



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2012-0112920
(43) 공개일자 2012년10월12일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

C04B 35/495 (2006.01) C04B 35/622 (2006.01)

C04B 35/64 (2006.01)

(21) 출원번호 10-2011-0030517

(22) 출원일자 2011년04월04일

심사청구일자 2011년04월04일

(71) 출원인

창원대학교 산학협력단

경상남도 창원시 의창구 사림동 9 창원대학교

(72) 발명자

성연수

경상남도 창원시 의창구 외동반림로 156, 202동
502호 (용호동, 용지아파트)

김명호

경상남도 창원시 성산구 대암로77번길 41 (대방동)

(뒷면에 계속)

(74) 대리인

김재욱

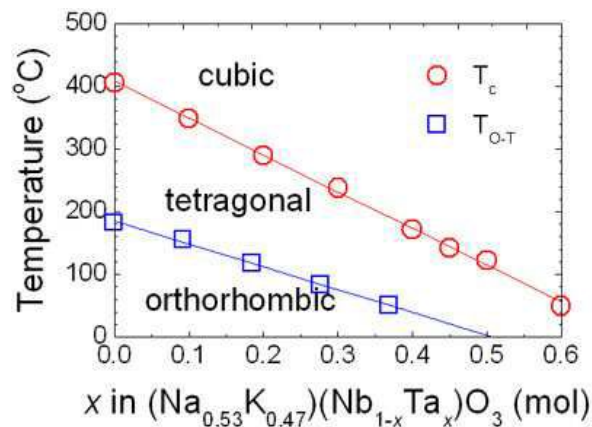
전체 청구항 수 : 총 4 항

(54) 발명의 명칭 나트륨 칼륨 니오븀 탄탈륨 산화물 계통의 무연 압전 세라믹스의 조성물 및 그 제조방법

(57) 요약

본 발명은 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연(Pb-free) 세라믹스의 조성물 및 그 제조방법에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 종래의 납(Pb)계통의 PZT 세라믹스가 인체에 유해하고 환경오염을 유발시키는 것과는 달리 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 압전 세라믹스의 소재를 제공하여 친환경적이고, 원료분말 중에서 흡습성을 갖는 Na_2CO_3 와 K_2CO_3 를 철저히 건조시켜 걸보기밀도가 이론밀도의 대략적으로 95 %에 이르는 소결체를 얻을 수 있고, Ta의 Nb치환을 통하여 유전 및 압전 특성을 제어하고, 무연 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 세라믹스의 압전 특성을 향상시켜 종래의 납(Pb)계통의 압전 소재 부품들을 전부 또는 부분적으로 대체할 수 있으므로 경제적인 절감은 물론 환경 친화적성을 가져 올 수 있는 효과가 있다.

대표도 - 도5



(72) 발명자

송태권

경상남도 창원시 성산구 대암로 82, 성원3차아파트
302동 402호 (대방동)

이정훈

경상남도 김해시 장유면 월산로 112-56, 부영3차아
파트 905동 1903호

박태곤

경상남도 창원시 의창구 용지로239번길 19-30, 롯데
아파트 208동 202호 (용호동)

특허청구의 범위

청구항 1

$(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 으로 나타내는 조성물을 주성분으로 함유하는 무연 세라믹 조성물로서, 상기 식에서 $0 \leq x \leq 0.60$ 를 만족하는 것을 특징으로 하는 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물.

청구항 2

제 1항에 있어서,

Ta의 Nb 치환량(x)과 그에 따른 상전이온도의 변화간의 선형 관계식에서, 정방정과 입방정간의 상전이온도(큐리 온도)인 $T_{T-C} = T_C = a + bx$ 이고, 사방정과 정방정간의 상전이온도인 $T_{O-T} = c + dx$ 인 것을 특징으로 하는 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물.

