

BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂ (x=3, 4, 5) 마이크로파 유전체의 합성과 유전 특성

임병수 · 이병하

명지대학교 무기재료공학과

(1998년 12월 24일 접수)

The Synthesis and Dielectric Properties of BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂ (x=3, 4, 5) Microwave Dielectrics

Byung Soo Lim and Byung Ha Lee

Dept. of Inorganic Materials Engineering Myong Ji University, Yongin 449-728, Korea

(Received December 24, 1998)

초 록

마이크로파 유전체 재료로 알려져 있는 BaO-Ln₂O₃-TiO₂계 중 Ln=Sm을 원료로 하여 BaO·Sm₂O₃·xTiO₂(x=3, 4, 5) 조성으로 고상 합성법을 사용하여 재료를 합성하고, 1260~1340°C에서 2시간 소결한 후 결정 생성상의 변화 및 유전 특성을 측정하였다. BaO·Sm₂O₃·3TiO₂에서는 Sm₂Ti₂O₇의 주 결정상과 Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄ 및 BaO-TiO₂계, 미반응 TiO₂가 잔존하였으며, BaO·Sm₂O₃·4TiO₂ 조성에서는 2차상인 Sm₂Ti₂O₇ 상을 거쳐 최종상인 Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄, Ba₂Ti₉O₂₀의 상을 생성하였으며, x=5인 조성에서는 미반응 TiO₂도 존재하였다. 유전 특성값은 Ba·SmO₃·xTiO₂ (x=4, 5) 조성 모두 1320°C에서 치밀화에 의한 가장 양호한 값을 나타내었으며, x=5인 경우가 x=4일 때 보다 우수한 것으로 판명되었다.

ABSTRACT

The BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂ (x=3, 4, 5) ceramics among the BaO · Ln₂O₃ · xTiO₂ (Ln=Nd, Sm, La, Pr) microwave dielectrics was synthesized by a solid state reaction, sintered at 1260°C to 1340°C for 2 h, and then tested their crystalline phases and dielectric properties. In BaO · Sm₂O₃ · 3TiO₂, Sm₂Ti₂O₇ main phase, Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄ and BaO-TiO₂ phases were present, and the unreacted TiO₂ remained. In BaO · Sm₂O₃ · 4TiO₂, Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄ and Ba₂Ti₉O₂₀ final phases were produced through the Sm₂Ti₂O₇ second phase, and also in x=5 composition, the unreacted TiO₂ existed. Dielectric properties have good values in the dense BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂ (x=4, 5) ceramics sintered at 1320°C and their properties are better in x=5 than x=4.

Key words : Microwave dielectric, Dielectric properties

1. 서 론

다가오는 21세기 지식, 정보화 사회에서는 인간이 접하게 되는 정보의 종류가 다양해지고 그 양도 방대해지고 있다. 그 중 우리 주변에서 쉽게 접할 수 있으며, 그 수요가 빠른 속도로 증가하고 있는 개인 이동 통신기기는 900 MHz 아날로그 방식의 AMPS, NMT, TACS 등의 제1세대를 시작으로 900 MHz 디지털 방식의 D-AMPS, GSM, PDS 등의 제2세대를 거쳐 현재는 이들의 단점인 개인 이동 통신의 양과 질을 보완하기 위하여 1.8~1.9 GHz 디지털 방식의 PCN, PHP, PCS 등을 이용하고 있지만, 궁극적으로는 지금보다 더욱 넓은 범위에서 이용 가능한 개인 이동 통신 기기의 개발이 필요하며, 이를 위해서는 2.2 GHz 이상의 주파수와 디지털 방식을

이용한 FPLM, UMTS에 대한 연구가 요망되고 있다.^{1,2)}

또한 소형화의 요구에 따라 고유전율을 가지는 마이크로파 유전체 세라믹스 재료에 대한 많은 연구가 진행되어져 왔는데 현재까지의 연구 중에서는 D. Kolar³⁾ 등에 의해 1981년 발표된 BaO-Nd₂O₃-TiO₂계가 유명하다. 이것을 계기로 하여 BaO-Ln₂O₃-TiO₂계(Ln=Nd, La, Sm, Pr)에 대한 연구가 활발히 행하여져 각종 device의 소형화에 응용되어지고 있다.^{3,7)}

이런 BaO-Ln₂O₃-TiO₂계에서는 1:1.5의 조성이 가장 우수한 특성을 갖는다고 D. Kolar³⁾는 발표하였으나, 1991년 高橋⁸⁾ 등은 1:1.3과 1:1.4가 결정상으로 존재하며, 1:1.5는 1:1.4와 과잉의 TiO₂로 이루어진 것이라고 보고하였다.

