

La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가된 PSS-PT-PZ 세라믹의 유전 및 압전특성  
Dielectric and Piezoelectric Properties of the PSS-PT-PZ  
Ceramics Doped with La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

이성갑\* · 박인길\* · 류기원\* · 이영희\*

(Sung-Gap Lee · In-Guil Park · Ki-Won Ryu, Young-Hie Lee)

요 약

(Pb<sub>1-x</sub>La<sub>x</sub>)(Sb<sub>1/2</sub>Sn<sub>1/2</sub>)Ti<sub>y</sub>Zr<sub>1-y</sub>)O<sub>3</sub> (0≤x≤0.04, 0.25≤y≤0.40) 세라믹을 1250[°C]에서 2시간 동안 유지시켜 일반 소성법으로 제작하였으며 조성 및 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량에 따른 구조적, 압전적 특성을 관찰하였다. La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량이 3-4[mol%]인 경우 La-rich의 pyrochlore상이 형성되었다. 시편의 평균결정립 크기는 1-2[μm]의 크기를 나타내었으며 PbTiO<sub>3</sub>조성이 증가함에 따라 다소 감소하는 경향을 나타내었다. 각 조성의 시편에 대해 PbTiO<sub>3</sub> 및 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량이 증가할수록 유전상수는 증가하는 경향을 나타내었으며 상전이 온도인 큐리온도는 PbTiO<sub>3</sub>조성이 감소할수록 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량이 증가할수록 감소하는 경향을 나타내었다. 압전 전하계수 및 전기기계 결합계수는 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량 및 PbTiO<sub>3</sub>조성에 따라 증가하였으며 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 4[mol%]첨가된 0.10PSS-0.40PT-0.50PZ시편에서 각각 250×10<sup>-12</sup>[C/N], 29.7[%]의 최대값을 나타내었다. 기계적 품질계수는 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량 및 PbTiO<sub>3</sub>조성이 증가할수록 감소하는 경향을 나타내었으며 0.10PSS-0.25PT-0.65PZ시편에서 138의 최대값을 나타내었다.

Abstract

(Pb<sub>1-x</sub>La<sub>x</sub>)(Sb<sub>1/2</sub>Sn<sub>1/2</sub>)Ti<sub>y</sub>Zr<sub>1-y</sub>)O<sub>3</sub> (0≤x≤0.04, 0.25≤y≤0.40) ceramics were fabricated by the mixed oxide method. The sintering temperature and time were 1250[°C], 2[hr], respectively. The structural and piezoelectric properties with variation of composition and contents of La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> were investigated. La-rich pyrochlore phase were formed in the specimens doped with 3-4[mol%]La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Average grain size was about 1-2[μm] and decreased with increasing the contents of PbTiO<sub>3</sub>. Relative dielectric constants of the specimens were increased with increasing the contents of PbTiO<sub>3</sub> and La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Curie temperatures were increased with increasing the contents of PbTiO<sub>3</sub> and decreasing the contents of La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Piezoelectric charge constant and electromechanical coupling factor were increased with increasing the contents of PbTiO<sub>3</sub> and La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and the specimen, 0.10PSS-0.40PT-0.50PZ doped 4[mol%]La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, showed the highest values of 250×10<sup>-12</sup>[C/N], 29.7[%], respectively. Mechanical quality factors were increased with decreasing the contents of PbTiO<sub>3</sub> and La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and the specimen, 0.10PSS-0.25PT-0.65PZ, showed the highest value of 138.