청구항 3

$(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물의 제조방법에 있어서, Na_2CO_3 , K_2CO_3 , Nb_2O_5 , Ta_2O_5 분말을 사용하여 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성을 갖는 조성물 중에서 어느 하나를 선택하여 칭량하고 혼합한 후 무수 에탄올을 사용하여 밀링하는 단계와;

상기 밀링한 분말을 90 내지 110 °C 오븐에서 건조시키고 800 °C에서 5 시간 동안 1차 하소하고, 분말의 균질성을 높이기 위하여 밀링과 건조를 반복한 후 2차 하소를 850 °C에서 5 시간 동안 실행하는 단계와;

상기 하소된 분말을 다시 습식 밀링하고 건조시키는 단계와;

상기 건조된 분말을 성형을 위한 결합제로서 Polyvinyl Alcohol(PVA) 결합제를 분말에 0.5 wt% 첨가 혼합하고 sieve로 체가름을 한후 성형하는 단계와;

상기 성형된 시편의 대기 중에서 1150 내지 1250 °C에서 4 시간 동안 소결하는 단계; 를 포함하는 것을 특징으로 하는 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물의 제조방법.

청구항 4

제 3항에 있어서,

상기 하소를 실행하는 단계에서, 1차와 2차 하소 온도를 800 °C와 850 °C로 다르게 한 것은 원료분말 중 Na_2CO_3 의 녹는점이 대략적으로 858°C인 점을 감안하여 1차 하소 도중 Na의 휘발을 억제하고 2차 하소시 반응의 효율을 높이기 위한 것임을 특징으로 하는 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물의 제조방법.

명세서

기술분야

[0001]

본 발명은 종래의 납(Pb)계통의 PZT 세라믹스가 인체에 유해하고 환경오염을 유발시키는 것과는 달리 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 압전 세라믹스의 소재를 제공하므로 친환경적이고, 원료분말 중에서 흡습성을 갖는 Na_2CO_3 와 K_2CO_3 를 철저히 건조시켜 세라믹스들을 소결시킨 후 겔보기밀도를 측정하여 이론밀도와 비교하여 볼 때, 불순물의 형성이 제어된 겔보기밀도가 이론밀도의 대략적으로 95 %에 이르는 소결체를 얻을 수 있고, Ta의 Nb치환을 통하여 유전 및 압전 특성을 제어하고, 무연 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 세라믹스의 압전 특성을 향상시켜 종래의 납(Pb)계통의 압전 소재 부품들을 전부 또는 부분적으로 대체할 수 있으므로 경제적인 절감을 거둘 수 있는 환경 친화적 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물 및 그 제조방법에 관한 기술이다.

