*, 송재성\*  
세명대학교, 한국전기연구원\*

## Dielectric and piezoelectric properties of CuO added $(K_{0.5}Na_{0.5})_{0.97}(Nb_{0.96}Sb_{0.04})O_3$ ceramics

Yu-Hyong Lee, Min-Ho Park, Jung-Rae Noh, Ju-Hyun Yoo, In-Sung Kim\*, Jae-Sung Song\*  
Semyung Univ., Korea Electrotechnology Research Institute.\*

**Abstract :** In this study, in order to develop the lead free piezoelectric ceramics with excellent piezoelectric properties,  $(Na,K)NbO_3$  ceramics according to the amount CuO addition were fabricated using a conventional mixed oxide process and their piezoelectric and dielectric characteristics were investigated . At the 0.8mol% CuO added composition, density, electromechanical coupling factor(kp), mechanical quality factor(Qm), dielectric constant( $\epsilon_r$ ) and piezoelectric constant( $d_{33}$ ) showed the optimum value of 4.459g/cm<sup>3</sup>, 0.469, 540, 410, 69.57pC/N, respectively.

**Key Words :** lead free ceramics, CuO addition, mechanical quality factor(Qm)

### 1. 서 론

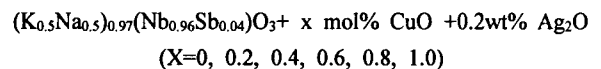
1954년 Jaffe에 의해 페로브스카이트(perovskite)구조를 가지는  $Pb(Zr,Ti)O_3$ 계 (PZT)계 압전세라믹스가 발견됨에 따라 압전세라믹스의 응용 및 발전이 크게 확대됨과 동시에 오늘날 통신기기, 의료기기, 음향기기, 초정밀 액츄에이터, 초음파 모터 등에 광범위하게 응용되고 있다. 그러나, 현재 세라믹스의 대부분을 차지하는  $Pb(Zr,Ti)O_3$ 계,  $PbTiO_3$ 계 등의 압전세라믹스는 WEEE(Waste Electrical and Electronic Equipment), RoHS(Restriction of Hazardous Substance)등에서 규제할 만큼 인체에 매우 유해한 다량의 PbO를 함유하여 심각한 환경문제를 야기함과 동시에 PbO 휘발 억제 시설 구비에 따른 경제적 부담 등의 문제점이 대두되고 있다. 이에 따라 전자 부품분야에서 환경문제 및 인체에 유해한 휘발성 물질인 PbO가 함유되지 않으며, PZT계 세라믹스와 물리적 특성과 기능이 유사한 무연계 압전 세라믹스 재료 개발이 필요하다[1].

화학량론적 조성으로부터 벗어난 화합물을 비-화학량론적 화합물(nonstoichiometric compound)라고 한다[2]. 화학량론적 조성으로부터 벗어남을 1803년 C. L. Berthollet가 제안하였으나 J.Dalton의 원자설을 신봉한 나머지 약 50년간 그의 개념이 무시되어왔다. 하지만 고체화합물중 이들 비-화학량론적 조성이 그 고체물질들 또는 berthollides의 결정 구조, 전기전도성, 촉매성, 광학적 자기성 등과같은 물리적 성질들을 좌우하는 주 요인임을 알게 되었다. 따라서 비-화학량론적 조성에 관한 연구개발은 단순화합물은 물론 페로브스카이트, Ruddlesden-Popper(RP)형 산화물들 등의 고체화학에서 중요한 위치를 차지하며 관심과 흥미를 집중시키고 있고 그에 따른 많은 연구가 필요할 따름이다.

따라서 본 연구에서는 PZT계 세라믹스를 대체할 무연 압전세라믹스를 개발하기 위하여, 비화학량론적 KNN세라믹스에 CuO를 x=0~1mol%로 변화시키면서 일반적인 과정으로 제작된 시편의 유전 및 압전 특성을 조사하였다.

### 2. 실험

본 실험은 다음의 조성식을 사용하여 일반적인 산화물 혼합법으로 시편을 제조하였다.



99% 이상의 순도를 가지는 원료의 조성에 따라 칭량하였고 아세톤을 분산매로 하여 3φ zirconia ball을 사용하여 24시간동안 혼합, 분쇄하였다. 혼합 분쇄된 시료는 900℃에서 6시간 하소하였다. 하소된 시료는 Ag<sub>2</sub>O를 소결조제로 첨가하여 24시간동안 재 혼합분쇄 하였다. 건조된 시료에 PVA(5wt%수용액)를 첨가하고 100mesh로 조립하여, 21φ의 몰더로 1ton/cm<sup>2</sup>의 힘을 가해 성형하였다. 성형된 성형된 시편은 600℃에서 3 시간동안 결합제를 태워버린 뒤, 승 하강 온도구배를 5℃/min로 하여 1080℃의 온도에서 5시간 소결하였다. 소결된 시편을 1 mm의 두께로 연마하고 Ag전극을 스크린 프린트법으로 도포한 뒤, 600℃에서 10분간 열처리하였고 100℃의 실리콘유속에서 40 kV/cm의 직류전계를 20분간 인가하여 분극 하였고 분극된 시편은 24시간 후 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

그림 1은 CuO첨가량에 따른 시편의 밀도를 나타낸 것

이다. 시편의 밀도는 CuO첨가량이 1mol%일 때 4.463g/cm<sup>3</sup>으로 최대값을 나타내었다. 이는 CuO첨가량이 증가할수록 시편의 소결성을 촉진시킨 것으로 보인다.

