

PSN-PZT재료의 압전 및 유전특성에 미치는 Sr치환효과와 온도특성

조정애, 이정수

PZT계압전사기재료의 여러가지 조성점에서 Sr치환이 유전 및 압전특성에 주는 영향에 대해서는 많이 연구되었다.[2] 한편 PSN-PZT계압전사기재료에 NiO, MnO₂과 같은 산화물을 첨가하거나 소결분위기를 조절하고 가열압착성형하는 등 제조공정기술을 개선하는 방법으로 각이한 전기-력학-음향변환기용압전소자들이 실현되고 응용되었다.[1, 3-5] 그러나 PSN-PZT계압전사기재료의 압전 및 유전특성에 주는 Sr의 치환효과와 온도변화에 대해서는 많이 고찰되지 못하였다.

우리는 $x\text{Pb}_{1-u}\text{Sr}_u(\text{Sb}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3-y\text{PbTiO}_3-z\text{PbZrO}_3$ (PSN-PZT)재료의 Sr치환량에 따르는 압전 및 유전특성과 온도특성을 고찰하였다.

실험 방법

시편준비 $x\text{Pb}_{1-u}\text{Sr}_u(\text{Sb}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3-y\text{PbTiO}_3-z\text{PbZrO}_3$ 에서 조성점선택은 $u=0\sim 0.2$, $x=0.02$, $y=0.42\sim 0.475$, $z=0.54\sim 0.505$ 로 하였으며 출발원료로는 PbO(99%), ZrO₂(99.5%), TiO₂(99%), SrCO₃(99%), Sb₂O₃(99.9%), Nb₂O₅(99.5%)을 리용하였다.

재료의 조성몰비에 따라 80°C의 항온건조로에서 충분히 건조한 원료들을 질량비로 환산하여 1/1 000의 정확도를 가진 전자천평(《FX-300》)에서 평량하였다. 최종시료 100g에 해당하는 출발원료들의 조성몰비에 따르는 질량값은 PbO 64.899g(3mol% 고려), ZrO₂ 21.076g, TiO₂ 11.132g, SrCO₃ 4.676g, Sb₂O₃ 0.462g, Nb₂O₅ 0.421g이다.

평량한 시료와 불알, 증류수를 1 : 1.5 : 0.6으로 볼통에 넣고 12h동안 혼합 및 분쇄한 후 직경 66mm의 형타에서 70MPa로 량면압착하였다. 성형체를 200~250°C/h로 850°C에서 2h, 900°C에서 3h동안 가열하여 합성하였다. 합성된 시료를 거친분쇄하고 시료 : 불알 : 증류수=1 : 1.5 : 0.35~0.4로 24h동안 볼밀분쇄하였다. 분쇄된 분말립도는 1.5~1.9μm정도였다.

우선 압전재료의 특성을 평가하기 위한 시험시편을 제작하였다. 위에서 만든 합성분말을 70μm채로 치고 여기에 5질량% PVA용액을 6질량% 되게 섞은 다음 400μm채로 쳐서 알빚기하고 알빚기한 시료를 직경 22mm, 두께 1.5mm 되게 100MPa의 압력으로 량면압착성형하고 1 270~1 290°C에서 소결하였다.

다음으로 소결된 시편을 두께 1mm로 평면연마한 후 밀도를 측정하고 표면을 초음파 세척기에서 깨끗이 세척하였다. 건조시킨 다음 채인쇄법으로 시험시편의 량면에 은전극을 입힌 후 750°C에서 15min동안 유지하였다. 150°C의 규소유속에서 시험시편에 2.8kV/mm의 직류전기마당을 걸어주면서 10min동안 유지하였다.

측정 먼저 분극한 시편을 방안온도에서 12h 경과한 후 공진-반공진법에 기초하여 시험시편의 공진주파수($f_{\text{공}}$), 반공진주파수($f_{\text{반}}$), 2차공진주파수($f_{2\text{공}}$), 공진저항($R_{\text{공}}$), 용량(C)을 주

파수직시기(《LBO-115M》), 휘스톤다리(《MWH-91》), LRC계(《KC-530》)로 측정하고 다음의 식으로 압전 및 유전특성(k_p , ε , Q_m , σ)을 평가하였다.

다음 70°C에서 24h, 20°C에서 24h 경과한 후 -20~80°C에서 10°C의 간격으로 매 온도에서 30min씩 유지하면서 온도에 따르는 전기력학결합계수, 유전률의 변화률을 평가하였다.

결과 및 분석

PSN-PZT재료의 Sr치환량에 따르는 압전 및 유전특성은 표와 같다. 시편번호 1-6은 Sr함량이 0, 10, 15, 18, 19, 20mol%인 경우이다.

