

MgO를 첨가한 Ba_xSr_{1-x}TiO₃ 후막의 소결거동과 가변 유전특성

전소현, 김인성*, 송재성*, 윤준도

경남대학교 재료공학, 한국전기연구원 전자기소자연구그룹*

Effect of Sintering and Tunable Dielectric Properties of BST Thick Films with MgO addition

So-Hyun Jeon, In-Sung Kim*, Jae-Sung Song*, Jon-Do Yoon

Dept. of material engineering, Kyungnam University

Electric & Magnetic Devices Group, Korea Electrotechnology Research Institute*

Abstract : (BaSr)TiO₃ thick films were prepared by tape casting method, using BaTiO₃ and SrTiO₃ powder slurry in order to investigate dielectric properties. With MgO additives, the sintering density was 5.8 g/cm³ and the BST sample exhibited the maximum dielectric constant, tunability at temperatures near phase transition point. Dielectric loss be on the decrease because the interface is not a pore. BST sample be applicable on tunable device.

Key Words : BST, MgO, tunability

1. 서 론

전자 산업의 발전은 구성재료인 부품소재에 크게 의존하고 있으며, 유전체의 물리적 특성을 이용한 지능형 매칭 네트워크, 지능형 VCO 같은 차세대 RF부품을 개발하고 있다. 부품소재로 활용하기 위한 재료는 무엇보다 손실이 낮아야 한다. 기존에 유전체 재료로 사용하고 있는 (Ba_xSr_{1-x})TiO₃는 높은 유전율과 그에 따른 손실도 높다. 상호확산과 비정상적인 입자성장을 막아 손실을 줄임으로써 유전특성을 향상 시킬 수 있는 첨가제가 필요하다. 본 연구에서는 화학적으로 안정한 MgO를 첨가하여 첨가량에 따른 유전특성의 변화에 따른 불규칙한 가변 유전 특성의 문제점 및 해결을 위해 연구하였다.

2. 실험

(Ba_{0.6}Sr_{0.4})TiO₃ 합성을 위해 순도가 99.9% 이상인 BaCO₃(cerac), SrCO₃(aldrich), TiO₂(cerac)를 에탄올과 습식 혼합 후 건조하여 1200℃에서 하소하였다. 하소된 분말을 불밀, 건조 후 체가름(100mesh) 하여 BST 분말을 합성하였다. 합성된 BST 분말에 MgO를 1~50wt%를 첨가하여 슬러리 공정을 적용하였으며, 분말과 용매(에탄올과 MEK(methyl ethyl ketone))를 혼합하였다. 분산제는 세라퍼스(ceraparse)-111을 분말의 1wt%를 첨가하였으며, 결합재는 PVB(poly vinyl butyral)를 6wt%, 가소제DBP(dibutyl phthalate)를 4.2wt% 첨가하여 불밀 후, 슬러리에 있는 기포를 제거하고 닥터블레이드를 이용하여 두께가 100~150μm 정도의 후막을 성형 후 소결하였다. 적절한 소결온도를 알기 위한 선행 실험으로 1300~1400℃의 범위에서 50℃씩 차이를 두어 소결하였으며, 그 결과 1400℃ 이하의 온도에서는 소결이 이루어지지 않았다. 소결온도는 1400℃로 고정하여 실험을 진행하였다.

소결체의 밀도는 아르키메데스(archimedes)법을 이용하여 측정하였고, 소결온도에 따른 후막의 결정성 확인을 위해

XRD분석을 하였고, 미세구조를 관찰하기 위하여 주사전 자현미경으로 결정립 크기와 형상을 파악했다. 고주파 가변 유전특성을 측정하기 위해 지름이 1.5 mm의 금(Au)전극을 코팅 하고 Impedance analyzer (4194A)로 DC바이어스 전압을 인가하면서 정전용량을 측정하여 유전상수를 계산하였으며, 식 (1)과 같이 가변율(tunability)을 계산하였다.

$$Tunability(\%) = \frac{\epsilon_r(0) - \epsilon_r(app)}{\epsilon_r(0)} \times 100 \quad (1)$$

또한 -60℃부터 180℃까지 5~10℃간격으로 온도를 가변 시키면서 상전이온도를 측정하여 유전특성을 고찰하였다. 측정주파수는 100kHz이며, 스팩 바이어스는 500mV 이다.