배경기술

- [0002] 일반적으로 $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ (PZT) 계열의 세라믹스 재료들은 우수한 압전 특성을 갖고 있지만, 납(Pb)을 포함하고 있기 때문에 인체에 해롭고 환경오염을 유발시킨다. 그래서 이를 근본적으로 해결하기 위한 방안의 하나로써, 원천적으로 납을 포함하지 않는 무연(無鉛, Pb-free) 계열의 재료들의 활용을 고려할 수 있지만, 현실점에서 보면, 무연 계열의 재료들은 그 특성들이 기존의 PZT를 대체할 수준에 미치지 못하고 있는 실정이다.
- [0003] 현재 사용되고 있는 압전 소재들은 거의 대부분 납을 함유한 PZT 계열의 압전 소재들인데, 궁극적으로 무연 계열의 소재로 대체되어야 하는 실정이다. 왜냐하면 유럽에서 2003년 2월에 ‘특정유해물질 사용제한에 관한 지침(Restriction of Hazardous Substance, RoHS)’이 공포되어 2006년 7월부터 납(Pb), 카드뮴(Cd), 수은(Hg), 6가 크롬(Cr), 브롬(Br) 계열의 난연재 2종의 사용이 금지되었다. 하지만 PZT 계열의 압전 세라믹 부품을 대체할 소재가 아직 개발되지 않았기에 압전 세라믹 부품에 함유된 납에 한해서 예외적으로 허용되고 있지만, 대체 가능한 물질이 개발되면 압전 세라믹 부품에서도 납산화물의 사용이 금지될 것이다. 일본의 경우에도 2005년부터 납의 사용을 금지시킨다는 규정이 제정되어 있으나, 마찬가지로 납 계열의 압전 부품 소재를 대체할 소재가 아직 없다는 이유로 사용이 허용되고 있는 실정이다.
- [0004] $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계 무연 압전 세라믹스 재료는 화학식으로 ABO_3 (A, B = 양이온 A와 B, O = 음이온 산소)로 표현되며, A 자리에 Na^{1+} 와 K^{1+} 가 공존하고 B 자리에 Nb^{5+} 과 Ta^{5+} 가 공존하는 복합 페로브스카이트(perovskite) 구조를 갖는다. 온도 변화에 따른 상전이(phase transition)는 저온에서 고온으로 감에 따라 능면정(rhombohedral), 사방정(orthorhombic), 정방정(tetragonal), 입방정(cubic) 상으로 동소변태(polymorphic phase transition, PPT)한다.
- [0005] 동소변태온도는 Ta의 Nb 치환량에 따라 변화하는데, 일반적으로 실온에서 결정구조가 사방정(orthorhombic) 또는 정방정(tetragonal) 결정구조를 갖는다. 강유전 및 압전 특성을 갖는 능면정, 사방정, 정방정의 단일상의 경우와 비교하여 2상이 공존하면 PZT의 morphotropic phase boundary(MPB)에서 유전 및 압전 특성이 향상되는 것과 마찬가지로 제반 특성의 향상된다. 따라서 Ta량 조절을 통하여 상전이온도를 제어하여 2상이 공존하는 PPT 온도를 소재로서 사용되는 온도에 맞추어 조절할 수 있다면 그에 수반하여 향상된 압전계수(piezoelectric coefficient, d_{33})의 활용이 가능할 것이다. 이는 넓은 온도 범위에서의 적용이 아닌 좁은 온도 범위 또는 항온 조건에서의 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계열의 압전 세라믹스 소재 활용이 가능함을 의미한다.
- [0006] 그러므로 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계열의 압전 세라믹스의 소재를 제공하므로 친환경적이고, 압전계수가 더 향상되며, 세라믹스들을 소결시킨 후 결보기밀도를 측정하여 이론밀도와 비교하면서 불순물의 형성을 제어하므로 결보기밀도가 이론밀도의 대략적으로 95 %에 이르는 소결체를 얻을 수 있고, 무연 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계열의 무연 세라믹스의 압전 특성을 향상시켜 종래의 납(Pb) 계열의 압전 소재 부품들을 전부 또는 부분적으로 대체할 수 있으므로 경제적인 절감은 물론 환경 친화적성을 가져 올 수 있는 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계열의 무연 세라믹스의 조성물의 특성 제어 및 그 제조방법의 개발이 필요하다.

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0007] 이에 본 발명은 상기 문제점들을 해결하기 위하여 착상된 것으로서, 종래의 납(Pb) 계열의 PZT 세라믹스가 인체에 유해하고 환경오염을 유발시키는 것과는 달리 친환경적인 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계열의 무연 세라믹스의 조성물 및 그 제조방법을 제공하는데 그 목적이 있다.
- [0008] 본 발명의 다른 목적은 세라믹스들을 소결시킨 후 결보기밀도를 측정하여 이론밀도와 비교하면서 불순물의 형성을 제어하므로 결보기밀도가 이론밀도의 대략적으로 95 %에 이르는 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계열의 무연 세라믹스의 조성물 및 그 제조방법을 제공하는데 있다.
- [0009] 본 발명의 다른 목적은 무연 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계열의 세라믹스의 압전 특성을 향상시켜 종래의 납(Pb) 계열의 압전 소재 부품들을 전부 또는 부분적으로 대체할 수 있으므로 경제적인 절감은 물론 환경 친화적성을 가져 올 수 있는 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계열의 무연 세라믹스의 조성물 및 그 제조방법을 제공하는데 있다.
- [0010] 본 발명의 다른 목적은 무연 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계열의 세라믹스의 압전 특성을 향상시키는 방법으로서 Ta의

Nb치환량과 사방정과 정방정간의 상전이온도(T_{0-T})간의 관계식을 유도하여, $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 세라믹스의 소재로서의 적정 사용 온도를 제시하는 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물 및 그 제조방법을 제공하는데 있다.

