

## 소결조건에 따른 $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$ 이종층 후막의 유전특성

이성갑, 이종덕\*, 박상만\*  
경상대학교, \*서남대학교

### Dielectric Properties of $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$ Heterolayered Thick Films with Variation of Sintering Conditions

Sung-gap Lee, Jong-deok Lee\*, Sang-man Park\*  
Gyeongsang Univ. \*Seonam Univ.

**Abstract :** PZT(20/80) and PZT(80/20) powders, prepared by the sol-gel method, were mixed with an organic vehicle and the PZT(20/80)/PZT(80/20) heterolayered thick films were fabricated by the screen-printing method on Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> substrates. The structural properties such as DTA, X-ray diffraction and microstructure, were examined as a amount of the excess PbO. In the DTA analysis, the formation of the polycrystalline perovskite phase was observed at around 880°C. The average thickness of the PZT heterolayered thick films was approximately 80µm.

**Key Words :** PZT ceramics, thick films, screen-printing method, structural properties

#### 1. 서론

ABO<sub>3</sub>의 페로브스카이트 결정구조를 갖는 강유전성  $Pb(Zr,Ti)O_3$ (PZT) 세라믹은 Zr/Ti의 조성비에 따른 다양한 전자기적 특성, 불순물 첨가에 의한 특성의 제어 및 온도 변화에 따른 전기적 특성의 안정성 등의 장점에 의해 압전변환소자, 초음파 진동자, 초전형 적외선 센서, 고전압 발생기 및 반도체의 기억소자와 같은 다양한 분야로의 응용을 위해 연구 개발되고 있는 재료이다[1,2].

최근 강유전성 PZT 물질의 응용 분야가 민생용품은 물론 의료, 군사 및 정보통신으로 확대됨에 따라 시편의 구조도 벌크형으로부터 후막, 박막분야로 확대되었다. 그러나 현재 후막재료에 대한 연구는 응용분야의 다양성 및 실용화의 가능성, 용이한 제조공정 그리고 박막에서 얻을 수 없는 다양한 특성의 구현 등과 같은 많은 장점에도 불구하고 국내외적으로 일부에서만 진행되고 있다[3].

본 연구에서는 강유전성 PZT(20/80) 세라믹과 PZT(80/20) 세라믹을 반복하여 4회 적층시킨 이종층 구조의 PZT 후막을 스크린 프린팅법으로 제작하였다. 시편 소결 시 PbO의 휘발을 보상하기 위해 과잉 PbO를 첨가하였으며, 첨가량에 따른 PZT 후막의 구조적, 전기적 특성을 조사하였다.

#### 2. 실험

본 실험에서 사용된 시편의 화학 조성식은  $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$  ( $x=0.2, 0.8$ ) 이며, 먼저 출발 물질로 Pb acetate trihydrate, Zr propoxide 그리고 Ti iso-propoxide를, 그리고 용매로 2-methoxyethanol(2-MOE)을 사용하여 솔-젤법으로 분말을 합성하였다. Pb 아세테이트를 90°C에서 2-MOE에 완전 용해시킨 후, 다시 120°C로 가열하여 수분을 제거하였다. 그후 60°C로 냉각시켰으며, 2-MOE에 용해시킨 Zr-과 Ti iso-propoxide를 첨가하였다. 이 혼합 용액에

안정화와 가수분해를 위해 각각 2-MOE와 H<sub>2</sub>O를 첨가하였다. 질화된 시료를 100°C에서 완전 건조시켰으며, 850°C에서 2시간 동안 하소처리를 행하였다. 하소된 시료에 대해 알콜을 분산매로 24시간 동안 불밀하여 미분쇄시킨 후, 유기 vehicle(Ferro B75001)과 혼합하여 스크린 프린트 용 페이스트를 제작하였다. 기판으로는 99.0%의 고순도 알루미늄을 사용하였으며, 하부 전극은 Pt 페이스트를 1450°C에서 20분간 열처리하여 형성시켰다. PZT(20/80)/PZT(80/20) 이종층 후막은 #200의 스크린 망을 이용하여 스크린 프린팅법으로 상호 교대로 4회 반복하여 제작하였으며, 소결온도 및 시간을 각각 1050°C, 2시간으로 하여 소결하였다. 이때 시편 소결시 발생하는 PbO의 휘발을 보상하기 위해 시편 내에 과잉 PbO를 0~10wt%를 첨가하였으며, 상부전극으로는 Ag 페이스트를 850°C에서 30분동안 열처리하여 형성시켰다. 이와 같은 공정으로 제작된 PZT(20/80)/PZT(80/20) 이종층 후막의 구조적, 유전적 특성에 대해 과잉 PbO의 첨가량이 미치는 영향에 대해 조사하였다.

#### 3. 결과 및 검토

그림 1은 솔-젤법으로 제작한 PZT(20/80) 분말과 PZT(80/20) 분말의 DTA 열분석 결과를 나타낸 것이다. 약 250°C 부근에서의 흡열피크는 수분과 유기 용매의 휘발에 기인한 것이며, 270°C에서 350°C사이의 유기 잔류물과 아세테이트계의 연소에 기인한 피크로 사료된다. PZT(20/80) 분말의 경우 약 490°C 부근에서 작고 급격한 흡열 피크를 나타내었으며, 이는 PbO와 TiO<sub>2</sub>와의 반응에 기인한 것으로 사료된다. 그러나 PZT(80/20) 분말의 경우에는 이러한 피크가 약 500°C 이상으로 확대되어 완만한 변화를 나타내었으며, 이는 일반적으로 PZT 세라믹의 경우 Zr의 조성비가 증가함에 따라 반응온도가 증가하는 특성과 잘 일치하고 있다. 그리고 약 880°C 부근에서 발열피크가 관찰되

었으며, 이는 다결정성 페로브스카이트상의 형성에 기인한 것으로 사료된다.

