

저온소결용 BaTiO₃ 세라믹유전체의 제조

홍성원, 안진용, 최승철
아주대학교 재료공학과

서 문

전자부품의 소형화에 따라 대표적인 수동소자의 하나인 세라믹 유전체 또한 초소형화, 고성능화 등이 요구되고 있으며 이에 따라 유전체재료의 물성적 측면에서도 높은 유전상수, 낮은 유전손실계수 그리고 광역온도에서의 안정성, 높은 절연파괴강도등이 요구된다.

유전상수가 높은 고유전율재료인 relaxor 재료의 실용화가 이루어지고 있으나, 아직 적층세라믹 유전체(MLCC) 재료는 BaTiO₃를 기본으로 하는 것이 주된 것이며, 그 내부전극으로 Pd 와 같은 귀금속을 사용하고 있다. 그러나 저온소결 MLCC의 제조에 있어서 내부전극에 Ag-Pd 합금의 사용으로 MLCC의 제조단가를 낮추려고 노력중이다. 따라서 BaTiO₃계에 저융점을 갖는 Bi계 재료, glass 물질, 그리고 flux 물질을 첨가하여 소결온도를 내리는 연구와 생산이 활발히 진행되어 왔다. 그러나 이와같은 방법은 소결온도가 낮아지는 동시에 유전상수가 감소되는 것이 동반된다. 본 연구에서는 BaTiO₃ 에 Sr과 Pb를 치환시킨 조성에서 저융점의 산화물인 Ba(Cu,Mo)O₃계의 flux물질 첨가에 따른 소결거동과 그 유전특성에 관한 연구를 행하였다.

실험방법

본 연구에서는 저온소결용 BaTiO₃계 세라믹스를 제조하기 위하여 flux 물질로 Ba(Cu,Mo)O₄계의 물질을 첨가하였고 유전체 세라믹스의 큐리온도를 실온으로 낮추기 위하여 Ba 이온을 Sr으로 치환하여 (Pb_{0.04}Ba_{0.61}Sr_{0.35})TiO₃-0.04Ba(Cu,Mo)O₃ 의 조성을 유전체와 flux 물질의 조성으로 하였다. 사용된 출발물질은 PbO, BaCO₃, SrCO₃, TiO₂, CuO, MoO₃ 분말을 사용하였다. 먼저 유전체 세라믹스의 성분을 화학양론비에 맞도록 칭량한후 습식 볼밀링을 통하여 16시간 혼합하였고, 이를 100℃에서 충분히 건조하였다. 혼합된 분말은 900℃에서 2시간 하소하였고, 하소후 분말의 응집을 제거하기 위하여 아트리터로 2시간 밀링후 flux 물질과 결합제를 혼합한후 30분간 재밀링을 행하여 유전체분말을 합성하였다. 합성된 분말은 직경 12mm의 금형을 사용하여 단위면적당 1톤의 압력으로 성형체를 제조하였으며, 성형체는 1050~1200℃의 온도영역에서 2시간 소결을 행하였고, 소결시 승온속도는 150℃/min 으로 유지하였다. 소결체의 양면에 Ag paste 를 바른후 800℃ 에서 10분간 전극소결을 행하였다. 제조된 시편의 유전특성을 조사하기 위하여 Impedance Analyzer 를 사용하여 정전용량을 조사하였으며, 소결시 시편에 나타나는 결정상의 변화와 미세구조의 변화는 X-선회절분석기와 SEM 을 통하여 관찰하였다.

결과및고찰

저온소결용 유전체를 제조하기 위하여 flux 물질을 첨가하여 1200℃이하의 온도에서 소결한 소결체는 소결온도가 증가할수록 소결밀도가 증가하였으며, 1150℃에서 급격한 시편의 수축을 나타내었으며, 입자의 성장이 이루어졌음을 알수있었다. 소결온도의 감소는 flux 로 첨가된 Ba(Cu,Mo)O₄ 물질에서 CuO-MoO₃ 의 액상생성에 의해 소결이 촉진되었을 것으로 사료된다. 결정상의 분석을 행한 결과 소결이 충분히 이루어지지 않은 1100℃이하의 온도에서 소결된 시편에서는 BaTiO₃ 상 많이 존재하였으나, 1150℃이상의 온도에서 소결된 시편은 액상의 생성으로 인한 제2상이 생성되었음을 볼 수 있었다. 이러한 소결체의 유전특성을 조사한 결과 큐리온도는 125℃에 있음을 관찰할 수 있었으며, 실온에서의 유전율은 2000 미만이었다.

본 연구에서는 큐리온도를 실온으로 낮추기 위하여 Sr을 치환시키는 방법으로 유전체의 조성을 (Pb_{0.04}Ba_{0.61}Sr_{0.35})TiO₃ 로 하였다. 유전율의 최대피크를 25℃로 조절하여 유전특성을 관찰하였다. 그러나 SrCO₃ 가 첨가됨에 따라 소결온도가 증가하여 1150℃의 소결온도에서도 치밀한 소결체를 얻을 수 없었으며, 이때의 최대 유전율은 4000 정도를 나타내었다. 1200℃에서 소결된 시편의 경우에 유전율은 약 8000 이었다.

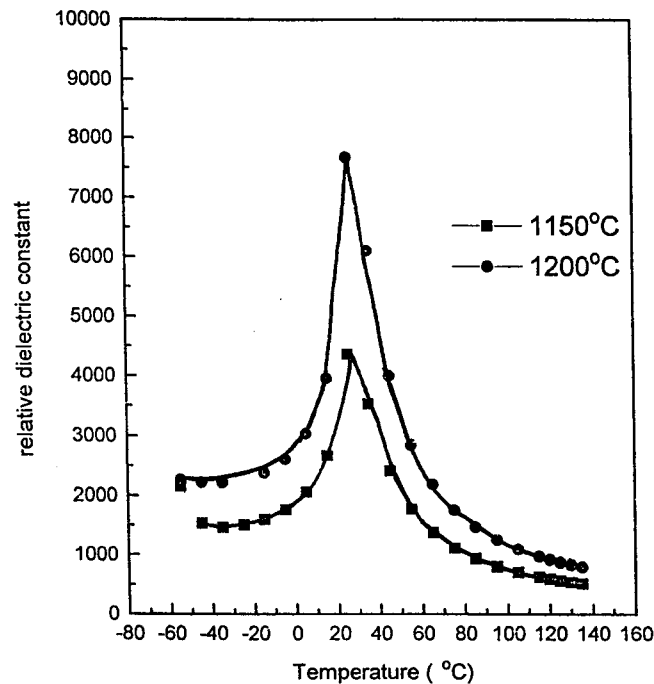


Fig. 1. Temperature dependence of dielectric constant for (Pb_{0.04}Sr_{0.35}Ba_{0.61})TiO₃-0.04Ba(Cu,Mo)O₃ ceramics sintered at 1150°C and 1200°C.