따라서 본 연구에서는 이와 같은 이론들을 보다 명확하게 하기 위하여 BaO-Sm₂O₃-TiO₂계를 가지고 1:1.3,

1:1:4 및 1:1:5의 조성으로 연구하였다. 이와 같은 조성을 이용하여 소결온도에 따른 생성상의 종류 및 미세 조직을 통한 유전 특성의 변화를 비교하였으며 각 조성의 최적 합성에 대해서도 연구하였다.

2. 실험방법

2.1. 출발 원료

본 실험에서는 출발 물질로 BaCO₃, Sm₂O₃와 TiO₂를 고상의 방법으로 사용하였으며 Table 1에 나타내었다. 또한 Fig. 1에 각 출발 물질의 X선 회절 분석 결과를 나타내었다.

Table 1. Starting Materials

Material	Grade	Manufacture
BaCO ₃	99.9%	Aldrich. Co
Sm ₂ O ₃	99.99%	Alfa Chem. Co.
TiO ₂	99.9%	Aldrich. Co

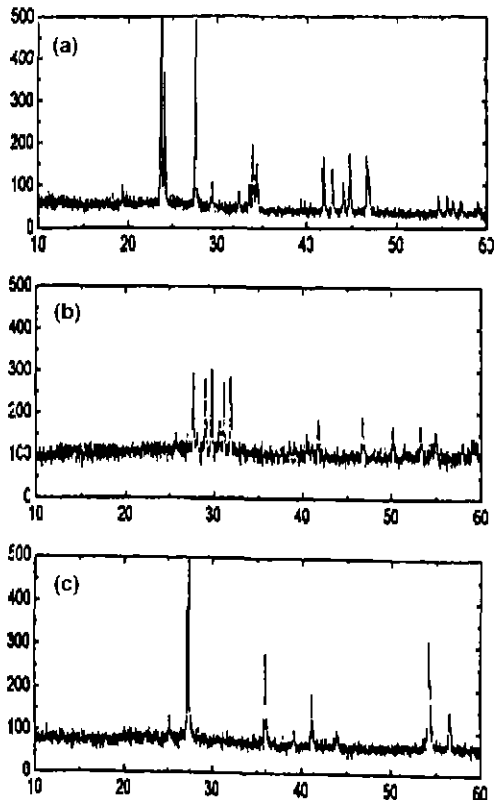


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of starting materials. (a) BaCO₃, (b) Sm₂O₃ and (c) TiO₂.

Table 2. Composition of Starting Materials [unit : mole]

BaCO ₃	Sm ₂ O ₃	TiO ₂
1	1	3
1	1	4
1	1	5

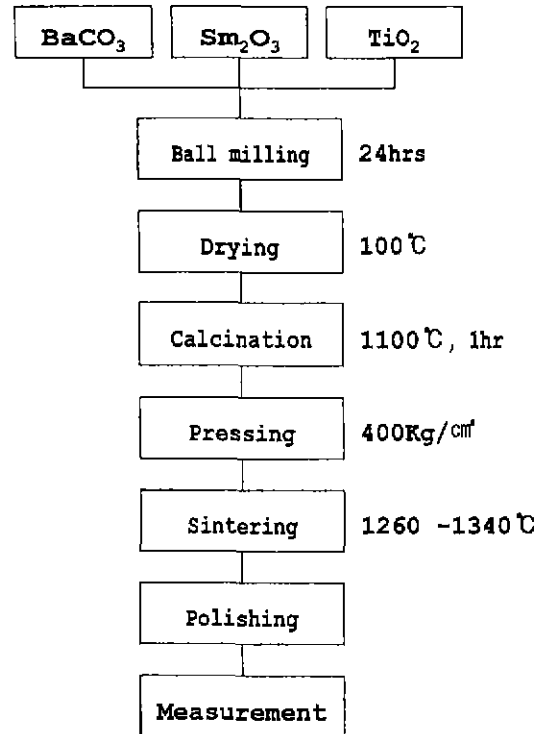


Fig. 2. Schematic diagram of experimental process.

