

Pb(Sc_{1/2}Nb_{1/2})O₃-PbTiO₃계 세라믹스의 강유전성
Ferroelectricity of the Pb(Sc_{1/2}Nb_{1/2})O₃-PbTiO₃ based Ceramics

김진수	교원대학교	기술교육과
김소정	KAIST	재료공학과
김호기	KAIST	재료공학과
이덕출	인하대학교	전기공학과

Jin-Soo Kim, Dept. of Technology Ed., Korea Nat'l Univ. of Ed.
So-Jung Kim, Dept. of Mat, Sci. and Eng., KAIST
Ho-Gi Kim, Dept. of Mat, Sci. and Eng., KAIST
Deok-Chool Lee, Dept. of Electrical Eng., Inha Univ.

Abstract

High-power piezoelectric materials are being developed for applications such as actuators and ultrasonic motors. In this paper, ferroelectric property of iron-doped 0.57 Pb(Sc_{1/2}Nb_{1/2})O₃-0.43 PbTiO₃, which is the morphotropic phase boundary composition for the PSN-PT system, was investigated. The maximum dielectric constant ($\epsilon_{33}/\epsilon_0 = 2551$) and the minimum dielectric loss ($\tan \delta = 0.51\%$) at room temperature were obtained at 01. wt% and 0.3 wt% of iron additions. With additions of the Fe₂O₃ the electromechanical coupling factor of radial mode k_p and the piezoelectric coefficient d_{33} were slightly decreased, on the other hand the mechanical quality factor was increased significantly. The highest mechanical quality factor ($Q_m = 297$) was obtained at 0.3 wt% Fe₂O₃, which is 4.4 times larger than that of pure 0.57 PSN-0.43PT ceramics. The temperature dependence of the dielectric constant and dielectric loss was observed between 20°C and 350°C.

1. 서 론

2성분계 세라믹스 중에서
Pb(Sc_{1/2}Nb_{1/2})O₃-PbTiO₃(이하 PSN-PT라 함)에
대한 연구는 세계적으로도 몇 편 안되는 논문만

이 발표되었다.

우선 PSN 세라믹스는 큐리 온도가 90°C 정도인 relaxor재료라는 것이 구 소련의 Smolenskii 등에 의하여 1959년에 발표되었고[1], 10년 후쯤

V.J.Tennery등은 처음으로 PSN-PT 2성분계 고용체에 관한 연구 논문을 발표하였다[2]. 이 논문에서 그는 MPB 조성이 되는 순수한 0.575PSN-0.425PT 재료에서 전기기계결합계수 k_p 가 46%인 것으로 발표하였다.

그 후 1993년에 Y.Yamashita에 의하여 PSN-PT에 Nb_2O_5 의 도너와 Sc_2O_3 의 억셉터를 첨가한 연구 결과를 발표하였는데, 전기기계결합계수는 67%, 기계적 품질계수는 70 정도로 나타났다[3, 4]. 그리고 1994년에 M.Adachi등은 MPB 조성인 0.575PSN - 0.425PT에서 전기기계결합계수가 51%인 결과를 발표하였다[5].

이와 같이 PSN-PT 2성분계 조성에 관한 연구는 매우 미진한 실정이므로 특히 본 연구에서는 억셉터의 일종인 Fe_2O_3 를 0.57PSN - 0.43PT 조성에 첨가하여 첨가량에 따른 유전 및 압전 특성에 관한 강유전성을 측정하였다.

2. 실험

본 실험에서 시편제조를 위하여 사용한 출발 원료로서는 PbO , Sc_2O_3 , Nb_2O_5 , TiO_2 이며 0.57PSN - 0.43PT 조성이 되도록 함과 동시에, Fe_2O_3 를 0.1, 0.3, 0.5, 0.7, 0.9 wt%만큼 첨가하여 6가지 종류의 시료를 준비하였다. 시편 제조 공정은 일반적인 고상반응법에 의하여 원료를 weighing하여 24시간 이상 잘 mixing한 후, 건조시켜서 850°C의 온도로 calcining하였다. 하소된 분말은 잘 분쇄하여 PVA binder를 5wt% 첨가하여, 1 ton/cm²의 압력으로 forming 하였다. 결합체의 burn-out 온도는 600°C에서 2시간이고, 시편의 soaking time은 1250°C에서 3시간이 되도록 sintering하여 시편을 얻었다. 시편 양면을 잘 lapping한 후, 650°C에서 silver paste가 잘 부착되도록 전극을 형성한 후, $E_p = 2.5kv/mm$, $E_T = 120^\circ C$, $E_t = 10mm$ 의 조건에서 직류전계를

가하여 poling한 후, 강유전 특성을 측정하였다.

유전 상수와 유전 손실은 LCR meter(SR715)로 측정하였고, 유전 특성의 온도 의존성을 알아보기 위하여 20°C에서 350°C 범위에 걸쳐 주파수 변화를 가하면서 측정하였다.

