

볼밀링 시간이 저온소결 PMN-PZN-PZT 세라믹스의 압전특성에 미치는 영향

이일하, 이갑수, 류주현, 정영호*

세명대학교, 한국전력*

Effect of Ball Milling Time on the Piezoelectric Characteristics of Low Temperature Sintering PMN-PZN-PZT ceramics

Ilha Lee, kabsoo Lee, Juhyun Yoo, Youngho Jeong*

Semyung Univ., KEPCO*

Abstract : In this study, in order to develop low temperature sintering ceramics for multilayer piezoelectric actuator application. At the PMN-PZN-PZT ceramics, the influence of the ball-mill time on piezoelectric characteristics was investigated. All the specimens improved according to the increase of the ball-mill time increase. The specimen showed the optimum value when ball-mill time is 60 hour. Their optimum values were density=7.93g/m³, ε_r=1371, k_p=0.551, Q_m=1609, d₃₃=321pC/N, respectively.

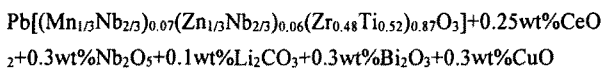
Key Words : ball milling time, low temperature sintering

1. 서 론

현재 세라믹 기술의 발전으로 압전체를 이용한 압전 디바이스의 연구가 활발히 이루어 지고 있다. 특히 압전 액추에이터 및 초음파진동자의 응용범위가 넓어짐에 따라 변위량 응력등을 개선시키기 위해 전기기계결합계수 및 압전 d상수가 큰 재료가 요구되고 있으며 초음파진동자나 압전 모터와 같이 마찰에 의한 열손실이 많은 액추에이터에 적용할 큰 기계적 품질계수를 가지는 저손실 재료가 필요한 실정이다. 그러므로 손실이 적고, 저온소결 할 수 있는 압전세라믹스의 조성개발이 시급하다. 밀링의 방법에는 지르코니아볼을 사용하여 볼밀하는 방법과 어트리션 밀링방법 등이 있다. 밀링은 파우더를 혼합분쇄하기 위해서 하는데 밀링의 방법에 따라 시편의 분쇄 정도와 특성에 미치는 영향이 다르다. 밀링을 통하여 파우더의 입경이 작아지고 비표면적이 커져서 소결성이 개선된다. 이번 연구에서는 적층 압전 액추에이터에 적용할 손실이 적고, 소결온도가 낮은 압전세라믹스를 개발하기 위해서 PMN-PZN-PZT 조성을 가지고 볼밀링 시간이 유전 및 압전 특성에 어떠한 영향을 미치는지 조사하였다.

2. 실험

본 실험에서는 다음과 같은 조성식을 사용하여 실험하였다.



조성에 따라 PbO를 제외한 MnO₂, Nb₂O₅, ZnO₂, ZrO₂, TiO₂, CeO₂의 조성을 10⁻⁴g까지 평량하여 24시간 볼밀하였다. 건조된 혼합시료를 1100℃에서 4시간 하소하였으며, 하소된 시료에 PbO를 평량에 따라 첨가하여 볼밀한 뒤 750℃에서 2시간 하소하였다. 하소된 시료에 Li₂CO₃, Bi₂O₃, CuO를 소결제로 첨가하여 다시 볼밀하였다. 건조된

혼합시료를 0.5wt%의 바인더를 첨가하여 21mmφ물더를 사용하여 1ton/cm²의 압력으로 성형하였다. 특성측정을 위해 시편에 전극을 소부한 후 120℃실리콘유에서 30kV/cm의 전계를 가해 30분간 분극 하였다. 분극된 시편을 24시간 후 측정하였다. Impedance analyzer (Agilent 4294)를 이용하여, 주파수 및 impedance 특성을 측정하였고, LCR meter(ANDO AG4304)를 사용하여 유전특성을 측정하였다. 시편의 유전 및 압전 특성은 IEEE에서 규정에 따라 공진 반공진법을 이용하여 계산하였으며, 시편의 결정구조는 XRD (X-ray Diffraction)를 이용하여 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

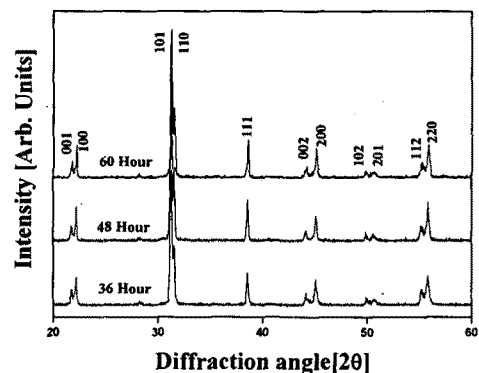


그림 1. 볼밀링 시간에 따른 X선 회절 패턴

그림 1은 밀링시간에 따른 X선 회절 패턴을 나타내고 있다. 모든 시편은 tetragonal phase를 보였으며, 이차상이 없는 순수한 페로브스카이트 구조를 나타내었다.

그림 2는 볼밀링 시간에 따른 시편의 밀도를 나타내고 있다. 밀링시간 증가에 따라 밀도는 증가하였다. 밀링시간이 60시간 일 때 시편의 밀도가 가장 높았고, 그 값은 7.93g/m³이다. 밀링시간의 증가는 파우더의 입경을 더 작

게 만들어 비표면적을 증가시키고 이로 인해 소결성이 좋아져서 밀도가 증가한 것으로 사료된다.