\*광운대학교 전자재료공학과

## La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가된 PSS-PT-PZ 세라믹의 유전 및 압전특성

### 1. 서 론

Smolenskii 등<sup>1)</sup>에 의해 A(B<sub>1</sub>, B<sub>2</sub>)O<sub>3</sub>형 복합 페로브스카이트 구조를 갖는 강유전성 세라믹이 연구된 이래 Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>-PbZrO<sub>3</sub><sup>2)</sup>, Pb(Zn<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>-PbZrO<sub>3</sub><sup>3)</sup>, Pb(Co<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>-PbZrO<sub>3</sub><sup>4)</sup> 등 3성분계 세라믹의 유전, 압전 및 강유전 특성에 대한 연구와 함께 재현성 및 실용화를 위한 제조조건의 개선, 불순물 첨가 효과 등 다각적인 연구가 진행되어 왔다.<sup>5)</sup> 이러한 복합 3성분계 세라믹은 BaTiO<sub>3</sub>, PbTiO<sub>3</sub>-PbZrO<sub>3</sub> (PZT) 계 세라믹과 비교하여 유전 및 압전 특성이 최대가 되는 조성 변태 상경계 영역이 더욱 확대되며 양호한 온도특성 및 소량의 불순물 첨가에 의해 원하는 재료 특성의 선택폭이 넓다는 장점을 가지고 있다. 1965년 H. Ouchi 등<sup>2)</sup>은 Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>-PbZrO<sub>3</sub> 세라믹의 높은 전기 기계 결합 계수 특성을 이용하여 압전진동자로 1971년 NEC<sup>6)</sup>에서는 Pb(Mn<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>-PbZrO<sub>3</sub> 세라믹을 이용하여 주파수 필터로 실용화 하였다. 1985년 T. Ogawa 등<sup>7)</sup>은 Pb(Sb<sub>1/2</sub>Sn<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>-PbZrO<sub>3</sub> (PSS-PT-PZ)를 이용하여 SAW 필터로의 실용화 가능성과 높은 초전계수 특성을 연구 보고하는 등 PZT를 기본으로 하는 복합 3성분계 세라믹의 특성향상 및 실용화를 위한 활발한 연구가 진행되고 있다. 본 연구에서는 우수한 강유전특성을 나타내는 PSS-PT-PZ 세라믹을 선택하여 각 기본조성에 대해 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량에 따른 구조적, 유전적 및 압전적 특성에 대해 조사 하였으며 캐패시터, 진동자, 필터 등으로의 응용 가능성에 대해 고찰하고자 한다.

### 2. 실험

#### 2-1 시편의 제작

각 시료를 조성식 (Pb<sub>1-x</sub>La<sub>x</sub>)(Sb<sub>1/2</sub>Sn<sub>1/2</sub>)Ti<sub>1-y</sub>Zr<sub>1-y</sub>O<sub>3</sub> (0 ≤ x ≤ 0.04, 0.25 ≤ y ≤ 0.40)에 따라 평량한후 불밀을 이용하여 24시간동안 습식 혼합 분쇄하였다. 혼합분쇄된 시료를 건조시킨후 알루미나 도가니에 넣어 전기로 LINDBERG, 830984)에서 850(°C)로 2시간동안 하소하였다. 하소된 분말을 재분쇄한후 원통

형 금형(φ12mm)에 1.5(gr)씩 넣어 1(ton/cm<sup>2</sup>)의 압력으로 성형하였다. 성형된 시료를 PbO 분위기에서 1250(°C)에서 2시간동안 소결하였으며 소결된 시편의 표면을 0.4(mm)의 두께로 연마한후 은전극을 부착하였다. 이와 같은 방법으로 제작된 시편을 100(°C)의 절연유속에 넣고 DC30(KV/cm)의 전압을 30분간 인가하여 분극시킨후 유전 및 압전특성을 측정하였다.

#### 2.2 측정

혼합분쇄된 시료의 가열과정중 발생하는 물리적, 화학적 변화를 관찰하기 위해 시차 열분석(differential thermal analysis, Stanton 1500) 시험을 하였다. 시편의 조성 및 반응성을 조사하기 위해 X-선 회절분석을 하였으며 열적에칭한후 전자현미경(GEOL, JSM35CF, JAPAN)을 이용하여 미세구조를 관찰하였다. 시편의 유전상수와 유전손실은 IRE 규정<sup>8)</sup>에 따라 LCR-meter (ANDO, type 4301)를 사용하여 정전용량 C와 시편의 크기로 부터 계산 하였으며 상전이온도인 큐리온도는 온도변화에 따른 유전상수를 관찰하여 측정하였다. 종방향 압전 전하계수 (piezoelectric charge coefficient, d<sub>33</sub>)는 d<sub>33</sub>-meter (Berlincourt Channel)를 사용하여 100(Hz)에서 0.3(N)의 압력을 인가하여 측정하였다. 전기기계 결합계수 (electromechanical coupling factor, k<sub>p</sub>)는 IRE 규정에 따라 정전압 회로를 이용하여 공진주파수와 반공진주파수를 측정한후 尾上<sup>9)</sup>이 제시한 근사식을 이용하여 계산하였다. 분역운동에 대한 내부저항의 역수를 나타내는 기계적 품질계수 (mechanical quality factor, Q<sub>m</sub>)는 식(1)을 이용하여 계산하였다.

$$Q_m = \frac{1}{2\pi f_r(1-f_r^2/f_a^2)R'C} \quad (1)$$

여기서 f<sub>r</sub>: 시편의 공진주파수(Hz), f<sub>a</sub>: 시편의 반공진주파수(Hz), C: 1(kHz)에서의 정전용량(F), R': 공진시 시편의 저항(Ω)

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 구조적 특성

그림 3-1은 0.10PSS-0.40PT-0.50PZ 조성의 혼합분쇄된 시료에 대해 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량과 30(°C