압전 특성을 측정하기 위하여 impedance/gain-phase analyzer(HP4194A)를 사용하였고, 강유전 특성 곡선을 알아보기 위하여 고전압 DC증폭기, lock-in amplifier, IBM PC 등을 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

2성분계의 PSN-PT 세라믹스는 Tennery 등의 연구 결과에 의하면 (1-x)PSN -xPT조성의 상도를 그림 1에 나타낸다. 본 연구에서는 그림에서의 MPB 영역의 조성이 되도록 0.57PSN-0.43PT + xwt% Fe_2O_3 (x=0, 0.1, 0.3, 0.5, 0.7, 0.9)시료에 대하여 연구하였다.

우선 Fe_2O_3 첨가량에 따른 0.57PSN - 0.43PT 시료의 유전상수와 유전손실 특성을 그림 2에 나타낸다.

Fe_2O_3 가 첨가된 0.57PSN - 0.43PT의 모든 시편에서 분극후의 유전손실 값은 0.7% 이하가 되었으며, 특히 0.3wt% Fe_2O_3 가 첨가된 경우 0.51%의 매우 적은 유전손실 값을 나타내고 있다[6].

그림 3은 상온부터 350°C 범위까지 온도를 변화시키며 주파수를 4가지 경우로 바꾸면서 측정된 유전상수의 온도 의존성을 나타낸 것이다.

순수한 0.57PSN - 0.43PT 시편의 상전이 큐리 온도는 271.5°C가 되었으며, 이 때의 최대 유전상수 값은 32680으로 나타났다.

Fe_2O_3 가 첨가된 시편에서 측정주파수가 증가할수록 유전상수가 감소하고 있는 전형적인 강유전 특성을 나타내고 있다[7].

그림 4는 시편의 P-E 히스테리시스 루프를 나타낸 것인데, 주파수 1.0Hz에서 충분한 분극 포화가 일어나는 조건하에서 측정하였다. 이 그림에서 잔류분극 Pr값은 Fe_2O_3 의 첨가량이 증가함에 따라 점차로 감소하고 있음을 알 수 있으며, 항전계 E_C 값은 약간 증가하는 것으로 나타났다.

그리고 공진-반공진 특성 곡선에서 구한 전기기계결합계수 k_p, k_t 값과 기계적 품질계수 Q_m 값은 그림 5에 나타났다[8,9].

경방향의 전기기계결합계수 k_p 는 최대 57.5%가 되었고, 기계적품질계수 Q_m 값은 0.3wt%의 Fe_2O_3 가 첨가된 시편에서 최대 297로 나타났는데, 이는 순수한 0.57PSN-0.43PT의 Q_m 값보다 4.4배 정도 증가한 것이다.

4. 결 론

본 연구에서는 0.57PSN - 0.43PT + xwt% Fe_2O_3 (x=0 ~ 0.9)시편의 강유전성에 대하여 연구한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 상온에서의 유전상수값은 0.1wt% Fe_2O_3 가 첨가된 시편에서 2551이 되었고, 유전 손실값은 0.3wt% Fe_2O_3 가 첨가된 시편에서 0.51%로 매우 낮게 나타났다.

(2) 본 연구의 조성을 갖는 시편의 큐리 온도는 271.5°C이며, 측정주파수가 증가함에 따라 유전상수는 감소하였다.

(3) 시편의 잔류분극 값은 Fe_2O_3 가 증가함에 따라 감소하였고, 항전계 값은 약간 증가하였다.

(4) 기계적품질계수값은 0.3wt%의 Fe_2O_3 가 첨가되었을 때 297이 되었고, 전기기계결합계수값 k_p 는 57.7%가 되었다.

(5) 압전 계수 d_{33} 값은 390 ~ 282 pC/N 범위로 Fe_2O_3 가 증가할수록 감소하였다.

참 고 문 헌

1. G.A. Smolenskii et al, Soviet phys. - solid state, 1,1, 150-151. 1959
2. V.J. Tennery et al, J. Am. Ceram. Soc., 51, 12, 671-674, 1968
3. Y.Yamashita, Jpn. J. Appl. Phys., 32, 11A, 5036-5040, 1993
4. Y.Yamashita, Jpn. J. Appl. Phys., 33, 8, 4652-4656, 1994
5. M. adachi et al, Jpn. J. Appl. Phys., 33, 9B, 5420-5422, 1994
6. X. Wang et al, Ferroelectrics, 154, 307-312, 1994
7. W.R. Xue et al., Proc. of IEEE, 101-104, 1995
8. S. Takahashi et al, Jpn. J. Appl. Phys., 32, 5B, 2422-2425, 1993
9. J.S.Kim et al, 9th Int'l Mtg on Ferroelectricity, Aug, 24-29, Seoul, p.54, 1997

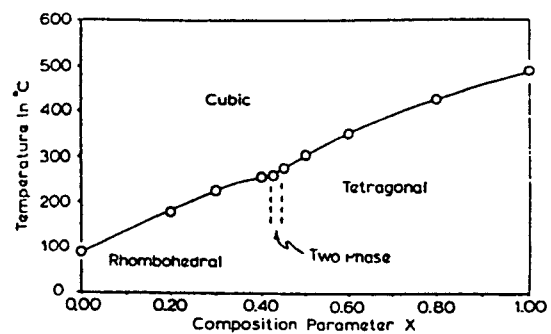


Fig.1 Phase transition temperature vs. x for the $(1-x)Pb(SC_{1.2}Nb_{1.2})O_3-xPbTiO_3$ system.