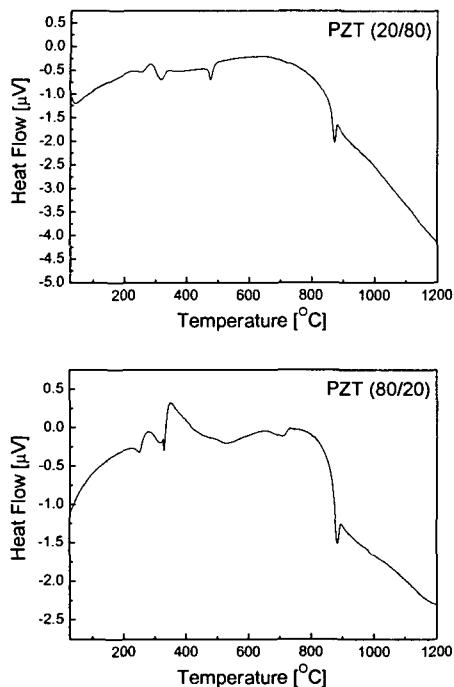


그림 1. PZT(20/80) 분말과 PZT(80/20) 분말의 DTA 곡선.

그림 2는 과잉 PbO의 첨가량에 따른 PZT(20/80)/PZT(80/20) 이중층 후막의 표면과 단면 미세구조를 나타낸 것이다. 시편내 과잉 PbO의 첨가량에 따른 치밀화 현상은 큰 영향을 받지 않은 것으로 관찰되었다. 그러나 표면의 미세구조에서 나타난 바와 같이 과잉 PbO의 첨가량이 증가할수록 표면에 액상 PbO의 분포가 증가하는 것을 알 수 있으며, 결정립의 형태는 점차 원형을 나타내었다. 4회 반복 코팅한 시편의 평균 두께는 약 80 $\mu$ m를 나타내었으며, 평균 결정립의 크기는 약 1.8 $\mu$ m이었다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 강유전성 PbTiO<sub>3</sub> 세라믹과 PZT(52/48) 세라믹을 반복하여 적층시킨 이중층 구조의 PZT 후막을 스크린 프린팅법으로 제작하였으며, 시편 소결시 PbO의 휘발에 따른 영향을 제어하기 위해 PbO flux 물질을 첨가하여, PZT 후막의 구조적 특성에 미치는 영향에 대해 조사하였다. PbO flux의 첨가량이 증가함에 따라 평균 결정립의 크기는 증가 및 치밀화 되는 경향을 나타내었다. X-선 회절분석결과 PZT(52/48) 후막의 경우 정방정계상과 면체정계상이 혼재하는 전형적인 조성변태 상경계상의 피크를 나타내었다.

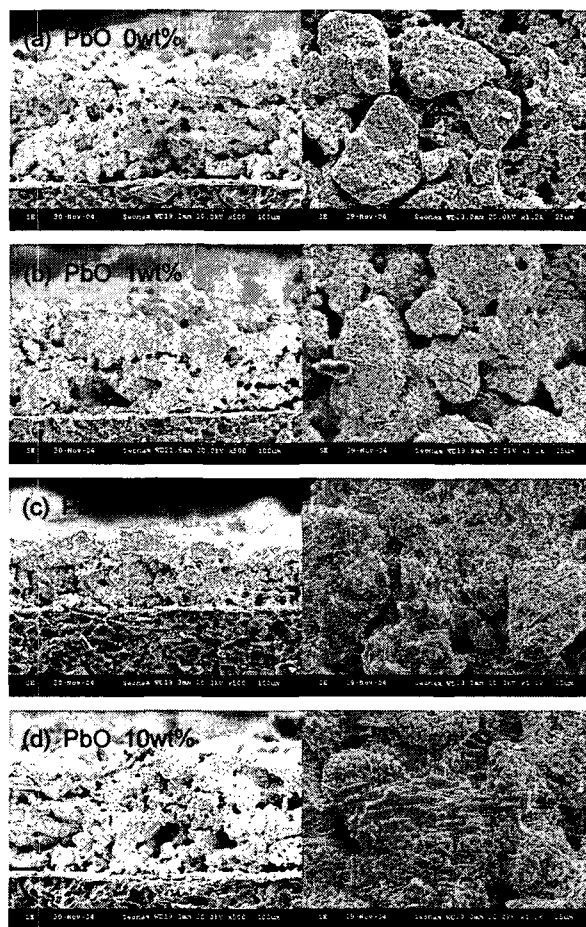


그림 2. 과잉 PbO 첨가량에 따른 PZT(20/80)/PZT(80/20) 이중층 후막의 표면 및 단면구조.

#### 감사의 글

본 연구는 산업자원부의 지원에 의하여 기초전력연구원(R-2004-B-124) 주관으로 수행된 과제임.

#### 참고 문헌

- [1] D. Y. Jeong, S. Zhang, and H. B. Hwang, J. Korean Phys. Soc., Vol. 44, No. 6, p. 1531, 2004.
- [2] K. J. Lim, J. Y. Park, J. S. Lee, S. H. Kang, and H. H. Kim, Trans. EEM, Vol. 5, No. 2, p. 76, 2004.
- [3] V. Walter, P. Delobelle, P. L. Moal, E. Joseph, and M. Collet, Sensors and Actuators A, Vol. 96, p. 157, 2002.