C)에서 900[°C]까지 온도변화에 따른 시차 열분석 실험결과이다.<sup>10)</sup> 310[°C] 부근에서 높은 발열피크가 발생하였으며 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 따라 고온측으로 이동하는 경향을 나타내었다. 이 피크는 X-선 회절실험에 의해서도 분석할수 없었으며 각 시료들의 불완전 반응에 의한 Pb-La-Sb-Sn-Ti-Zr-O의 합성피크로 사료된다. 350[°C]부근에서의 작은 발열피크와 500[°C]부근에서의 흡열피크는 시료자체의 불순물, 불필과정중 혼입된 유기물등의 연소와 CO<sub>2</sub> 기체의 분해에 의해 발생한 것이다.

530[°C]부근에서의 작은 발열피크는 PbO의 저온 안정상인 litharge구조에서 고온 안정상인 massicot구조로의 상전이에 의한것이며<sup>11)</sup> 640[°C]부근에서의 완만한 흡열피크는

Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 분해와 Pb<sub>3</sub>Sb<sub>4</sub>O<sub>13</sub>과 같은 중간상의 형성에 의한것이다.<sup>12)</sup> 800[°C]부근에서의 작은 발열피크는 640[°C]부근에서 형성되었던 중간상 등의 상전이에 의한 것으로 사료되어지며 완만한 피크가 발생한것으로 보아 완전한 단일상을 이루지 못하고 반응이 서서히 이루어진 다결합 결정상을 형성한것으로 생각된다. 그림 3-2는 0.10PSS-0.40PT-0.50PZ 시편의 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량 변화에 따른 X-선 회절모양을 나타낸 것이다. 그림 3-2에 나타낸 바와 같이 회절각의 폭이 좁고 미반응 물질에 대한 피크가 관찰되지 않은 것으로 보아 고상반응이 이루어졌음을 알수있으며 PT의 조성비에 대해 회절모양은 큰 변화를 나타내지 않았다. 그러나 회절각2θ가 28°, 34°.