과제의 해결 수단

[0011] 상기 목적을 달성하기 위한 본 발명의 바람직한 실시예에 따른 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물은 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 로 나타내는 조성물을 주성분으로 함유하는 무연 세라믹 조성물로서, 상기 식에서 $0 \leq x \leq 0.6$ 을 만족하는 것을 특징으로 한다.

[0012] 상기 본 발명에 있어서, Ta의 Nb 치환량(x)과 그에 따른 상전이온도의 변화간의 선형 관계식에서, 정방정과 입방정간의 상전이온도(큐리온도)인 $T_{T-C} = T_C = a + bx$ 이고, 사방정과 정방정간의 상전이온도인 $T_{0-T} = c + dx$ 인 것을 특징으로 한다.

[0013] 또한 상기 목적을 달성하기 위한 본 발명의 바람직한 실시예에 따른 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물의 제조방법은 Na_2CO_3 , K_2CO_3 , Nb_2O_5 , Ta_2O_5 분말을 사용하여 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성을 갖는 조성물 중에서 어느 하나를 선택하여 칭량하고 혼합한 후 무수 에탄올을 사용하여 밀링하는 단계와; 상기 밀링한 분말을 90 내지 110 °C 오븐에서 건조시키고 800 °C에서 5 시간 동안 1차 하소하고, 분말의 균질성을 높이기 위하여 밀링과 건조를 반복한 후 2차 하소를 850 °C에서 5 시간 동안 실행하는 단계와; 상기 하소된 분말을 다시 습식 밀링하고 건조시키는 단계와; 상기 건조된 분말을 성형을 위한 결합제로서 Polyvinyl Alcohol(PVA) 결합제를 분말에 0.5 wt% 첨가 혼합하고 sieve로 체가름을 한 후 성형하는 단계와; 상기 성형된 시편의 대기 중에서 1150 내지 1250 °C에서 4 시간 동안 소결하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 한다.

[0014] 상기 본 발명에 있어서, 상기 하소를 실행하는 단계에서, 1차와 2차 하소 온도를 800 °C와 850 °C로 다르게 한 것은 원료분말 중 Na_2CO_3 의 녹는점이 대략적으로 858 °C인 점을 감안하여 1차 하소 도중 휘발을 억제하고 2차 하소시 반응의 효율을 높이기 위한 것임을 특징으로 한다.

발명의 효과

[0015] 본 발명에 따른 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물 및 그 제조방법은 다음과 같은 효과를 가진다.

[0016] 첫째, 본 발명은 종래의 납(Pb)계통의 PZT 세라믹스가 인체에 유해하고 환경오염을 유발시키는 것과는 달리 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 압전 세라믹스의 소재를 제공하므로 친환경적이다.

[0017] 둘째, 본 발명은 원료분말 중에서 흡습성을 갖는 Na_2CO_3 와 K_2CO_3 를 철저히 건조시켜 세라믹스들을 소결시킨 후 겔 보기밀도를 측정하여 이론밀도와 비교하여 불순물의 형성을 억제된 겔보기밀도가 이론밀도의 대략적으로 95 %에 이르는 소결체를 얻을 수 있다.

[0018] 셋째, 본 발명은 무연 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 세라믹스의 Ta량에 따른 상전이온도 변화의 관계식을 유도하여 다양한 온도조건에 맞추어 소재의 조성을 맞춤 조절할 수 있다.

[0019] 넷째, 본 발명은 무연 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 세라믹스의 압전 특성을 향상시켜 종래의 납(Pb)계통의 압전 소재 부품들을 전부 또는 부분적으로 대체할 수 있으므로 경제적이며 환경 친화적이다.

도면의 간단한 설명

[0020] 도 1은 본 발명의 일실시예에 따른 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성물의 제조 및 평가의 공정 흐름도.

도 2는 본 발명의 일실시예에 따른 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성물의 Ta의 조성에 따른 압전 계수의 변화.

도 3은 본 발명의 일실시예에 따른 $(Na_{0.53}K_{0.47})(Nb_{1-x}Ta_x)O_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성물의 Ta의 조성에 따른 X-

ray 회절패턴.

도 4는 본 발명의 일실시예에 따른 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성물의 Ta의 조성에 따른 유전 상수의 변화.

