

소결온도에 따른 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 구조 및 마이크로파 유전특성

이승준, 김재식, 남송민, 고중혁, 이영희
광운대학교

Structural and Microwave Dielectric Properties of the Ba₅Ta₄O₁₅ Ceramics with Sintering Temperature

Sung-Jun Lee, Jae-Sik Kim, Song-Min Nam, Jung-Hyuk Koh, Young-Hie Lee
Kwangwoon University

Abstract - The microwave dielectric properties of the Ba₅Ta₄O₁₅ ceramics with sintering temperature were investigated. All sample of the Ba₅Ta₄O₁₅ ceramics prepared by conventional mixed oxide method and sintered at 1450°C~1575°C. Porosity of the Ba₅Ta₄O₁₅ ceramics was reduced with increasing sintering temperature. The bulk density, dielectric constant and quality factor increased with increasing sintering temperature. In the case of Ba₅Ta₄O₁₅ ceramics sintered at 1550°C, The bulk density, dielectric constant and quality factor were 7.31g/cm³ and 27.4, 30,635GHz, respectively.

3. 결과 및 고찰

1. 서 론

최근 정보통신의 발달함에 따라 마이크로 구성요소로 응용되는 유전체 세라믹스 소자에 대한 관심이 증대되고 있으며, 여기에 상응하여 마이크로 파용 유전체소자의 소형화 및 고성능화에 대한 요구 증가로 마이크로파 유전체 세라믹스에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다.[1] 1990년도에는 소자의 크기를 작게 하기 위하여 BaO-Re₂O₃와 (Pb_{1-x}Ca_x)/ZrO₃와 같은 높은 유전율(약 100)을 가지는 물질에 대한 연구가 활발하였다. 최근에는 이동통신 시장의 급속한 발전에 의해 많은 사용자를 수용하기 위해 주파수가 800MHz 대역에서 2-3GHz 대역으로 이동하였다. 또는 주파수 이하에서는 (f≤100 GHz) 내부 유전 손실이 주파수에 비례하여 커지기 때문에 마이크로파 대역에서는 높은 품질계수 특성이 더욱 중요하다.[2] 따라서 고주파 대역에서 우수한 품질계수를 가지는 재료에 대한 관심이 높아지고 있다. 높은 품질계수의 특성을 갖는 물질로 MgTiO₃, SrTiO₃ 와 같은 복합페로브스카이트 구조를 가지는 재료에 대한 연구가 진행되었다. 최근에는 높은 품질계수를 가지는 재료로서 복합페로브스카이트 구조에서 약간 변형된 Cation-deficient 페로브스카이트 구조가 많은 주목을 받고 있다. 이 구조는 A₃B₄O₁₅의 화학식을 가지고 있기 때문에 페로브스카이트구조인 ABO₃ 화학식으로 줄여 쓰면 AB_{0.8}O₃, 즉 음이온 B의 자리가 부족한 형태가 되어서 Cation-deficient 페로브스카이트 구조라 불린다.[3]

본 논문에서는 높은 품질계수를 가지는 재료 개발을 위하여 Cation-deficient 페로브스카이트 구조를 가지는 물질 중에서 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 소결특성을 고찰하고 소결온도에 따른 구조 및 마이크로파 유전 특성을 조사하였다.

2. 본 론

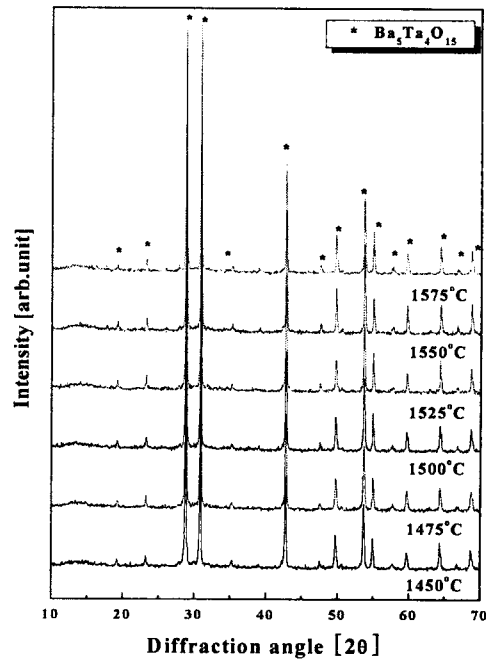
2.1 시편의 제조

본 연구에서는 일반적인 산화물 혼합법으로 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스를 제조하였다. 출발물질로는 BaCO₃, Ta₂O₅ (high-purity, 99.9%)를 사용하였다. BaCO₃, Ta₂O₅를 화학식량에 맞게 평량한 후 알코올을 분산매로 사용하여 지르코니아볼로 24시간동안 혼합 분쇄하였고, 혼합 분쇄한 분말을 100°C 전기오븐에서 24시간동안 건조한 후 알루미늄 도가니에 넣어 1200°C~1325°C의 온도범위에서 3시간 동안 하소하였다. 하소한 분말을 알코올을 분산매로 사용하여 지르코니아볼로 12시간동안 재혼합 분쇄하였으며, 24시간동안 건조하였다. 건조한 분말을 지르코니아 유발을 이용하여 분쇄 후 #100 mesh 로 체치기하였다. 분말을 원통형 금형(Φ=10mm)에 넣고 1ton/cm²의 압력을 가하여 성형하였다. 성형한 시편을 전기로에 넣고 1450°C~1575°C의 온도범위에서 5시간동안 소결하였다. 하소 및 소결시 전기로의 온도 상승률은 5°C/min.으로 하였다.