2.2. 분말 제조

BaO-Sm₂O₃-TiO₂ system의 결정상을 생성시키고자 출발 물질로 BaCO₃, Sm₂O₃, TiO₂의 몰비가 각각 1:1:3, 1:1:4, 1:1:5가 되도록 칭량한 후 ZrO₂ ball을 사용하여 ethanol 중에서 24시간동안 ball milling을 행하였다. 그 후 100°C에서 완전 건조시켜서 마노 유발로 분쇄하여 분말을 제조하였다.

Table 2와 Fig. 2에 각 원료의 혼합 비율과 개략적인 실험 공정도를 나타내었다.

2.3. 하소 및 성형

건조된 분말을 1100°C에서 1시간동안 하소한 후 마노 유발에서 분쇄하여 100 mesh를 통과시켰다. 그 후 400 Kg/cm²의 압력으로 직경 15 mm의 disk형 시편을 제작하였다.

2.4. 소결

성형된 시편을 5°C/min의 승온 속도로 1260~1340°C의 온도에서 20°C 간격으로 2시간동안 소결하였다.

2.5. 특성 평가

분말의 온도 변화에 따른 중량 감소와 반응과정을 통한 결정 생성 여부를 검토하기 위해 DT-TG 분석을 행하였다. 또한 소결 온도 및 조성 변화에 따라 생성된 결정상을 알아보기 위해 X선 회절 분석을 행했으며, 이 때의 미세 조직 또한 SEM을 사용하여 관찰하였다.

소결체의 유전 특성을 평가하기 위하여 유전율 및 Q값의 측정은 disk형 소결 시편을 평행 도체판에 삽입하여

TE011 mode를 이용한 Hakki and Coleman 법으로서 Impedance Grain-Phase Analyzer(Hewlett Packed 4194A)를 사용하여 측정하였으며, 정전용량의 온도계수(τ_p)는 TEST Chamber(Hewlett Packed 4210A)를 사용하여 -25~85°C의 온도 구간에서 5°C/min로 승온하여 10°C 간격으로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. DT-TG 분석

각 조성에 따른 시료의 반응 및 중량 변화에 의한 반응 진행 상황을 확인하고, 본 조성에 있어서의 적정 최소 온도를 찾고자 DT-TG 분석을 1400°C까지 행하였다.

Fig. 3(a)는 BaO·Sm₂O₃·3TiO₂에 대한 결과로 800°C 부근에서는 BaCO₃의 상이 orthorhombic에서 he-xagonal로 전이되는 흡열 반응을 볼 수 있으며, 약 950°C 부근에서는 BaCO₃에서 CO₂ 분해에 의한 중량 감소와 흡열 반응이 일어남을 알 수 있다. 또한 1270°C 부근에서는 Ba₆Ti₁₇O₄₀의 생성으로 역시 흡열 반응을 나타내었다.

Fig. 3(b) 및 Fig. 3(c)는 BaO·Sm₂O₃·4TiO₂와 BaO·Sm₂O₃·5TiO₂에 대한 결과로 Fig. 3(a)와 마찬가지로 800°C 부근에서 BaCO₃의 상전이에 의해 흡열 반응을 보이며, 900°C 부근에서는 BaCO₃의 분해에 의해 발열 반응을 나타내고 있다.