3. 결과 및 고찰

MgO를 1, 3, 10, 50wt% 첨가한 소결밀도를 그림 1에 나타내었다. 소결밀도는 MgO의 양이 증가할 수록 작아졌다. MgO의 첨가량이 증가하였으나 소결밀도가 작아지는 이유는 그림 2의 미세구조에서도 관찰된다.

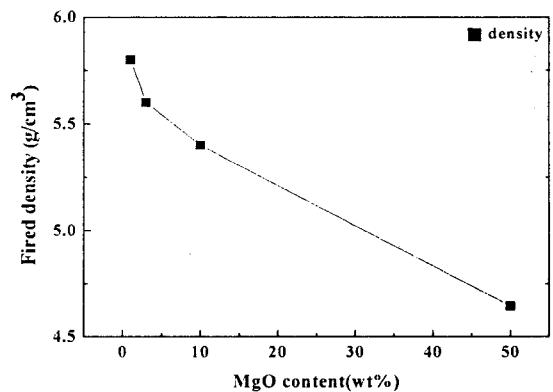


그림 1. MgO 첨가량에 따른 BST의 소결밀도

그림 2는 MgO 첨가량의 변화에 따른 미세구조사진이다.

첨가량에 상관없이 결정립의 크기가 0.5~1.5 μm 로 변화가 거의 없으며, 1wt%인 것은 계면에 MgO가 존재함으로 기공이 줄어 소결밀도가 가장 크게 나타났고, 3wt%인 것은 계면에 존재한 MgO의 첨가량이 늘어나면서 계면에서 결정들이 성장하였고, 10wt%에서 MgO의 결정은 BST 결정과 비슷한 크기로 성장하였다. MgO 결정들이 성장하면서 BST와의 계면에서 발생한 미세한 기공이 소결밀도의 감소를 가져온 것으로 보인다.

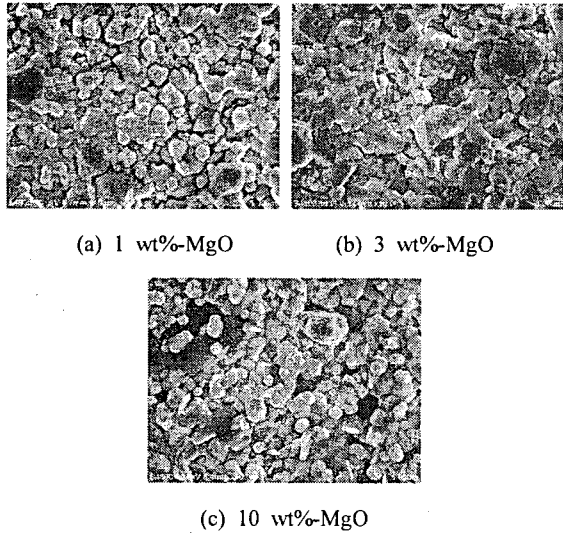


그림 2. 소결온도 1400 $^{\circ}\text{C}$ 인 BST의 MgO 첨가량에 따른 미세구조

그림 3은 MgO 첨가량에 따른 BST의 유전율을 나타낸 것이다. -70 $^{\circ}\text{C}$ 에서부터 180 $^{\circ}\text{C}$ 까지 온도를 높여주면서 상전이온도를 측정하였다. 상전이온도는 첨가제를 넣지 않았을 때와 비교하여 낮아졌으며 유전상수 또한 낮아졌다. 유전손실 또한 낮아졌으므로 전기적특성은 좋아질 것으로 예상된다.

