

**MgO가 첨가된 (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> 후막의 유전특성**

강원석, 남성필, 이성갑\*, 배선기\*\*, 이영희  
 광운대학교, 경상대학교\*, 인천대학교\*\*

**Dielectric properties of MgO doped (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> thick films**

Won-Seok Kang, Sung-Pill Nam, Sung-Gap Lee\*, Seon-Gi Bae\*\*, Young-Hie Lee  
 Kwangwoon University, Gyeongsang University\*, University of Incheon\*\*

**Abstract** - The dielectric properties of Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub>(BST) and MgO-doped BST ceramics were investigated for tunable microwave applications by sol-gel method. The effects of MgO mixing with BST. It is observed that Mg substitution into BST causes a shift in the cubic-tetragonal BST phase transition peak to a lower temperature. MgO-substituted BST and MgO-mixed phases exhibit homogeneous and broadened BST phase transition peaks. Mg substitution into BST has a significant effect on the grain size reduction. Dielectric constant and loss is enhanced with decrease MgO dopant.

**2.2 측정방법**

sol-gel법으로 제작된 시편의 결정구조 및 결정성에 대해 조사하기 위해서 X-선 회절분석을 하였으며, 표면에서의 결정립의 형태, 결정립계 및 기공 등의 미세구조는 전자현미경으로 분석하였다. 전기적 측정을 위하여 스크린 프린팅법을 이용하여 Ag 상부전극을 형성시킨 후, 주파수에 따른 유전 특성은 Impedance Analyzer(HP4192A)를 사용하여 측정된 값과 시편의 두께 및 면적을 이용하여 계산하였다.

**3. 결과 및 고찰**

**1. 서 론**

최근에 고주파 유전체 소자에 대한 연구가 많이 진행되고 있다. 응용소자로는 varactor, delay line, filter, phase shifter, voltage controlled oscillators(VCO)등[1]이 있으며, 이런 응용을 위한 유전체 물질로는 SrTiO<sub>3</sub>(ST), Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>TiO<sub>3</sub>(BST) 등이 있다. 고주파 유전체 물질이 소자에 응용되기 위해 요구되는 특성으로는 높은 유전상수, tunability, 낮은 유전손실 등이 있다. BaTiO<sub>3</sub>와 SrTiO<sub>3</sub>는 모두 perovskite(ABO<sub>3</sub>) 구조로서 가장 널리 이용되는 유전체 재료들이다. 그 중 SrTiO<sub>3</sub>(ST)는 단결정에서는 유전율이 매우 높으나, 다결정이 되면서 유전율이 감소하고, 또한 저온에서는 높은 유전율 및 낮은 유전손실을 보이나, 상온으로 온도가 증가됨에 따라서 유전특성이 나빠지는 문제가 있다.[2-6] BaTiO<sub>3</sub>(BT)는 상전이 온도가 120 ℃로서 상온에서 강유전성 (ferroelectric phase)을 갖는 재료이다. 이러한 SrTiO<sub>3</sub>의 특성과 BaTiO<sub>3</sub>가 지니고 있는 우수한 전기적 특성이 동반되는 고용체는 많은 응용 분야에서 주목을 받고 있다.

전기기기의 다양화 및 전력수요의 증가와 전력시스템의 자동화에 따라서 기존의 소재보다 우수한 특성을 가진 신소재의 개발이 필수적인 것으로 인식되고 있다. 게다가 전기기기의 소형화 및 경량화에 따라서 기존의 소자를 후막이나 박막으로 제작하고자 하는 연구도 관심이 높아지고 있고, 이에 대한 연구는 미국, 일본을 중심으로 강유전 박막에 집중되고 있으며, 낮은 구동전압, 경제적인 제작, 디자인의 유연성, 집적화 등의 장점을 가지고 있는 박막에 관한 연구가 활발히 진행되어 왔다.