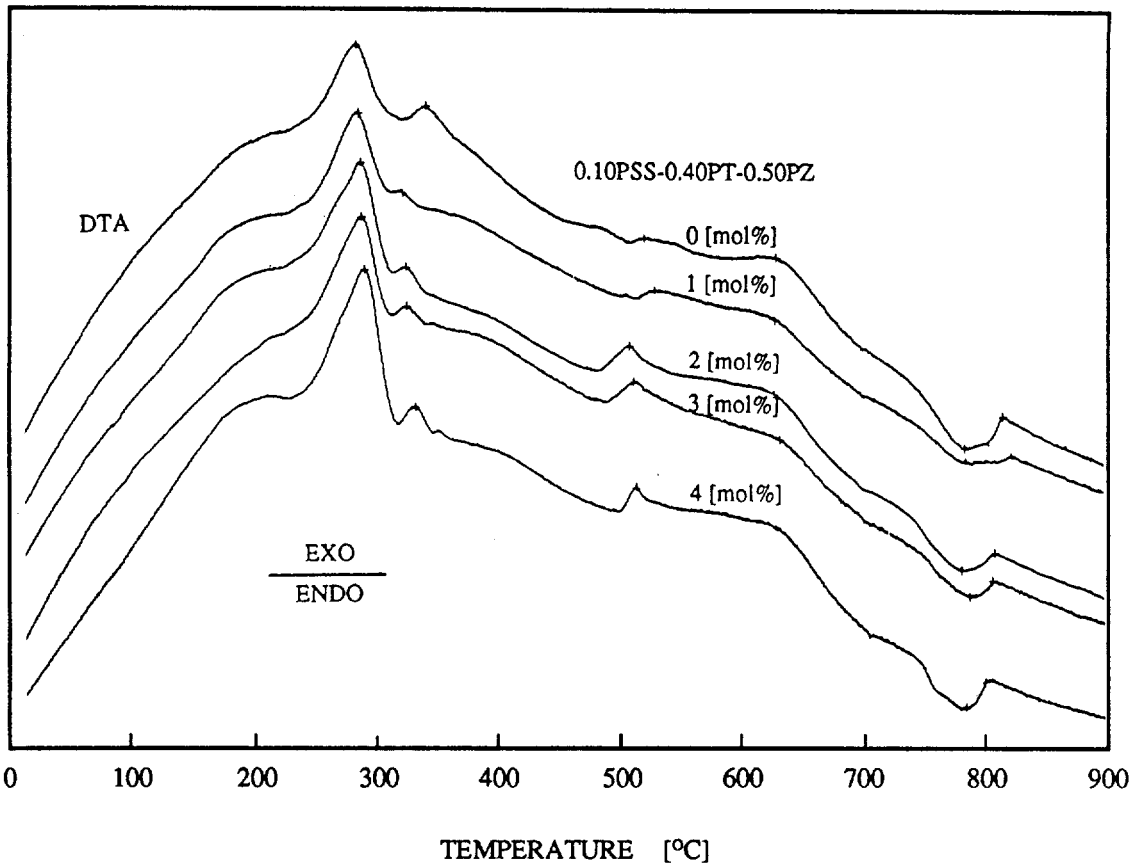


그림 3-1. 혼합 분쇄된 0.10PSS-0.40PT-0.50PZ 시료의 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 따른 시차 열분석  
 Fig. 3-1. DTA patterns with contents of La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in the 0.10PSS-0.40PT-0.50PZ composition, (mixed power).

La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가된 PSS-PT-PZ 세라믹의 유전 및 압전특성

48°, 및 57°부근에서 페로브스카이트상이 아닌 2차상이 발생하였으며 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량에 따라 증가하는 경향을 나타내었다.

이러한 피크는 Pb<sub>2</sub>Sb<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, La<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 및 La<sub>2</sub>-Zr<sub>2</sub>O<sub>7</sub>의 pyrochlore상으로 사료되어 지며 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량이 증가 할수록 시편의 단위 격자내 전기적 중성을 유지하기위한 양이온 공극자가 증가하기 때문에 산소 8면체의 페로브스카이트 구조보다도 배위하는 산소의 수가 적은 pyrochlore 상이 증가하며 3-4 [mol%]첨가된 경우에는 과잉 첨가에 의한 La-rich의 pyrochlore상이 형성된것으로 사료된다.<sup>13)</sup> 0, 10PSS-xPT-(0, 90-x)PZ 시편의

PbTiO<sub>3</sub>조성 및 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 따른 미세구조를 사진 3-1에 나타내었다.

La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량이 3-4[mol%]인 경우 결정 입계층에는 5각형 또는 6각형의 단면을 나타내고 있는 2차상이 존재하였다. (0 내부) 이는 X-선 회절분석에서 고찰한바와 같이 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 과잉 첨가에 의해 형성된 La<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, La<sub>2</sub>Zr<sub>2</sub>O<sub>7</sub>등의 pyrochlore상으로 사료된다. 시편의 평균결정립 크기는 1.2(μm)의 크기를 나타내고 있으며 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량에 따른 의존성은 관찰되지 않았다. 그러나 결정격자 이방성이 큰 PT의 조성이 25(mol%) (사진3-1, (400))로 증가함에 따라 단위 격자내의 내부 변형력이 증가하여 평균 결정립 크기는 1.66(μm)에서 0.98(μm)로 감소하였다.<sup>10)</sup>

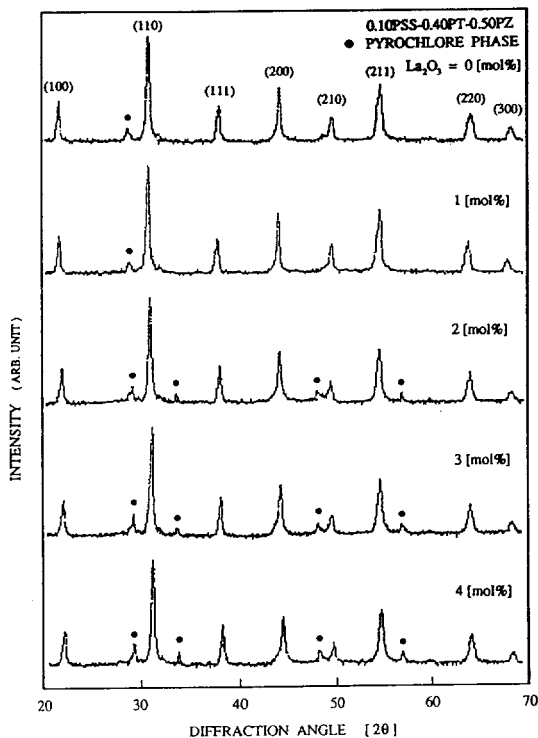
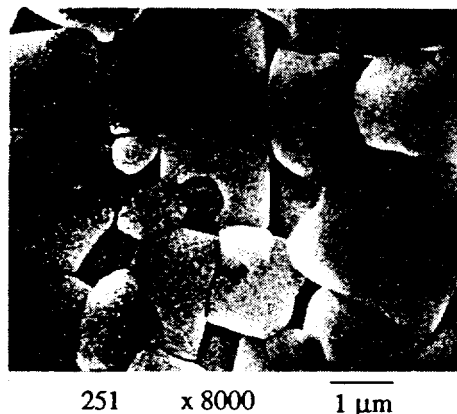
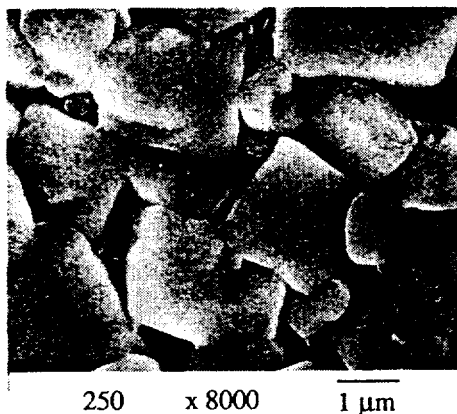


