

첨가물에 따른 $(\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4})\text{TiO}_3$ 의 저온소결 및 유전특성

전소현*, 김인성**, 송재성**, 민복기**, 윤준도*

경남대학교 재료공학과*, 한국전기연구원 전자기소자연구그룹**

Low Temperature Sintering and Dielectrics Properties of $(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{TiO}_3$ Ceramics by Addition

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

Dept. of material engineering, Kyungnam University*

Electric & Magnetic Devices Group, Korea Electrotechnology Research Institute**

Abstract : To recognize whether admixture affects some $(\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4})\text{TiO}_3$ powder in this research Li_2CO_3 , MgO , MnO_2 adding each 3 wt % by Tape casting method thick film make. Sintering temperature lowered 1300°C adding Li_2CO_3 , and density is 5.942 g/cm^3 , and specific inductive capacity increases about decuple and displayed 4000. Climbed sintering temperature 1400°C adding MgO , specific inductive capacity reduced 1/2 times. Lowered sintering temperature 1325°C low adding MnO_2 .

Key Words : BST, Li_2CO_3 , MgO , MnO_2 , Tape casting

1. 서 론

본 연구에서는 $(\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4})\text{TiO}_3$ 분말에 Li_2CO_3 , MgO , MnO_2 를 각각 3wt%를 첨가하여 슬러리 공정을 거친 후, Tape-casting 방법으로 후막을 제조하였다. 첨가물이 미치는 소결 온도의 변화와 그에 따른 물리적 특성과 유전특성에 대하여 고찰하였다.

2. 실험

BST를 일반적으로 알려진 SSR방법을 이용하여 합성하였으며, $(\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4})\text{TiO}_3$ 합성분말에 Li_2CO_3 , MgO , MnO_2 를 3 wt%씩 첨가하여 볼밀을 24시간 한 후, 100°C 에서 24시간을 건조시켜 세 가지 조건의 분말을 준비하였다. 합성된 분말과 용매의 비율을 7:3으로 사용하고 용매는 에탄올과 MEK를 6:4의 비율로 섞어 사용하였다. 분산제는 분말의 1 wt%를 첨가하였다. 분말, 용매, 분산제와 지름이 6.2 mm인 볼을 24시간 이상 볼밀하고, 분말의 6 wt%의 결합제를 넣고 12시간 이상 볼밀하고, 결합제의 70%의 가소제를 넣어 12시간 이상 볼밀했다. 볼밀이 끝나고 탈포 하여 만들어진 슬러리를 doctor blade에 넣고 테이프를 성형하여 건조 시키고 절단 했다. 절단한 시편들은 전기로에 넣어 탈지와 소결을 했다. 두 가지 공정의 조건은 그림 1에 나타냈다. 위와 같은 방법으로 성형한 BST 후막은 소결온도에 따른 후막의 상형성 정도를 고찰하기 위하여 XRD분석을 하였으며, 소결체의 밀도는 Archimedes원리를 이용하여 측정하였다. 소결온도에 따른 BST의 미세구조를 알아보기 위해서 소결체의 표면을 FE-SEM으로 관찰하여 결정립 크기와 기공의 분포를 확인하였다.

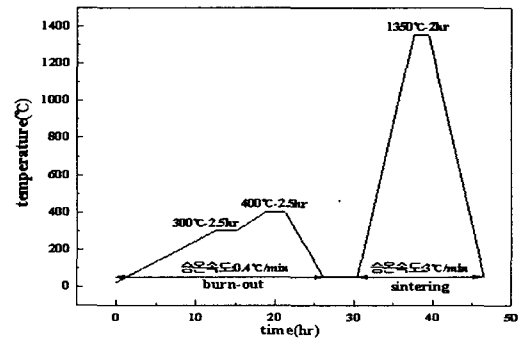


Fig. 1 Condition of burn-out & sintering

3. 결과 및 고찰

본 연구에서는 첨가제에 따라 4가지의 온도로 소결을 진행하였다. 그중 좋은 특성이 나타난 것들만을 결과에 나타내도록 하겠다. 그림 2는 첨가제들을 첨가한 BST 시편의 소결밀도와 수축률을 나타낸 것이다. 밀도는 Li_2CO_3 첨가한 BST 시편이 가장 높은 값 6.942 g/cm^3 을 나타내었으며, 수축률도 밀도와 같은 경향을 나타내었다.

그림 3은 첨가제를 첨가한 BST 시편의 X-ray 분석 결과를 나타낸 것이다. 첨가된 Li_2CO_3 , MnO_2 의 피크는 나타나지 않는 것으로 BST의 페로브스카이트 구조에 영향을 주지 않고 합성되었다. 하지만 MgO 는 200면의 피크가 발견되었으며 BST의 110면의 피크가 뚜렷하게 나타난 것으로 보아 MgO 를 첨가한 시료의 BST 소결이 가장 잘 이루어진 것을 예상할 수 있었다.

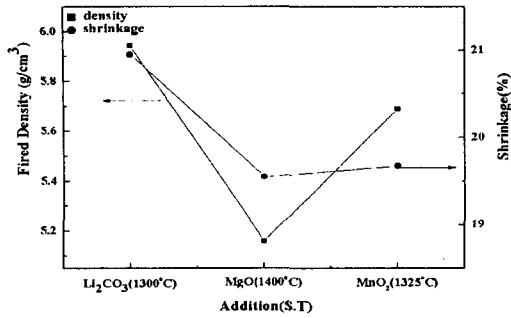


Fig. 2 Fired density & shrinkage of (Ba_{0.6}Sr_{0.4}) TiO₃ with Li₂CO₃, MgO, MnO₂.