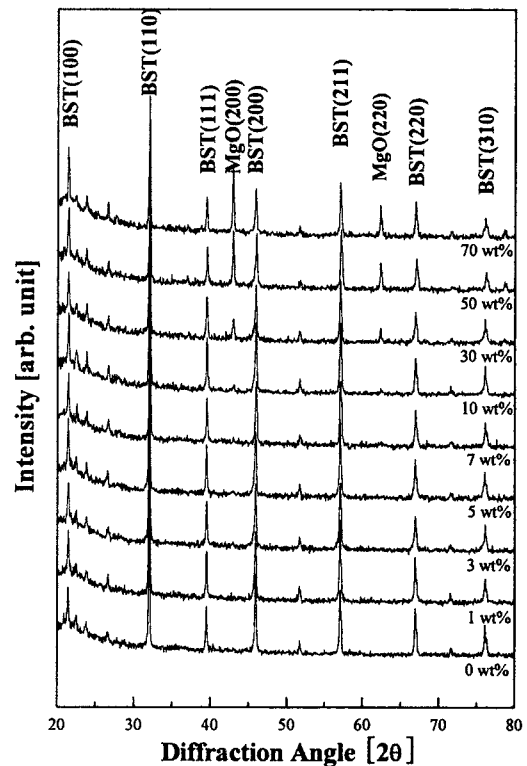
세라믹스를 박막화하는 방법에는 반도체 분야에서 주로 쓰이는 박막 제조 방법인 sputtering method, CVD, sol-gel법 등이 있으며, 방법에 따라 장단점이 있기 때문에 응용분야와 목적에 따라 적절한 제조방법이 선택되어야 한다. 특히, sol-gel법에 의한 박막의 제조는 금속 유기계 화합물 용액을 spin이나 dip 코팅에 의해 박막을 형성한 후, 열처리를 통해 박막의 결정화를 이루는 방법으로, 화학적 조성의 제어가 뛰어나고 균질성이 좋으며, 대규모 면적의 제작이 가능하고 다른 방법과 달리 고가의 장비가 필요치 않아 경제적인 장점이 있다.

본 연구에서는 (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub>에 MgO를 첨가하여 졸겔법으로 분말을 제조하였고 스크린 프린팅법으로 막을 제작하여 구조적, 전기적 특성을 고찰하였다.

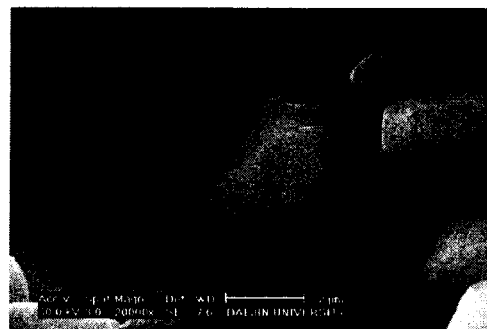
**2. 본 론**

**2.1 실험방법**

본 연구에서는 Budd[7] 등이 제시한 방법을 수정하여 강유전상을 갖는 (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> 분말을 제조하였다. 출발물질로는 고순도의 Ba-acetate와 Sr-acetate 시료를 acetic에 용해시킨 후 2-MOE와 혼합한 Ti-isopropoxide 용액을 첨가하였다. 그 후 60 ℃에서 가수분해 반응을 시킬에 따라 혼합용액은 점차 겔화되기 시작하였으며, 120 ℃ 오븐에서 충분히 건조시켰다. 건조된 분말을 지르코니아 유발을 이용하여 분쇄하였으며, 1100 ℃에서 하소하였다. 그 후 하소한 분말을 재분쇄한 후 MgO 분말을 첨가하여 알콜을 분산매로 하여 지르코니아볼로 24시간동안 혼합분쇄하였다. 혼합분쇄한 분말을 120 ℃ 오븐에서 24시간동안 건조한 후 건조한 시료를 재분쇄하였고 325 mesh의 체를 이용하여 체가름을 하였다. 유기물 결합제(Ferro. B75001)와 7:3의 비율로 혼합하여 페이스트상을 만든 후, 스크린 프린팅법을 이용하여 시편을 제작하였다. 기판으로는 고순도 알루미늄 기판을 사용하였으며 전기적 특성을 측정하기 위하여 스크린 프린팅법을 이용하여 Pt 전극을 코팅하였으며, 상부전극으로는 Ag를 사용하였다.