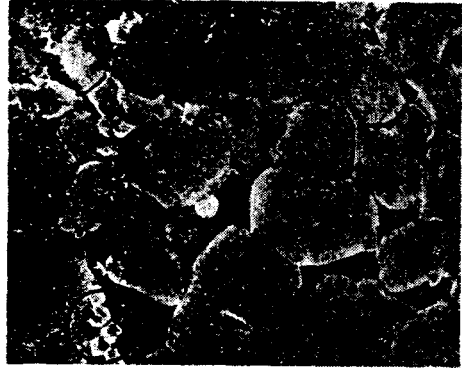
그림 3-2. 0, 10PSS-0, 40PT-0, 50PZ 시편의 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 따른 X선 회절 모양

Fig. 3-2. X-ray patterns with contents of La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in the 0, 10PSS-0, 40PT-0, 50 PZ specimens.





252 x 8000 1 μm



253 x 8000 1 μm



254 x 8000 1 μm



400 x 8000 1 μm

사진 3-1. 0.10PSS-xPT-(0.90-x)PZ 시편의  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량에 따른 미세구조

Photo. 3-1. Microstructure with contents of  $\text{La}_2\text{O}_3$  in the 0.10PSS-xPT-(0.90-x)PZ specimens.

### 3.2 유전 및 압전 특성

그림 3-3은 0.10PSS-xPT-(0.90-x)PZ시편의 조성 및  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량에 따른 유전상수와 유전손실을 나타낸 것이며 PT 및  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량이 증가할수록 증가하는 경향을 나타내었다 이는 결정격자 이방성이 큰  $\text{PbTiO}_3$ 의 고용량이 증가할수록 시편의 내부 변형력 증가에 따른 분극값의 증대와 유전 및 압전특성이 최대가 되는 조성 변태 상경계 영역으로의 근접함에 따른 결과로 사료되어 진다. 또한  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량이 증가할수록 최대 유전상수를 나타내는 큐리온도의 감소 및  $\text{La}^{3+}$  이온이 B자리에서 발생하는  $\text{Sb}^{3+}$ ,  $\text{Sn}^{4+}$  이온에 의한 양이온 결핍을 보상해 줌으로서 전기적 중성조건을 만족시켜 주기때문에 유전상

수가 증가하는것으로 생각된다. 유전손실 특성에서  $\text{PbTiO}_3$  조성 및  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량에 따른 의존성은 관찰되지 않았으며  $\text{La}_2\text{O}_3$ 가 4(mol%) 첨가된 0.10PSS-0.25PT-0.65PZ 시편에서 0.028의 비교적 낮은 값을 나타 내었다. 그림 3-4는 0.10PSS-xPT-(0.90-x) PZ시편의  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량에 따른 상전이온도인 큐리온도를 나타낸 것이며  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량이 증가할수록  $\text{PbTiO}_3$  조성이 감소할수록 큐리온도는 감소하는 경향을 나타내었다.  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량이 증가함에 따라 큐리온도의 감소는 +2가의 Pb 자리에 +3가의 La 이온이 치환되어 B-자리에서 발생된 양이온 결핍에 의한 음이온 공 격자점을 산소 이온이 보충함에 따라 공간전하가 감소하기 때문으로 사료되며<sup>14)</sup>  $\text{PbTiO}_3$

La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가된 PSS-PT-PZ 세라믹의 유전 및 압전특성