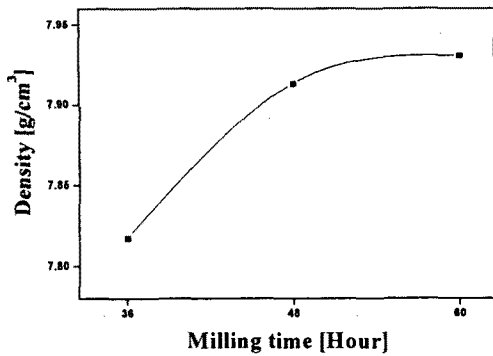


그림 2. 불밀링 시간에 따른 시편의 밀도

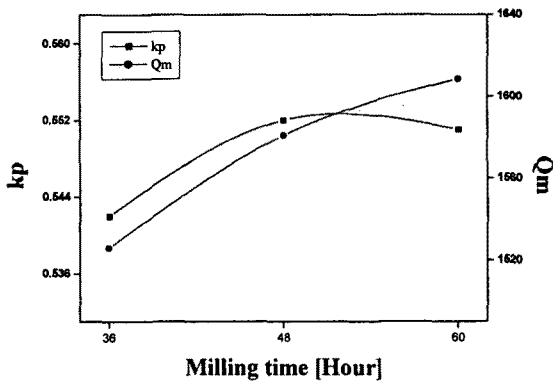


그림 3. 불밀링 시간에 따른 시편의 kp 및 Qm

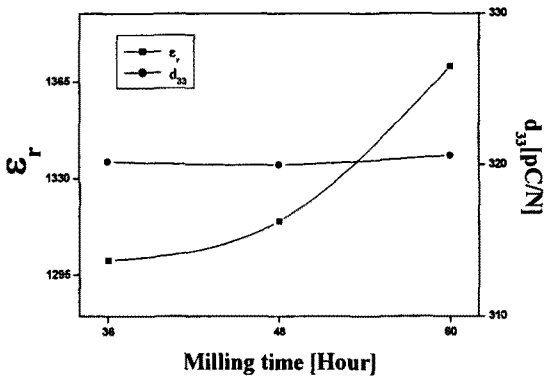


그림 4. 불밀링 시간에 따른 시편의 유전상수 및 압전 d상수

그림 3은 불밀링 시간에 따른 시편의 전기기계결합계수(kp)와 기계적품질계수(Qm)를 나타내고 있다. kp는 밀링시간이 48시간 일 때까지 올라가다가 이 후 감소함을 보였다. 하지만 그 감소폭이 매우 작았다. 반면에 Qm은 밀링시간의 증가에 따라 같이 증가 하였다. 이는 불밀링시간의 증가로 입경의 미세화를 촉진하여 소결성이 개선되어 Qm의 상승을 도운 것으로 사료된다. kp 및 Qm의 최고값은 각각 0.552, 1609 이다.

그림 4는 불밀링 시간에 따른 시편의 유전상수 및 압전 d상수를 나타내고 있다. 유전상수는 밀링시간에 따라 증가하는 반면에 압전상수는 거의 변화가 없었다.

표 1에 불밀링 시간에 따른 시편의 특성을 정리하였다.

표1. 밀링시간에 따른 시편의 특성

Sintering Temp[°C]	Milling time [Hour]	Density [g/m³]	εr	kp	Qm	d33 [pC/N]
930	36	7.82	1300	0.542	1526	320
	48	7.91	1314	0.552	1581	320
	60	7.93	1371	0.551	1609	321

4. 결 론

본 실험에서는 적층 압전 액츄에이터에 응용할 저온소결 저온소결 압전세라믹스를 개발하기 위해 PMN-PZN-PZT 세라믹스에 불밀링 시간이 유전 및 압전 특성에 미치는 영향을 조사하였다. 실험결과 전반적으로 불밀링시간의 증가에 따라 특성이 향상됨을 보였고 그 결과는 다음과 같다.

1. 모든 시편은 이차상이 없었고, tetragonal phase을 보였다.
2. 시편의 밀도는 밀링시간의 증가에 따라 증가하였고, 밀링시간이 60시간일때 7.93g/m³의 최고값을 나타냈다.
3. 930°C에서 소결하고 60시간 동안 불밀링했을 때, 시편의 밀도, kp, Qm, 유전상수, d33는 각각 7.93g/m³, 0.551, 1609, 1371, 321pC/N으로 적층 압전 액츄에이터로의 응용 가능성을 보였다.

감사의 글

본 연구는 2005년도 학술진흥재단 선도연구자지원사업 (고체번호 : KRF-2005-041-D003707)의 연구비로 이루어졌으며 이에 감사드립니다.

참고 문헌

- [1] 이현석, 류주현, 윤현상, “소결온도에 따른 PMN-PNN-PZT 미세구조 및 압전특성”, J. of KIEEME(in korea) p.217, 2006
- [2] 박창엽, 류주현, 이상호, 황정민, 이충호, 정영호, 이형규, 강형원. “PNN치환이 저온소결 PMN-PZT 세라믹스의 압전특성에 미치는 영향” J. of KIEEME(in korea), Vol.6, No24, p.66, 2005.
- [3] 박창엽 “압전 세라믹스”, 김영사, 1987
- [4] 류주현, 정광현, 이덕출, 이창배, 이상호, 이형규, 강형원, “MnO₂ 첨가에 따른 저온소결 PCW-PMN-PZT 세라믹스의 유전 및 압전특성”, J. of KIEEME(in korea), Vol18, No.32, p.136, 2005.
- [5] 김국진, 류주현, 정영호, “저온소결 PMN-PNN-PZT 세라믹스의 WO₃첨가에 따른 압전 및 유전특성”, 대한전기전자 재료학회 논문집, Vol.20, No.2, p.130, 2007.