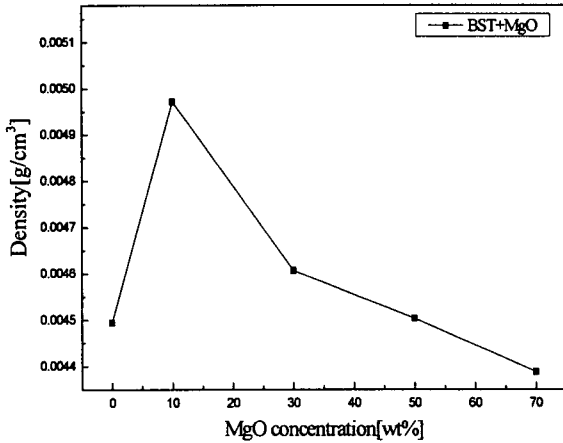
〈그림 1〉 첨가량에 따른 MgO doped (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub>의 XRD pattern



〈그림 2〉 (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> + MgO 30 wt% 의 미세구조

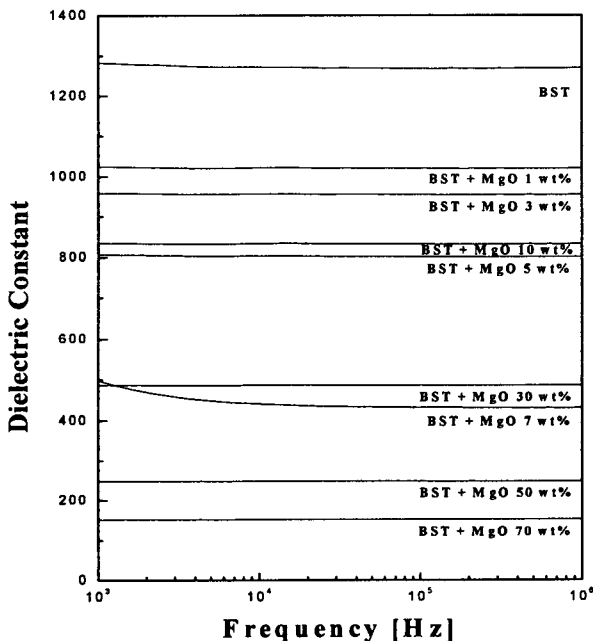
그림 1은 순수한 BST와 BST에 1~70 wt%의 MgO를 첨가한 시편의 XRD 그래프이다. 순수한 BST와 BST에 10 wt%의 MgO를 첨가한 시편까지는 BST 페로브스카이트상만 관찰된다. 이것은 소량의 MgO가 첨가되면 Mg 원자가 BST의 Ba, Sr 또는 Ti와 치환된다는 것을 나타낸다. BST에 30 wt% 이상을 첨가한 시편에서부터는 BST상과 MgO상을 동시에 볼 수 있다.

그림 2는 30 wt% MgO가 첨가된 (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> 세라믹스의 미세 구조이다. 30 wt% MgO가 첨가된 (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> 세라믹스의 표면 및 단면 구조에서 MgO를 관찰할 수 있었고 순수한 BST 세라믹스의 결정립의 크기(약 10~20 μm)와 비교했을 때 30 wt% MgO가 첨가된 (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> 세라믹스의 결정립 크기가 3~5 μm 정도로 상당히 감소한 것을 알 수 있다. 이것은 MgO가 결정립의 성장을 억제하기 때문인 것으로 생각된다.