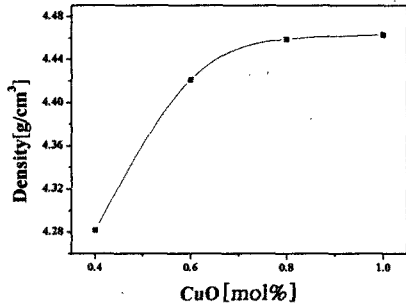


그림 1. CuO첨가량에 따른 시편의 밀도

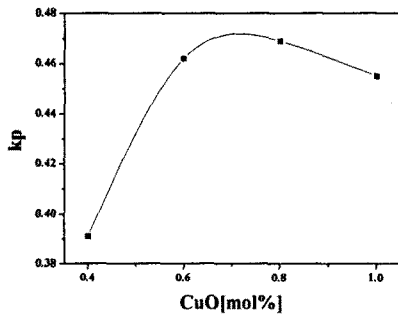


그림 2. CuO첨가량에 따른 시편의 전기기계결합계수

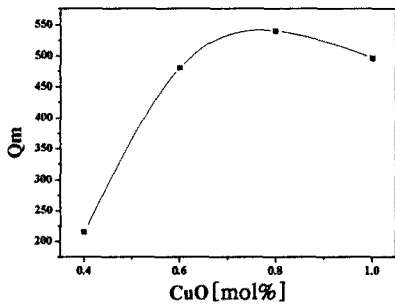


그림 3. CuO첨가량에 따른 시편의 기계적품질계수

그림 2,3은 CuO첨가량에 따른 시편의 전기기계결합계수와 기계적품질계수를 나타낸 것이다. CuO첨가량이 0.8mol%일 때 시편의 전기기계결합계수와 기계적품질계수는 0.469와 540으로 최대값을 나타내었고 그 이후에 감소하였다. 밀도의 경향과 비슷한 결과로 소결성의 증가 및 CuO 치환에 따른 특성의 개선으로 사료된다.

그림 4,5는 CuO첨가량에 따른 시편의 유전 및 압전특성을 나타낸 것이다. 유전 및 압전상수는 CuO첨가량이 0mol%일 때 503, 87.3pC/N으로 최대값을 나타내었으며, CuO첨가량에 따라 감소하였다.

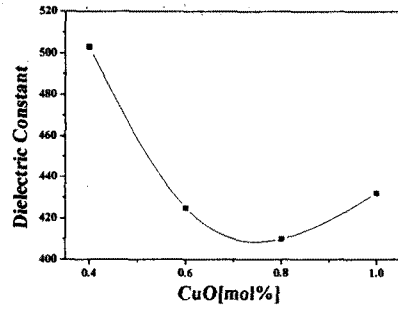


그림 4. CuO첨가량에 따른 시편의 유전상수

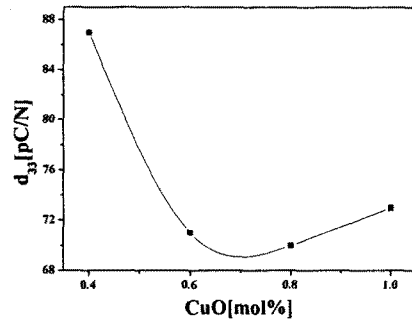


그림 5. CuO첨가량에 따른 시편의 압전상수

#### 4. 결론

본 연구에서는 PZT계 압전세라믹스를 대체할 우수한 특성을 나타내는 무연압전세라믹스 개발하기 위해 비화학양론적 (Na,K)NbO<sub>3</sub>계 조성세라믹스에 CuO를 첨가하여 CuO첨가량에 따른 유전 및 압전특성을 관찰하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. CuO의 첨가량은 소결성을 증가시켰으며 유전 및 압전특성을 개선시켰다.
2. CuO첨가량이 0.8mol%일 때, 밀도=4.459g/cm<sup>3</sup>, 전기기계결합계수kp=0.469, 기계적 품질계수Qm=540, 유전상수 및 압전상수=410, 69.57pC/N으로 최적의 조건을 나타내었다.

#### 참고 문헌

- [1] J Yoo, K Lee, K Chung, S Lee, K Kim, J Hong, S Ryu and C Lhee, "Piezoelectric and Dielectric Properties of (LiNaK)(NbTaSb)O<sub>3</sub> Ceramics with Variation in poling Temperature", JJAP, Vol. 45, No.9B, p. 7444, 2006
- [2] W. J. Moore, "Seven Solid States", W. A. Benjamin, Inc., Amsterdam, New York, 1967, pp. 144~146.