2.2 측정

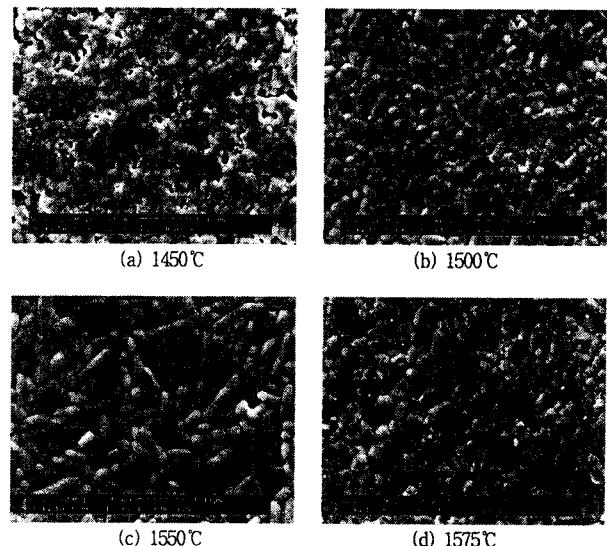
소결온도에 따른 결정구조의 변화 및 고용체 형성과정을 고찰하고자 X-선 회절분석을 하였다. X-선은 CuKα1(λ=1.542Å)을 사용하였으며, 스텝 폭과 주사속도는 각각 0.05deg., 5deg./min.로 하였다. 주사현미경을 이용하여 결정립의 형태, 결정립계, 기공 등의 미세구조를 고찰하였다. 시편의 소결상태를 알아보기 위해 Archimedes method를 이용하여 밀도를 측정하였다.

마이크로파 유전특성은 양면을 거울면 연마한 실린더형 시편들에 대해 Hakki & Coleman에 의해 제시되고 Kobayashi 등이 보정된 평판형 공진기법(parallel plate method)으로 HP8757D Vector Analyzer를 이용하여 유전상수(ε_r)와 무부하 Q값을 측정하였다.[4]



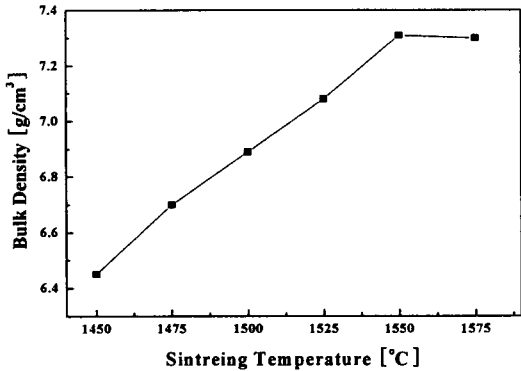
〈그림 1〉 소결온도에 따른 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 X-선 회절 패턴

그림 1은 1300°C에서 3시간동안 하소한 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 소결온도에 따른 X-선 회절 패턴을 나타내었다. 모든 소결 온도에서 Ba₅Ta₄O₁₅ 상이 주상으로 나타났다. 소결 온도 증가함에 따라 Ba₅Ta₄O₁₅ 상의 회절 강도가 증가하였고 새로운 상의 형성은 발생하지 않았다.



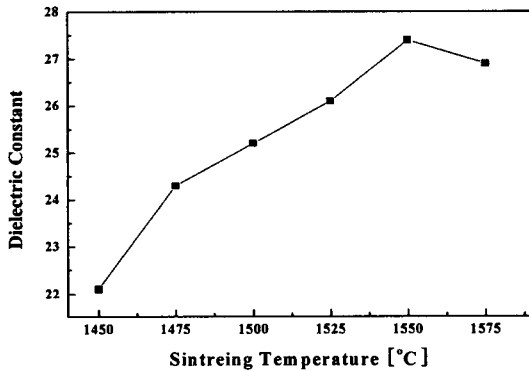
〈그림 2〉 소결온도에 따른 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 미세구조

소결된 Ba₅Ta₄O₁₅ 시편의 미세구조 및 결정립 성장을 확인하기 위하여 측정된 SEM 이미지를 그림 2에 나타내었다. 1550℃의 소결온도에서 가장 치밀한 미세구조를 나타내었다. 1450℃~1525℃의 소결온도에서는 낮은 소결온도로 인하여 Ba₅Ta₄O₁₅ 상의 치밀화가 충분히 진행되지 않았기 때문에 다수의 기공이 나타나는 것으로 생각된다. 소결온도가 증가함에 따라 Ba₅Ta₄O₁₅ 상의 치밀화가 증가하여 기공이 감소하고 치밀한 구조를 나타내는 것으로 생각된다. 기공은 낮은 비유전율을 가지기 때문에 기공의 감소는 유전율의 증가를 가져올 것으로 생각된다.