도 5는 본 발명의 일실시예에 따른 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성물의 Ta의 조성에 따른 유전 특성 결과로부터 구한 Ta의 Nb 치환량과 상전이온도간의 관계 및 그를 토대로 최소자승법으로 구한 선형관계식. ($T_c = a + bx$, $a = 408.0 \pm 3.4$, $b = -586.9 \pm 9.1$, $T_{0-T} = c + dx$, $c = 184.7 \pm 2.2$, $d = -335.3 \pm 8.8$)

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0021] 이하 첨부된 도면과 함께 본 발명의 바람직한 실시 예를 살펴보면 다음과 같은데, 본 발명을 설명함에 있어서 관련된 공지기술 또는 구성에 대한 구체적인 설명이 본 발명의 요지를 불필요하게 흐릴 수 있다고 판단되는 경우에는 그 상세한 설명은 생략할 것이며, 후술되는 용어들은 본 발명에서의 기능을 고려하여 정의된 용어들로서 이는 사용자, 운용자의 의도 또는 관례 등에 따라 달라질 수 있으므로, 그 정의는 본 발명인 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물 및 그 제조방법을 설명하는 본 명세서 전반에 걸친 내용을 토대로 내려져야 할 것이다.

[0022] 이하, 본 발명의 바람직한 실시예에 따른 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스의 조성물 및 그 제조방법에 대하여 설명하면 다음과 같다.

실시예 1

[0023] 도 1은 본 발명의 일실시예에 따른 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성물의 제조 및 평가의 공정 흐름도이다. 도 1에 도시한 바와 같이, 원료 분말들로서 Na_2CO_3 , K_2CO_3 , Nb_2O_5 , Ta_2O_5 를 사용하여 고상반응법(solid-state process)으로 세라믹스 각각의 조성을 갖는 조성물들을 제작하였다. 원료분말 중에서 Na_2CO_3 와 K_2CO_3 는 흡습(吸濕)성을 갖기 때문에 보관 중 주변 환경으로부터 수분을 흡수하여 무게가 증가하게 된다. 따라서 칭량 전 건조가 충분하지 않으면 함유하고 있는 수분의 양만큼 조성이 틀리게 되고 그에 따라 압전 특성도 변하게 된다. 따라서 Na_2CO_3 와 K_2CO_3 분말을 건조오븐에서 110 내지 200 °C에서 2 내지 16 시간 동안 충분히 건조시켜 이미 함유된 수분의 건조에 따른 무게감소가 더 이상 없는 상태, 즉 완전 건조의 상태를 확인한 후 glove box에서 칭량하였다.

[0024] 분말의 혼합은 원하는 조성 비율의 분말을 Yttria-stabilized zirconia(YSZ) 볼(ball)들과 함께 무수(anhydrous) ethanol을 사용하여 2 시간 동안 습식 밀링(milling)하였다. 밀링 후 90 내지 110 °C 오븐에서 건조시키고 800 °C에서 5 시간 동안 1차 하소(calcination)하였다. 분말의 균질성을 높이기 위하여 밀링과 건조를 반복한 후 2차 하소를 850 °C에서 5 시간 동안 실행하였다. 여기서 1차와 2차 하소 온도를 800 °C와 850 °C로 다르게 한 이유는 원료분말 중 Na_2CO_3 의 녹는점이 대략적으로 858 °C인 점을 감안하여 1차 하소 도중 Na의 휘발을 억제하고 2차 하소 시 반응의 효율을 높이기 위함인 것이다.

[0025] 최종 하소된 분말을 다시 습식 밀링하고 건조시킨 후 성형을 위한 결합제로서 Polyvinyl Alcohol(PVA) 결합제를 분말에 0.5 wt% 첨가 혼합하고 150 sieve로 체가름을 하였으며, 시편의 성형은 150 MPa의 압력을 1축으로 가하여 직경 10 또는 18 mm, 두께 1 mm 정도의 원판 형으로 제작하였다. 상기 성형된 시편의 소결(sintering)은 알루미나 도가니에 시편들을 넣고 동일한 조성의 분말로 시편을 덮은 후 대기 중에서 1150 내지 1250 °C에서 4 시간 동안 하였다.