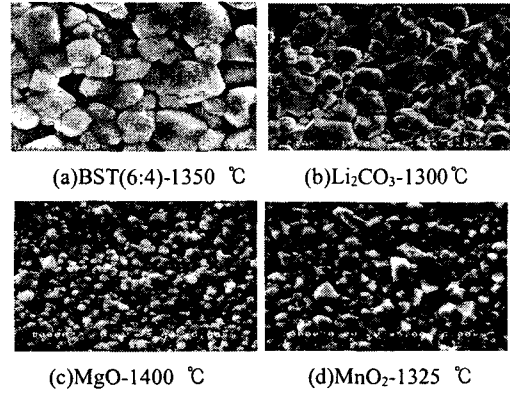


Fig. 4 SEM micrographs of (Ba_{0.6}Sr_{0.4}) TiO₃

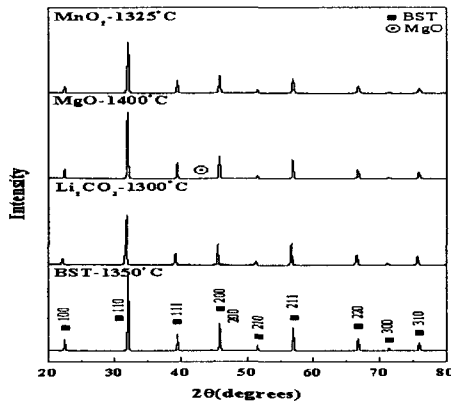


Fig. 3 XRD of (Ba_{0.6}Sr_{0.4}) TiO₃ with Li₂CO₃, MgO, MnO₂

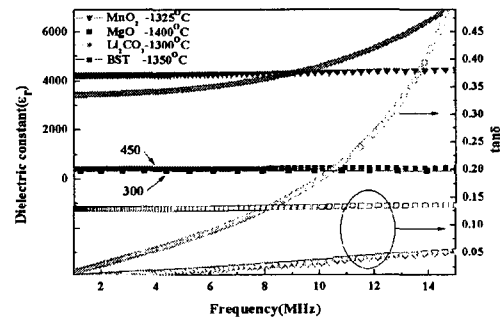


Fig. 5 Dielectric constant & Dielectric loss of (Ba_{0.6}Sr_{0.4}) TiO₃ with Li₂CO₃, MgO, MnO₂ with Li₂CO₃, MgO, MnO₂

그림 4는 첨가제를 첨가한 BST 시편의 미세구조 사진이다. BST와 Li₂CO₃를 첨가한 시료의 결정들은 비교적 크며 많은 기공을 관찰할 수 있다. 반면 MgO를 첨가제로 넣은 시료의 결정들은 크기가 작으며 고르고 기공이 거의 없다. MnO₂를 첨가한 시료에서는 비정상적인 결정을 발견할 수 있다. BaTiO₃ 세라믹스는 소결과정 중 쉽게 비정상 입성장이 유발되는 계이며, 비정상 입성장이 일어나게 되면 조직의 불균일 및 커다란 입자속에 포획된 기공 등의 원인으로 대부분의 경우 재료의 기계적 특성이나 전기적 특성에 악영향을 미친다[1]. 비정상결정으로 인하여 수축률과 밀도에 영향을 준 것으로 사료된다. 그림 5에서는 MnO₂첨가한 시료의 유전율이 가장 높으며, 손실 또한 가장 낮게 나타났다. Li₂CO₃첨가한 시료의 유전율과 손실은 변화가 큰 것으로 보아 Tunability가 좋을 것으로 예상된다. MgO첨가한 시료의 유전율은 순수 BST 시료의 값 보다 작은 값을 나타내고 손실은 높게 나타나 첨가제를 첨가함으로써 유전특성은 나빠졌다.

4. 결론

본 연구에서는 (Ba_{0.6}Sr_{0.4})TiO₃분말에 Li₂CO₃, MgO, MnO₂를 각각 3wt%를 첨가하여 첨가물이 미치는 소결 온도의 변화와 그에 따른 물리적 특성과 유전특성에 대하여 고찰한 결과 다음과 같다.

Li₂CO₃를 첨가한 시편의 소결밀도가 6.942 g/cm³로 5.7 g/cm³인 이론밀도보다 상당히 높은 값을 나타내었다. 수축률 또한 높은 값을 나타내었다. XRD 회절피크에서 첨가제의 피크는 나타나지 않았으므로 BST의 페로브스카이트 구조에 영향을 주지 않고 합성되었으며, SEM 이미지 분석 결과 비정상입자성장과 기공이 관찰되었다. 유전율은 MnO₂첨가한 시료가 4000이상으로 가장 높으며, 손실 또한 0.05이하로 가장 낮게 나타났다.

참고 문헌

[1]Tae-Heon Lee, Jeong-Joo Kim, "Abnormal Grain Growth Behaviors of BaTiO₃ Ceramics with Controlling of Particle Size Distribution of Calcined Power", Journal of the Korean Ceramic Society, Vol.32, No.2, pp.147-154, 1995.-