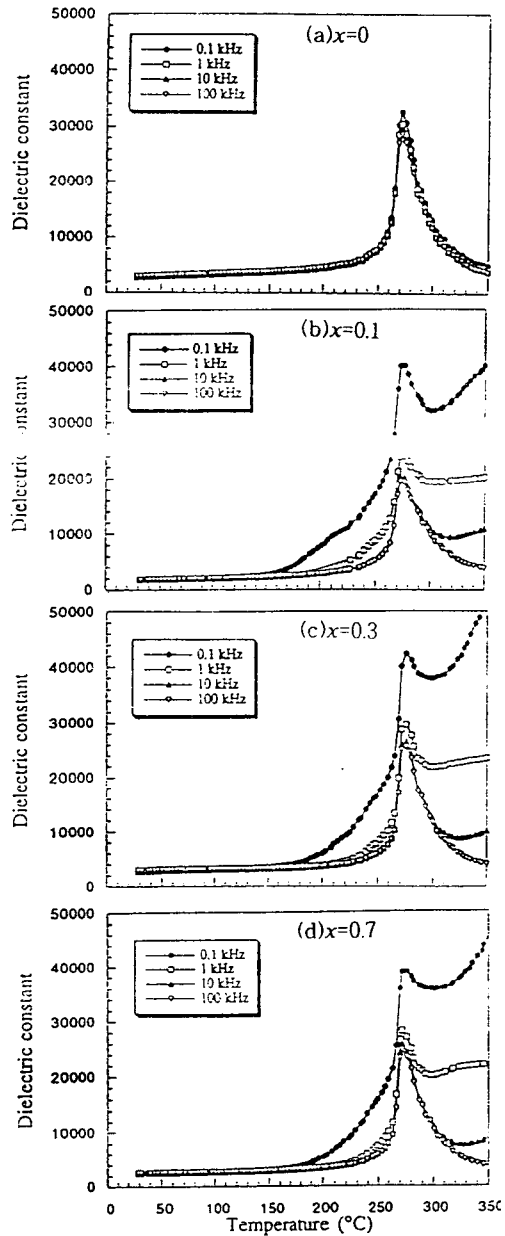


Fig.3 Temperature dependence of the dielectric constant as a function of Fe_2O_3 in 0.57 PSN-0.43PT+ x wt% Fe_2O_3 samples. Samples are being measured while being heated to 350 $^{\circ}\text{C}$.

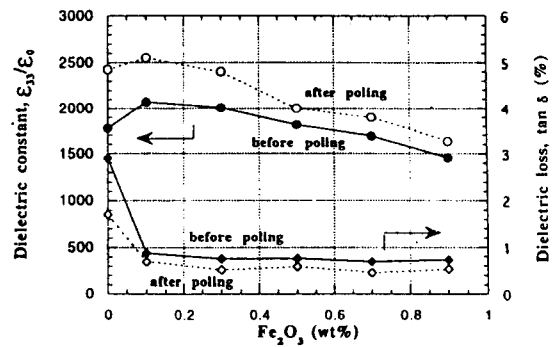


Fig.2 Dielectric constant and dielectric loss before and after poling of 0.57PSN-0.43PT ceramics as a function of Fe_2O_3 additions.

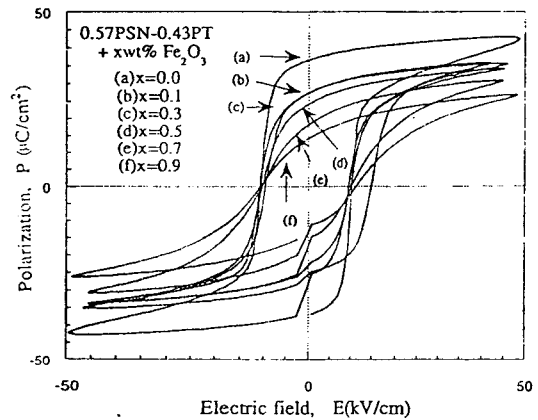


Fig.4 P-E hysteresis loops of 0.57PSN-0.43PT+ x wt% Fe_2O_3 samples at room temperature at 1.0 Hz.

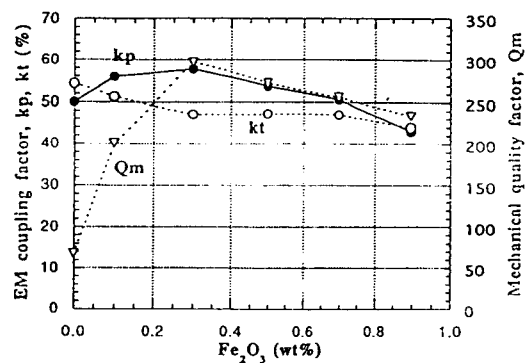


Fig.5 Electromechanical coupling factor k_p , k_t and mechanical quality factor Q_m of 0.57PSN-0.43PT ceramics as a function of Fe_2O_3 additions.