〈그림 3〉 MgO 첨가량에 따른 (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub>의 밀도

그림 3은 MgO 첨가량에 따른 (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> 세라믹스의 밀도이다. MgO의 첨가량이 10 wt%로 증가함에 따라 밀도는 증가하는 반면 MgO의 첨가량이 10wt% 이상 첨가한 샘플의 경우 밀도는 감소하였다. 이는 MgO의 첨가량이 상대적으로 적은 10wt%일 경우 Mg 원자가 BST의 Ba, Sr 또는 Ti와 치환되어 밀도가 증가하지만 그 이상의 경우는 치환되고 남은 MgO와 BST상의 격자 불일치로 인해 밀도가 감소하는 것으로 사료된다.



〈그림 4〉 주파수에 따른 MgO doped (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub>의 유전율

그림 4는 1200 °C에서 소결한 시편의 주파수에 따른 유전율 값을 나타

내고 있다. 모든 시편에서 주파수에 따라 유전율값이 완만하게 감소하는 유전본산의 특성이 거의 나타나지 않고, 주파수에 따른 유전율값이 일정하게 나타났다. MgO가 첨가되지 않은 순수한 BST의 유전율이 가장 높았고, 가장 많은 MgO가 첨가된 BST + 70 wt%의 경우에 가장 낮은 유전율을 보였다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 sol-gel 법으로 제조한 (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub> 분말에 다양한 비율의 MgO를 첨가하여 이에 따른 구조적 특성과 유전적 특성을 고찰하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. BST에 MgO를 10 wt%까지 첨가했을 때는 BST 페로브스카이트상만 관찰되지만, 그 이상 첨가하면 BST상과 MgO상이 동시에 관찰된다.
2. 일반적인 BST보다 BST에 MgO를 첨가했을 때 결정립의 크기가 작아진다.(3~5 μm)
3. 주파수에 따른 유전율이 거의 일정하게 나타났고, MgO의 첨가량이 증가할수록 유전율이 떨어졌다.
4. MgO의 첨가량이 10 wt%일 때 0.00497의 가장 큰 밀도를 나타냈다.

#### [참 고 문 헌]

- [1] Sea-Fue Wang, Jinn P. Chu, Chen Chun Lin, T. Mahalingamb, "Dielectric properties and microstructure of nano-MgO dispersed Ba<sub>0.3</sub>Sr<sub>0.7</sub>TiO<sub>3</sub> thin films prepared by sputter deposition" J. Appl. Phys. 98, 014107, 2005.
- [2] Young-Ah Jeon, Eun-suck Choi, taе-suck Seo and Soon-Gil Yoon. "improvementa in Tunability of (Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub>) thin films by use of metalorganic chemical vapor deposited (Ba,Sr)RuO<sub>3</sub> interfacial layers" a ppl. Phys. Lett., 79, pp. 1012-1014, 2001.
- [3] Howard Diamond, "Variation of permittivity with Electric Field in perovskite Like Ferroelectrics", J. Appl. Phys., 32, pp 909-915, 1961.
- [4] Long wu, Yih-Chen Chen, Yi Ping Chou, Yuan-tu Tsai and Cheng-Yuan Chu, "Dielectric properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-doped Barium Strontium Titanate for Application in Phased Array Antennas", Jpn. J. Appl. Phys. s., 38, pp.5154-5161, 1999.
- [5] Jih-Wei Liou, Bi-Shiou Chiou, "Dielectric properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-doped Barium Strontium titanate for Application in Phased Array Antenas", J. Mat. Sci.: Mater. in Electr., 11, pp. 645-651, 2000.
- [6] Jih-Wei Liou, Bi-Shiou Chiou, "Dielectric properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-doped Barium Strontium titanate for Application in Phased Array Antenas", J pn. J. Appl. Phys., 36, pp. 4359-4368, 1997.
- [7] K.D. Budd. S.U. Dye and D.A. Payne, "Sol-Gel Processing of PbTiO<sub>3</sub>, PbZrO<sub>3</sub>, PZT, PZLT Thin Film", Brit. Ceram. Proc., VOL. 36, p. 107, 1985.