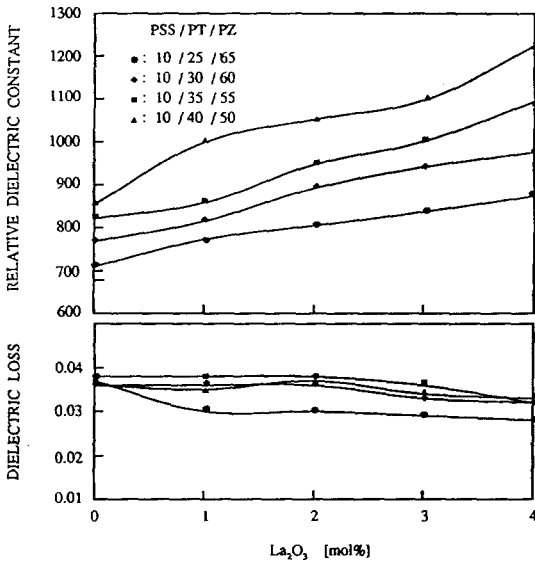


그림 3-3. 0, 10PSS-xPT-(0, 90-x)PZ시편의 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량에 따른 유전상수 및 유전 손실

Fig. 3-3. Relative dielectric constant and dielectric loss with contents of La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in the 0, 10PSS-xPT-(0, 90-x)PZ specimens.

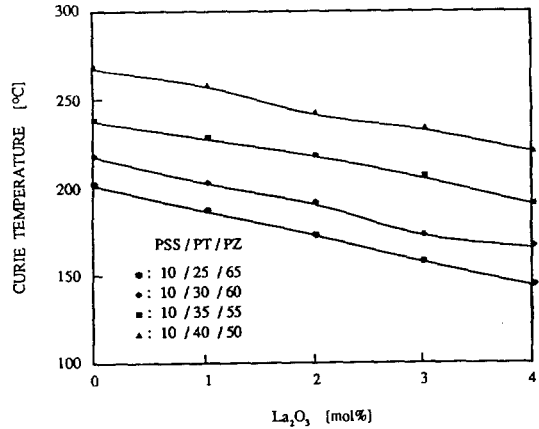


그림 3-4. 0, 10PSS-xPT-(0, 90-x)PZ시편의 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량에 따른 큐리온도  
Fig. 3-4. Curie temperature with contents of La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in the 0, 10PSS-xPT-(0, 90-x)PZ specimens.

의 큐리온도가 490[°C]로 PbZrO<sub>3</sub>(230°C) Pb(Sb<sub>1/2</sub>Sn<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub>보다 높기때문에 PbTiO<sub>3</sub>조성이 감소함에 따라 큐리온도가 낮아진다.

0, 10PSS-xPT-(0, 90-x)PZ시편의 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량에 따른 압전 전하계수를 측정하였으며 결과는 그림 3-5와 같다.

시편에 기계적 변형력을 인가할 경우 내부에서 발생하는 전기적 변위의 크기 또는 전계를 인가할 경우 발생하는 변형의 크기를 나타내는 압전 전하계수, d<sub>33</sub>는 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량 및 PbTiO<sub>3</sub>의 조성에 비례하여 증가하는 경향을 나타내었다. 이는 이온반경이 작은 La<sup>3+</sup>이온이 ABO<sub>3</sub>단위 격자의 A-자리인 Pb<sup>2+</sup>이온과 치환됨에 따라 전기적 변위가 증가하기 때문이며 PbTiO<sub>3</sub>조성이 증가함에 따라 조성변태 상경계 영역으로 근접함에 따른 분극 효율의 증가로 유전 및 압전특성이 최대가 되기 때문이다.<sup>15)</sup> La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 4[mol%]첨가된 0, 10PSS-0, 40PT-0, 50PZ시편에서 압전 전하계수는 250

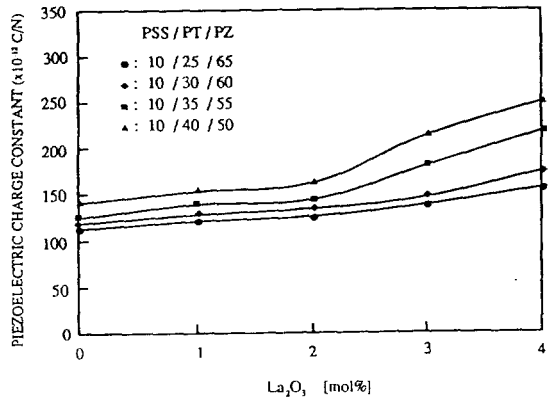


그림 3-5. 0, 10PSS-xPT-(0, 90-x)PZ시편의 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량에 따른 압전전하계수

Fig. 3-5. Piezoelectric charge constants with contents of La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in the 0, 10PSS-xPT-(0, 90-x)PZ specimens.

$\times 10^{-12}$  [C/N]의 양호한 특성을 나타내었다. 0.10PSS-xPT-(0.90-x)PZ시편의  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량에 따른 전기기계 결합계수를 측정하였으며, 결과는 그림 3-6과 같다.