[0026] 소결된 시편의 겉보기밀도는 대기 중에서의 질량과 증류수 속에서의 질량을 측정 비교하는 아르키메데스(Archimedes) 원리를 이용하여 산출하였다. 시편의 연마는 400, 800, 1200 연마지(emery paper)로 최종 두께가 0.5 mm가 되도록 양면 연마하였다. 시편의 상 분석은 X-Ray diffraction (XRD) 패턴(pattern)을 분석하여 확인하였다.

[0027] 압전 특성의 측정을 위하여 연마된 시편의 양 면에 은(Ag) paste를 도포한 후 650 °C에서 30 분간 열처리를 하여 전극을 형성하였다. 시편의 분극(poling)은 120 °C의 실리콘 oil 속에서 4 kV/mm의 직류 전압을 30 분간 가한 후 실온으로 냉각하여 실행하였고 24 시간의 시효(aging) 처리를 하였다. 그리고 압전계수(piezoelectric

coefficient, d_{33})는 piezo d_{33} meter를 사용하여 측정하였다.

실시예 2

도 2는 본 발명의 일실시예에 따른 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성물의 Ta의 조성에 따른 압전 계수의 변화로서, Ta가 증가함에 따라 증가하다가 감소하는 경향을 보였는데, 아래의 표 1를 살펴보면,

표 1

x (mol)	0	0.1	0.2	0.3	0.4	0.45	0.5	0.6
Nb (mol)	1	0.9	0.8	0.7	0.6	0.55	0.5	0.4
Ta (mol)	0	0.1	0.2	0.3	0.4	0.45	0.5	0.6
d_{33} (pC/N)	120	139	167	186	222	285	235	60

압전계수(d_{33})의 수치가 Ta = 0 mol 조성의 120 pC/N에서 Ta = 0.45 mol 조성에서 285 pC/N으로 향상되었다.

실시예 3

도 3은 본 발명의 일실시예에 따른 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성물의 Ta의 조성에 따른 X-ray 회절패턴으로서, Ta의 조성이 0 ~ 0.6 mol인 경우로서 불순물의 형성이 없고 전체적으로 페로브스카이트 상 구조를 보였다. 회절패턴의 보정을 위하여 internal standard로 사용한 고순도 5 N(99.999 %) Si 분말 피크를 이용하였다.

실시예 4

도 4는 본 발명의 일실시예에 따른 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성물의 Ta의 조성에 따른 유전상수의 변화로서, 정방정(tetragonal상)과 입방정(cubic)상간의 상전이온도(T_{T-C} 또는 T_C)와 사방정(orthorhombic)상과 정방정(tetragonal)상간의 상전이(T_{O-T})온도의 변화를 나타내고 있다. Ta의 Nb 치환량(x)이 증가함에 따라 T_C 와 T_{O-T} 가 낮아짐을 나타내고 있다.

실시예 5

도 5는 본 발명의 일실시예에 따른 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 세라믹스 조성물의 Ta의 조성에 따른 유전상수 결과(도 4)로부터 구한 Ta의 Nb 치환량과 상전이온도간의 관계 및 실험결과를 토대로 최소자승법으로 구한 1차 선형관계식이다. T_C 및 T_{O-T} 공히 Ta량(x)의 변화에 따라 선형적으로 변화함을 알 수 있는데, 각각 $T_C = a + bx$, $a = 408.0 \pm 3.4$, $b = -586.9 \pm 9.1$, $T_{O-T} = c + dx$, $c = 184.7 \pm 2.2$, $d = -335.3 \pm 8.8$ 로 표현된다. 얻어진 관계식을 활용하면 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 세라믹스 조성물의 Ta량 조절을 통하여 소재로서 사용되는 다양한 온도에 맞추어 T_C 및 T_{O-T} 를 예상하여 조절할 수 있다.