또한 1200°C 이상에서 1350°C까지 넓은 범위에 걸쳐 일어나는 발열 반응은 BaO-Sm₂O₃-TiO₂계의 중간상의

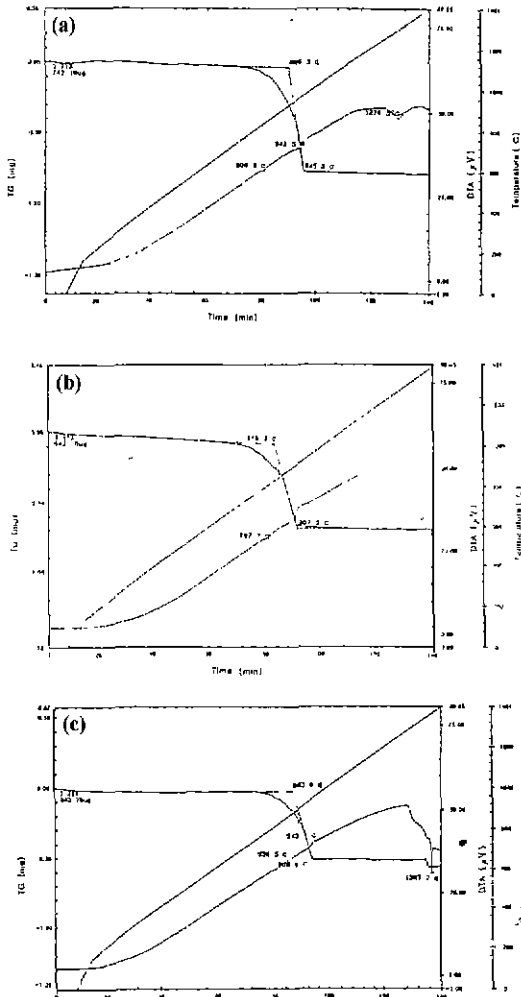


Fig. 3. DT-TG curves of BaO-Sm₂O₃-TiO₂ powder. (a) 1:1:3, (b) 1:1:4 and (c) 1:1:5.

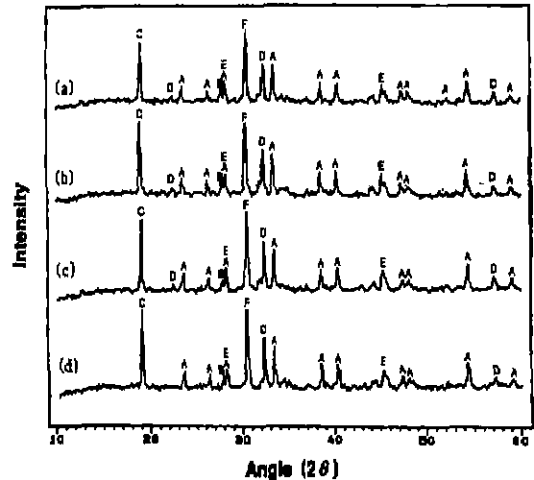


Fig. 4. X-ray diffraction patterns of powders of BaO·Sm₂O₃·3TiO₂ prepared at 1280 to 1340°C for 2 h. (a) 1340°C, (b) 1320°C, (c) 1300°C and (d) 1280°C. A : Ba₃Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄, B : TiO₂, C : Ba₆Ti₁₇O₄₀, D : BaTiO₃, E : Ba₄Ti₁₃O₃₀ and F : Sm₂Ti₂O₇.

생성에 의한 것으로 생각된다.

3.2. 상 생성의 확인

BaO·Sm₂O₃·xTiO₂(x=3, 4, 5) 조성으로 혼합하여 성형한 성형체를 1260~1340°C로 2시간 소결한 시편의 결정상의 생성 여부를 알아보기로 X선 회절 분석을 행하였으며, 중간상의 출현을 검토하고자 1000~1200°C로 2시간 열처리한 소결체도 분석하였다.

그 결과를 Fig. 4~Fig. 9에 나타내었다.

Fig. 4와 Fig. 7은 BaO·Sm₂O₃·3TiO₂의 소결 온도에 따른 X선 회절 분석 결과로 1340°C까지 Ba₃Sm_{7.5}Ti₈O₅₄와 그 중간상인 Sm₂Ti₂O₇이 지배적이며, BaO-TiO₂계의 상과 미반응 TiO₂가 존재함을 알 수 있다.

Fig. 5와 Fig. 8은 BaO·Sm₂O₃·4TiO₂의 소결 온도에 따른 X선 회절 분석 결과로 미반응 TiO₂는 1200°C 이상이 되면 소멸되는 것을 알 수 있으며, Ba₃Sm_{7.5}