〈그림 3〉 소결온도에 따른 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 소결 밀도.

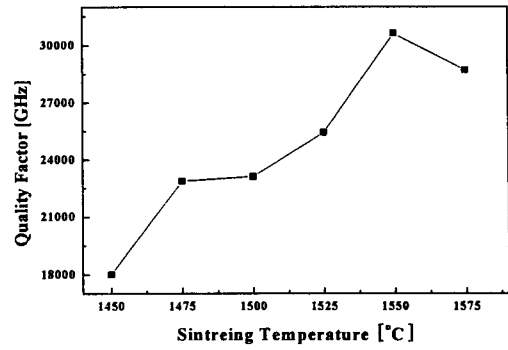
그림 3은 소결온도에 따른 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 밀도를 나타내었다. 그림 2의 미세구조에서 알 수 있듯이 소결온도가 증가함에 따라 Ba₅Ta₄O₁₅ 상의 치밀화에 따른 기공의 감소로 인하여 밀도가 증가하는 것으로 생각된다. 1550℃ 이상의 온도에서는 거의 일정한 밀도를 나타내었다.



〈그림 4〉 소결온도에 따른 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 유전 상수

소결온도에 따른 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 유전율을 그림 4에 나타내었다. 소결 온도가 증가함에 따라 유전율이 증가하였고 1550℃ 이후의 소결온도에서 감소하였다. 일반적으로 동일 재료에서의 유전상수는 시편의 밀도와 밀접한 관계가 있다. 1550℃까지의 유전율의 증가는 그림 2와 그림 3에서 알 수 있듯이 소결온도가 증가함에 따라 치밀화가 증진되어 기공이 감소하였기 때문으로 생각된다. 1575℃의 소결 온도에서의 유전율의 감소는 그림 2에서 알 수 있듯이 시편의 과잉 소결에 의한 과잉성장 때문에 기공 형성이 형성되거나 이런 결과를 나타낸 것으로 생각된다.

그림 5는 소결온도에 따른 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 품질계수를 나타내었다. 그림 3의 밀도와 유사한 결과를 나타내며 1550℃의 소결온도에서 최대값을 나타내었다. 품질계수는 구조적 결함과 기공, 2차상 등의 미세구조 결함에 의해 결정된다.[5] 1550℃까지의 소결 온도에서는 소결 온도가 증가함에 따라 기공의 감소로 인하여 품질계수가 증가하는 것으로 생각된다. 하지만 1575℃의 소결 온도에서는 품질계수의 감소가 나타났다. 이는 그림 2에서 알 수 있듯이 높은 소결 온도로 결정립이 과잉 성장하여 미세구조 결함이 증가했기 때문이라 생각된다.



〈그림 5〉 소결온도에 따른 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 품질계수

4. 결 론

소결온도에 따른 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 구조 및 마이크로파 유전특성을 조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 X-선 회절 분석결과 모든 소결온도에서 주상으로 Ba₅Ta₄O₁₅ 상을 나타내었고 소결 온도 증가에 따라 새로운 상은 발견되지 않았다.
2. Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 밀도는 소결 온도가 증가함에 따라 증가하였다. 또한 유전상수와 품질계수는 소결온도의 증가에 따라 증가하다가 1550℃ 이후의 소결온도에서는 감소하였다.
3. 1550℃에서 소결한 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 소결 밀도, 유전 상수, 품질계수는 각각 7.31g/cm³, 27.4, 30,635GHz 이었다.

이상의 결과로 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스가 고주파용 마이크로 구성소자로 응용이 가능할 것으로 생각된다. 차후 연구에서는 Ba₅Ta₄O₁₅ 세라믹스의 공진 주파수의 온도계수 특성에 대한 연구가 진행되어야 할 것으로 생각된다.

감사의 글

This work was supported by the Realistic 3D-IT Research Program of Kwangwoon University under the National Fund from the Ministry of Education and Human Resources Development (2005).

[참 고 문 헌]

- [1] D.Kolar and D.Suvorov, "High Permittivity Microwave Ceramics", Eur. J. Solid State Inorg. Chem., 32, pp.751-760, 1995.
- [2] K. Wakino, D. A. Sagala and H. Tamura, Proc. 6th Int. Meet. Ferroelectricity, Kobe, Jpn. J. Appl. Phys, 24, pp. 1042, 1985.
- [3] R. Ratheesh, H. Sreemoolanadhan, and M. T. Sebastian, "Vibrational Analysis of Ba_{5-x}Sr_xNb₄O₁₅ Microwave Dielectric Ceramic Resonators", J. Solid State Chem., 131, Issue 1, pp. 2-8, 1997.
- [4] B. W. Hakki et al., "A Dielectric Resonator Method of Measuring Inductive Capacities in the Millimeter Range", IRE Trans. on Microwave Theory and Techniques, Vol.MTT-24, No.10, 1960.
- [5] W. D. Kingery, H. K. Bowen and D. R. Uhlmann, "Introduction to Ceramics", John Wiley & Sons, Second edition, p.937~945, 1976.