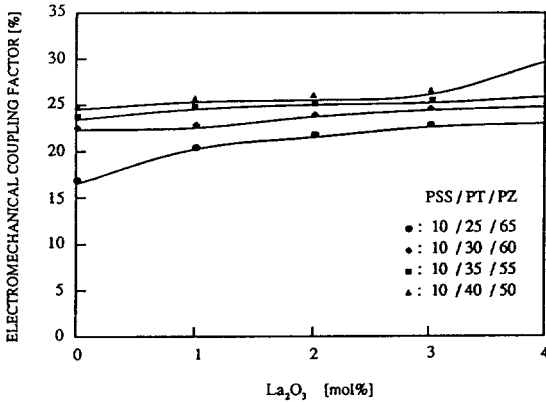


그림 3-6. 0.10PSS-xPT-(0.90-x)PZ시편의  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량에 따른 전기기계 결합계수

Fig. 3-6. Electromechanical coupling factor with contents of  $\text{La}_2\text{O}_3$  in the 0.10PSS-xPT-(0.90-x)PZ specimens.

강유전성 세라믹에 기계적 에너지를 인가할 경우 발생되는 전기적 에너지 또는 그 역의 경우 변환되는 에너지 효율을 나타내는 전기기계 결합계수  $k_p$ 는  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량 및  $\text{PbTiO}_3$  조성에 따라 증가하는 경향을 나타내었다. 그림 3-5의 압전 전하계수 특성에서 고찰한바와 같이  $\text{La}_2\text{O}_3$ 의 첨가량이 증가할수록  $\text{ABO}_3$  단위 격자 구조의 A-자리에 대한 이온변위가 증가하며 결정격자 이방성이 큰  $\text{PbTiO}_3$ 의 조성이 증가할수록 조성변태 상경계 영역으로 근접함에 따른 분극 효율의 증대로 압전효과는 최대가 된다. X-선 회절분석 결과  $\text{La}_2\text{O}_3$ 의 첨가량이 증가할수록 유전 및 압전특성을 저하시키는 pyrochlore상은 증가한다. 그러나 시편의 압전특성은 pyrochlore상의 영향보다는  $\text{La}_2\text{O}_3$ 의 첨가에 따른 이온변위 및 조성변태 상경계 영역에서 분극 가능한 쌍극자 배열에 더 큰 영향을 받기때문에  $\text{La}_2\text{O}_3$ 가 4(mol%) 첨가된 0.10PSS-0.40PT-0.50PZ시편에서 29.7%의 최대 전기기계 결합계수 특성을 나타낸 것으로 사료된다. 0.10PSS-xPT-(0.90-x)

PZ시편의  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량에 따른 기계적 품질계수를 관찰하였으며 결과는 그림 3-7과 같다.

기계적 품질계수  $Q_m$ 은 에너지 변환시 시편 내부에서 발생하는 기계적 손실의 역수로서  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량 및  $\text{PbTiO}_3$  조성이 증가할수록 감소하는 경향을 나타내었다. PSS-PT-PZ시편에 대해  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량이 증가할수록  $\text{ABO}_3$  단위 격자의 A-자리에 대한 이온변위 및 Pb공격자점에 의한 pyrochlore 상의 형성이 증가하며 각이온의 진동 및 쌍극자 회전시 마찰력 증가와 조성의 불균일성에 의해 기계적 품질계수는 감소한다.  $\text{PbTiO}_3$  조성의 증가에 따른 기계적 품질계수의 감소는 조성변태상 경계 영역에 근접함에 따른 결정 구조의 불안정성에 기인한 것으로 사료되며 0.10PSS-0.25PT-0.65PZ 시편에서 138의 최대 기계적 품질계수를 나타내었다.

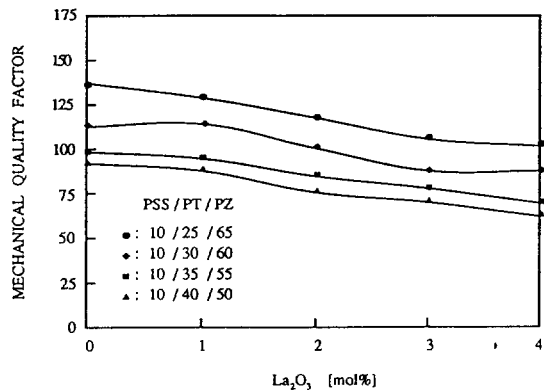


그림 3-7. 0.10PSS-xPT-(0.90-x)PZ시편의  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량에 따른 기계적 품질계수

Fig. 3-7. Mechanical quality factor with contents of  $\text{La}_2\text{O}_3$  in the 0.10PSS-xPT-(0.90-x)PZ specimens.