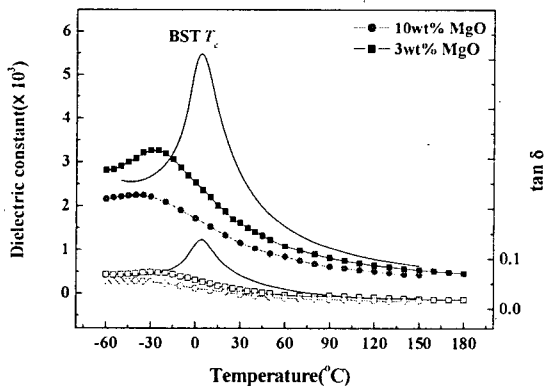


그림 3. MgO 첨가량에 따른 BST의 유전율

그림 4는 MgO 첨가량에 따른 BST의 tunability를 나타낸 것이다. -20 $^{\circ}\text{C}$ 일 때의 가변율을 나타낸 것이다. 가변율이란 0V에서의 유전상수와 특정한 바이어스 전압에서의 공진 특성의 변화를 나타낸 것이다. 즉, 정전용량이 변화하여 가변유전 특성을 갖게 되는 것이다.

상전이온도를 전후로 유전상수의 차이와 가변율의 변화가 나타났다. 첨가량이 적을 때는 MgO가 계면사이에 존재하여 기공이 줄어들어 특성이 좋을 것으로 예상되며, tunability도 높은 것으로 나타났다. MgO의 첨가량이 많아지면 계면에 존재하는 결정들이 성장하는 과정에서 미세한 기공이 생겨 유전특성이 낮아지는 것으로 나타났다. 가변율은 MgO 첨가량이 적을수록 높은 값을 나타내었다. 즉 MgO의 첨가로 유전율은 낮아졌지만 손실의 저하로 소재재료로 활용하기에는 좋은 특성을 나타냈다.

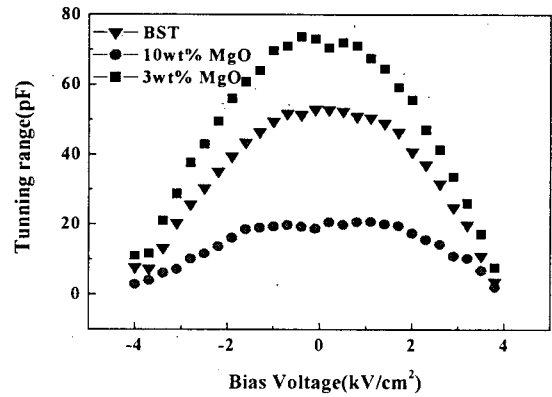


그림 4. MgO 첨가량에 따른 BST의 tunability

4. 결론

본 연구에서는 $(\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x})\text{TiO}_3$ 강유전체를 $X=0.6$ 으로 합성된 BST 분말에 저온소결을 위해 MgO를 첨가하여 후막을 제조하여 소결한 결과 소결밀도는 첨가량이 증가할수록 작아졌으며 결정들이 0.5~1.5 μm 로 성장을 억제하였고 MgO의 첨가량이 늘어날수록 MgO 결정이 성장하여 계면에 미세한 기공이 생성되었다. 상전이온도는 0 $^{\circ}\text{C}$ 이하로 낮아졌으며 첨가량이 증가할수록 tunability는 급격히 떨어졌다. 즉 MgO의 소량 첨가하면 소결밀도도 높아지면서 유전특성의 저하를 줄일 수 있으며 손실이 줄어 소자 응용을 위한 전기적특성의 저하도 줄일 수 있을 것으로 고찰된다.

참고 문헌

- [1] Moon-Kee Lee, Nam-Young Kim, Young-Hie Lee, Trans. KIEE, Vol. 50C, No. 3, MAR, 2001
- [2] D. S. Heo, W. S. Lee, S. J. Jeong, J. S. Song, F. Utsuno, and B. K. Ryu, J. Kor. Ceram. Soc., Vol. 41, No. 6, 444-49, 2004
- [3] Sohyun Jeon, Insung Kim, Bokki Min, Jaesung Song, Jondo Yoon, Journal of the Korean Ceramic Society Vol. 43, No. 7, pp.421~426, 2006.
- [4] I S Kim, B K Min, J S Song, S Y Jeon., Proceeding of the KIEE Annual Summer Conference 2005, pp.2013-2014, 2005.7.18-20
- [5] Ki Hyun Yoon, Hyun Min Shin and Dong Heon Kang, Journal of the Korean Ceramic Society, Vol.26, No.6, PP.843-849, (1989).