상기와 같은 $(\text{Na}_{0.53}\text{K}_{0.47})(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 계통의 무연 압전 세라믹스 소재들의 응용범위는 매우 다양하여 휴대폰, 자동차, TV 디스플레이는 물론 각종 의료기기들의 부품에 이르기까지 다양한 분야에서 우리의 생활과 밀접하게 관련되어 있다. 또한 필터, 공진기, 진동자, 센서, 액츄에이터, 변압기 등의 용도 및 형태로 사용되는데 예를 들면 잉크젯의 프린터헤드에서부터 카메라 자동초점조절, 진동모터, 자동차 브레이크, 녹킹센서, 주차센서, 변압기, 초음파 가습기, 치석제거기, 가스레인지 착화소자 등에 이르기까지 응용제품들이 무수히 많으며, 그 시장규모도 매우 크다.

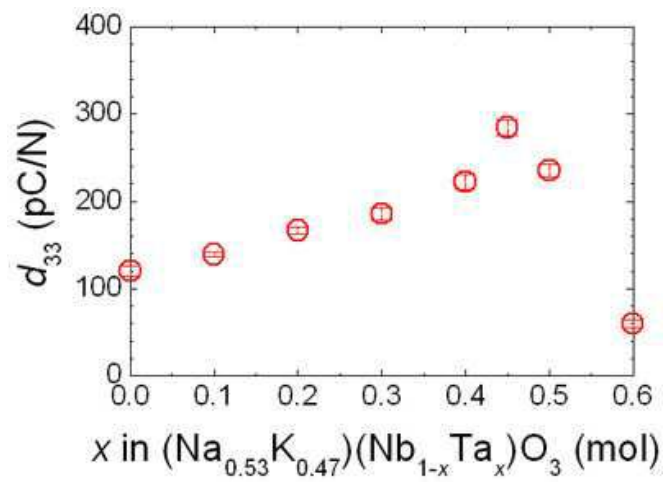
이상에서 설명한 바와 같이, 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자가 본 발명의 기술적 사상을 벗어나지 않는 범위 내에서 여러 가지 치환, 변형 및 변경이 가능하므로 전술한 실시예 및 첨부된 도면에 한정되는 것은 아니다.

도면

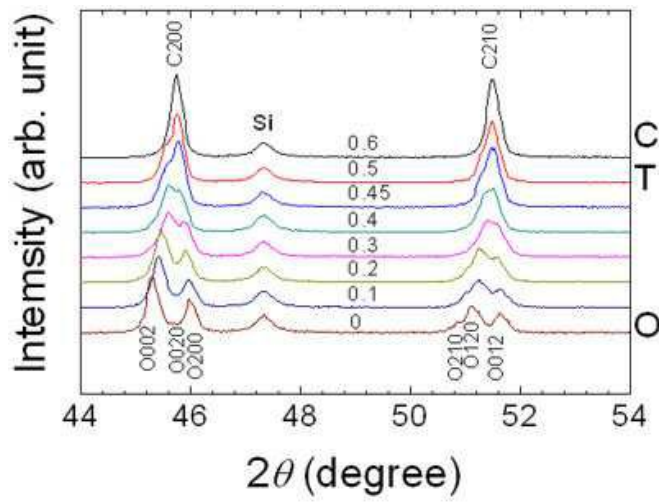
도면1



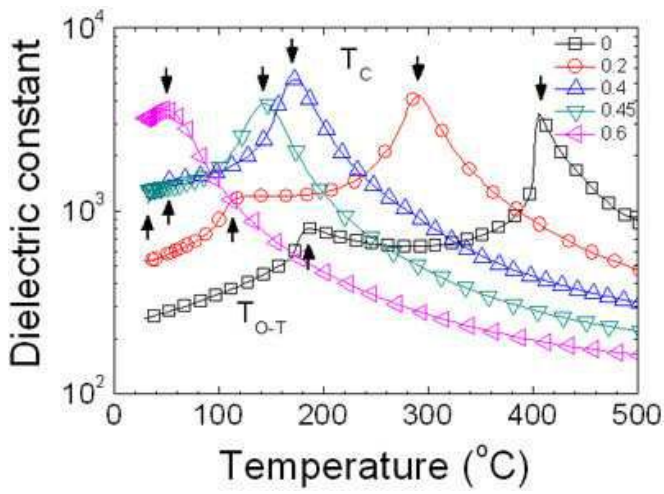
도면2



도면3



도면4



도면5