#### 4. 결 론

$(\text{Pb}_{1-x}\text{La}_x)(\text{Sb}_{1/2}\text{Sn}_{1/2}\text{Ti}_y\text{Zr}_{1-y})\text{O}_3$  ( $0 \leq x \leq 0.04, 0.25 \leq y \leq 0.40$ ) 세라믹을 일반 소성법으로 제작하였으며 시편의 조성 및  $\text{La}_2\text{O}_3$  첨가량에 따른 구조적, 유전적 및 압전적 특성을 측정하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. X-선 회절분석 결과  $\text{La}_2\text{O}_3$ 의 첨가량에 따라 pyrochlore 상은 증가하였으며 3-4(mo

La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가된 PSS-PT-PZ 세라믹의 유전 및 압전특성

- 1%) 첨가된 경우에는 La-rich의 pyrochlore상이 형성되었다.
2. 시편의 평균 결정립 크기는 PbTiO<sub>3</sub>조성이 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내었다.
3. 각 조성의 시편에 대해 PbTiO<sub>3</sub> 및 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량이 증가할수록 유전상수는 증가하는 경향을 나타내었으며 상전이 온도인 큐리온도는 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량이 증가할수록 PbTiO<sub>3</sub>조성이 감소할수록 감소하는 경향을 나타내었다.
4. 압전전하 계수 및 전기 기계 결합계수는 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량 및 PbTiO<sub>3</sub>조성에 따라 증가하였으며 기계적 품질계수는 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량 및 PbTiO<sub>3</sub>조성이 증가할수록 감소하는 경향을 나타내었다.

참고문헌

- 1) G. A. Smolenskii and A. I. Agranovskaya, "Dielectric Polarization of a Number of Complex Compound", Sov. Phys. Solid State, Vol. 1, p. 1429, 1960
- 2) H. Ouchi et al., "Piezoelectric Properties of Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>-PbZrO<sub>3</sub> Solid Solution Ceramics", J. Am. Ceram. Soc., Vol. 48, p. 630, 1965
- 3) 日本, 特公昭 44-17344號
- 4) 日本, 特公昭 45-13146號

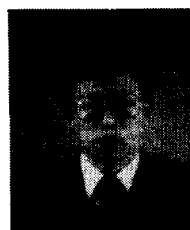
- 5) J. P. Guha, D. J. Hong and H. U. Anderson, "Effect of Excess PbO on the Sintering Characteristics and Dielectric Properties of Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>-Based Ceramics", J. Am. Ceram. Soc., Vol. 71, p. C-152, 1988
- 6) 日本, 特公昭 44-26508, 46-16632號
- 7) T. Ogawa and K. Wakino, "Pore Free Piezoelectric Ceramics of Mn Modified Pb(Sb<sub>1/2</sub>Sn<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>-PbZrO<sub>3</sub> for Surface Acoustic Wave Filters", 窯業協會誌, Vol. 92, p. 510, 1985
- 8) M. Marutake, "IRE Standards on Piezoelectrics Crystals", Proc. IRE, Vol. 50, p. 214, 1958
- 9) 尾上 "日本 音響學會講演論文集 11", 千文字, 1964
- 10) 이성갑, "초전형 적외선 센서용 Pb(Sb<sub>1/2</sub>Sn<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub>-PbZrO<sub>3</sub> 세라믹에 관한 연구", 광운대, 박사학위논문, 1991
- 11) L. B. Pankratz, "Thermodynamic Properties of Element and Oxide", U. S. Dept. of the Interior, p. 358, 1979
- 12) U. S. Pat. 4, 230, 589, Oct. 28, 1980
- 13) E. Aleshin and R. Roy, "Crystal Chemistry of Pyrochlore", J. Am. Ceram. Soc., Vol. 45, p. 18, 1962
- 14) S. Takahashi, "Effects of Impurity Doping in Lead Zirconate-Titanate Ceramics", Ferroelectrics, Vol. 41, p. 143, 1982
- 15) E. Sawaguchi, "Ferroelectricity versus Antiferroelectricity in the Solid Solution of PbTiO<sub>3</sub> and PbZrO<sub>3</sub>", J. Phys. Soc. Jap., Vol. 8, p. 615, 1953

(1991년 12월 5일 접수)



이성갑

1963년 5월 1일생. 1985년 광운대 공대 전자재료공학과 졸업. 1987년 동 대학원 전자재료공학과 졸업(석사). 1991년 동 대학원 전자재료공학과 졸업(공박). 현재 광운대공대 전자재료공학과 강사.



박인길

1964년 2월 1일생. 1986년 광운대 공대 전자재료공학과 졸업. 1988년 동 대학원 전자재료공학과 졸업(석사). 현재 광운대 공대 전자재료공학과 박사과정.