

EI2

내환원성 $(\text{Ba}, \text{Ca}, \text{Sr})(\text{Ti}, \text{Zr})\text{O}_3$ 계에서 CeO_2 가 유전특성에 미치는 영향

The Effect of CeO_2 Contents on the Dielectric Properties
of Non-reducible $(\text{Ba}, \text{Ca}, \text{Sr})(\text{Ti}, \text{Zr})\text{O}_3$ System

황진현, 최상근, 한영호

성균관대학교 재료공학과

적층 세라믹 콘덴서(MLCC)에서 유전체층의 박층화 및 다층화 추세에 따라 보다 작은 입자크기의 유전체 층이 요구되고 있다. 내환원성 Y5V 조성인 $(\text{Ba}, \text{Ca}, \text{Sr})(\text{Ti}, \text{Zr})\text{O}_3$ 계의 경우 A 자리 과잉일 경우 나타나는 Ca의 Ti 자리 치환에 의한 환원억제 효과가 알려져 있으나 선택된 조성만으로는 소결체의 입자크기를 줄이는데 한계가 있다. 본 연구에서는 희토류 산화물인 CeO_2 를 첨가하여 유전특성과 미세조직의 변화를 관찰하였다. 또한 재질의 신뢰성 평가를 위하여 고온 전기전도도와 함께 100°C , $5\text{KV}/\text{cm}$ 조건에서 ALT(accelerated lifetime test)를 수행하였다.

내환원성 조성시편의 제작은 일반적인 세라믹 제조공정을 따랐다. 시편의 소결은 Ni 전극을 성형체에 도포하여 동시에 소결하였으며 소결시 Ni 전극의 산화를 방지하기 위해 환원성분위기로 유지하였다. 환원성 분위기는 $1.5\% \text{H}_2 - 98.5\% \text{N}_2$ 기체를 20°C 의 항온수조에 통과시켜 사용하였으며 1300°C 소결의 경우 소결온도에서의 산소분압은 $\sim 10^{-11} \text{ atm}$ 이었다.

$(\text{Ba}, \text{Ca}, \text{Sr})_{1.015}(\text{Ti}, \text{Zr})\text{O}_3$ 계에서 Ce의 첨가량을 0.5, 1.0, 1.5, 3.0 mol%로 변화시켰다. T_c (Curie 온도)의 낮은 온도로의 이동과 함께 Ce 1.0 mol%까지는 10,000 이상의 유전상수와 유전특성의 온도안정성이 향상되었으나 그 이상 첨가되었을 경우 유전특성의 anomaly와 함께 유전상수값의 현저한 감소가 관찰되었다. Ce의 첨가로 입성장이 억제되었으며 그 효과는 첨가량과 소결온도에 따라 다르다. Ce의 이온반경 차이로 인하여 격자내에서 Ba 자리를 치환하리라 사료되며 SrCeO_3 첨가실험과 고온 전기전도도 실험은 이러한 사실을 간접적으로 뒷받침했다. 또한 누설전류 측정결과, Ce이 첨가된 조성의 경우 Ce_{Ba} 를 보상하는 전자로 인하여 초기 누설전류 값이 다소 증가하나 1.0 mol% 첨가까지는 측정조건 전반에 걸쳐 안정한 열화(degradation)특성이 관찰되었다. 1.5 mol% 이상 첨가될 경우 10^{-4}A 이상의 높은 누설전류값이 관찰되었다. Ce을 이용하여 Ni 전극을 이용한 환원성 소결에서도 작은 입자와 함께 높은 유전상수, 낮은 유전손실율과 유전율의 온도 안정성을 갖는 내환원성 재질을 구현할 수 있었다.