표. PSN-PZT재료의 Sr치환량에 따르는 압전 및 유전특성

시편번호	x	y	z	$\rho/(g \cdot cm^{-3})$	k_p	ε	Q_m	σ
1	0.02	0.475	0.51	7.865	0.758	1 730	56	0.34
2	0.02	0.44	0.54	7.629	0.766	2 940	48	0.30
3	0.02	0.43	0.55	7.442	0.613	3 050	47	0.34
4	0.02	0.43	0.55	7.407	0.532	3 400	50	0.37
5	0.02	0.42	0.56	7.368	0.563	3 890	52	0.37
6	0.02	0.42	0.56	7.335	0.292	3 870	67	0.34

표에서 보는바와 같이 Sr치환량이 증가함에 따라 ρ 와 k_p 는 점차 감소하고 ε 은 증가하다가 약간 감소하는 경향을 나타내며 k_p 는 Sr치환량이 20mol%일 때 급격히 떨어진다. Q_m 은 Sr치환량이 20mol%일 때 최대값을 나타내지만 Sr치환량에 따르는 현저한 차이는 없다. σ 는 Sr치환량이 18, 19mol%일 때 최대값을, 10mol%일 때 최소값을 나타낸다.

온도에 따르는 전기력학결합계수와 유전률의 변화률은 그림과 같다.

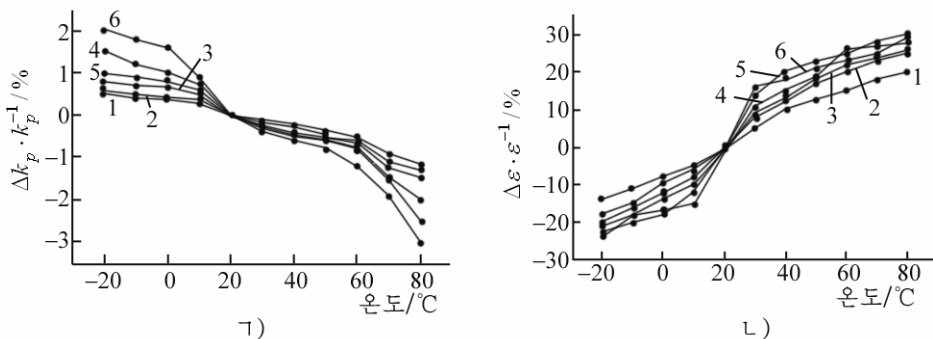


그림. 온도에 따르는 전기력학결합계수(㉠)와 유전률(㉡)의 변화률
1-6은 표에서의 시편번호와 같음

그림에서 보는바와 같이 전기력학결합계수의 변화률은 10~50°C에서 5%이하이며 Sr치환량에는 거의 무관계하다. 그러나 -20~10°C에서는 Sr치환량이 15mol%일 때 0.5~0.8%정도이며 18, 19mol%일 때에는 1~2%정도이다. 한편 50°C이상에서는 Sr치환량이 0, 10, 15mol%일 때 -1.2~-1.5%정도이며 Sr치환량이 18, 19, 20mol%일 때 -2~-3%정도이다.

한편 유전률변화률은 Sr를 치환하지 않았을 때 -20~80°C에서 거의 선형적으로 -14~20%로 증가하며 Sr치환량이 증가됨에 따라 -20~20°C에서 -18~-21%, 20~80°C에서 25~30%정도로 된다.

압전 및 유전특성이 온도에 따라 변화되는것은 주로 사기결정의 미세구조와 도메인의 구조, 도메인의 운동, 공간전하의 발생 등과 관련된다고 본다.

맺는 말

$x\text{Pb}_{1-u}\text{Sr}_u(\text{Sb}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3-y\text{PbTiO}_3-z\text{PbZrO}_3$ (PSN-PZT)재료는 Sr치환량이 10mol%일 때 $k_p=0.766$, 19mol%일 때 $\varepsilon=3\ 890$, 20mol%일 때 $Q_m=67$ 로서 최대값을 가진다. 그러므로 Sr치환량을 조절하여 요구되는 임의의 압전 및 유전특성을 얻을수 있다.

참고 문헌

- [1] 조정에 등; 전국과학토론회논문집(물리, 원자력), 김일성종합대학출판사, 107, 주체100(2011).
- [2] I. Dutta et al.; *Ferroelectrics*, **393**, 71, 2009.
- [3] H. Ohuchi et al.; *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34**, 5298, 1995.
- [4] R. Zhang et al.; *Ceramics International*, **33**, 199, 2009.
- [5] K. Oka et al.; *e-J. Surf. Sic. Nanotech.*, **12**, 40, 2014.

주체106(2017)년 12월 5일 원고접수

Sr Substitution Effect on Piezoelectric and Dielectric Properties of PSN-PZT Material and Its Temperature Characteristics

Jo Jong Ae, Ri Jong Su

We studied the electric and temperature variation characteristics of $x\text{Pb}_{1-u}\text{Sr}_u(\text{Sb}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3-y\text{PbTiO}_3-z\text{PbZrO}_3$ (PSN-PZT) material that Sr was substituted. When 10mol% of Sr was substituted, $k_p=0.766$, 19mol% of Sr, $\varepsilon=3\ 890$ and 20mol% of Sr, $Q_m=67$.

According to increase of substituted Sr amount, $\Delta k_p/k_p$ and $\Delta\varepsilon/\varepsilon$ at -20°C are 0.5~2% and $-14\sim-21\%$, at 80°C $-1.2\sim-3\%$ and $20\sim30\%$, respectively. Thus the temperature stabilization is decreased.

Key words: PZT, piezoelectric, dielectric properties, substitution