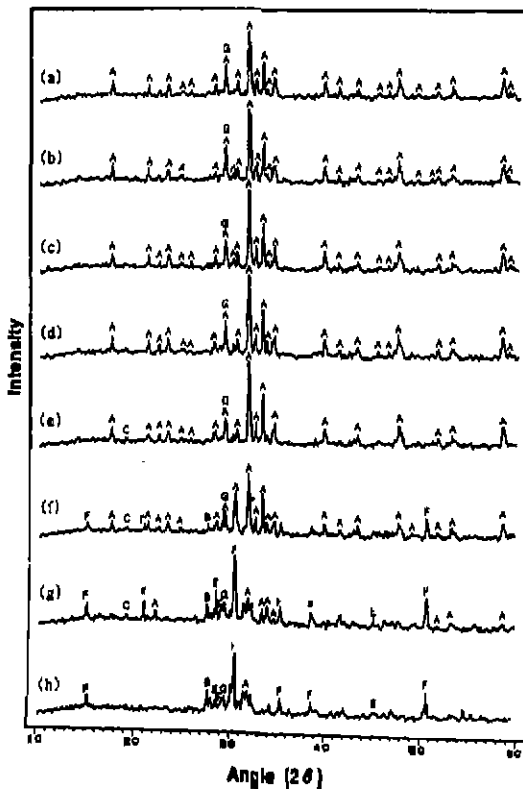


Fig. 5. X-ray diffraction patterns of powders of BaO·Sm₂O₃·4TiO₂ prepared at 1000 to 1340°C for 2 h. (a) 1340°C, (b) 1320°C, (c) 1300°C, (d) 1280°C, (e) 1260°C, (f) 1200°C, (g) 1100°C and (h) 1000°C. A : Ba₃Sm_{7.5}Ti₈O₅₄, B : TiO₂, C : Ba₆Ti₇O₄₀, D : BaTiO₃, E : Ba₄Ti₃O₃₀, F : Sm₂Ti₂O₇ and G : Ba₂Ti₉O₂₀.

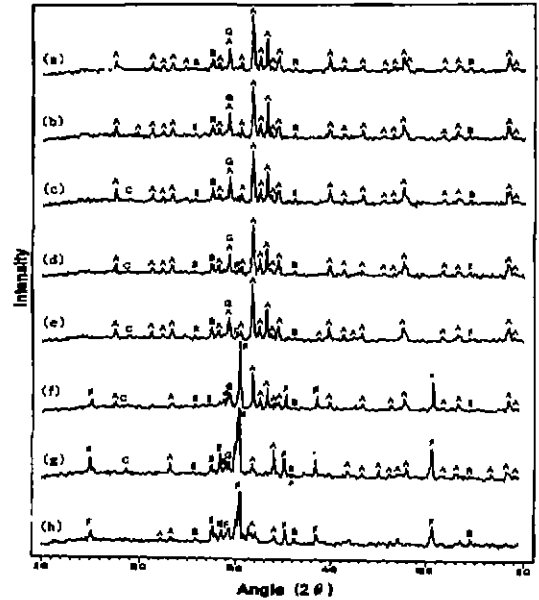


Fig. 6. X-ray diffraction patterns of powders of BaO·Sm₂O₃·5TiO₂ prepared at 1000 to 1340°C for 2 h. (a) 1340°C, (b) 1320°C, (c) 1300°C, (d) 1280°C, (e) 1260°C, (f) 1200°C, (g) 1100°C and (h) 1000°C. A : Ba₃Sm_{7.5}Ti₈O₅₄, B : TiO₂, C : Ba₆Ti₇O₄₀, D : BaTiO₃, E : Ba₄Ti₃O₃₀, F : Sm₂Ti₂O₇ and G : Ba₂Ti₉O₂₀.

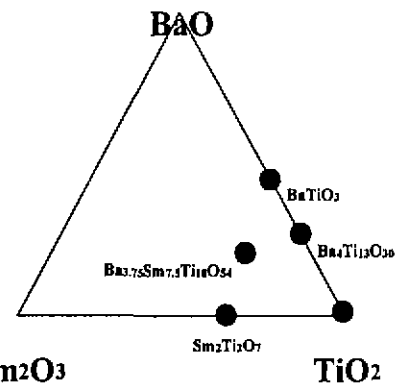


Fig. 7. Crystalline phases of BaO·Sm₂O₃·3TiO₂ powders prepared at 1260 to 1340°C for 2 h.

Ti₈O₅₄는 1000°C에서 벌써 출현하여 1200°C이상부터는 주 결정상이 됨을 볼 수 있다. 또한 Ba₆Ti₇O₄₀은 1100°C에서 출현하여 1260°C까지 존재하다가 Ba₃Sm_{7.5}Ti₈O₅₄ 혹은 Ba₂Ti₉O₂₀상을 생성시키며 소멸하며, 이것은 Ba₄Ti₃O₃₀도 유사하다. Sm₂Ti₂O₇은 1100°C까지 주 결정상으로 존재하다가 Ba₃Sm_{7.5}Ti₈O₅₄를 생성시키는데 관여하면서 서서히 소멸됨을 알 수 있다. Sm₂O₃는 일차적으로 Sm₂Ti₂O₇을 거친 후 최종적으로 Ba₃Sm_{7.5}

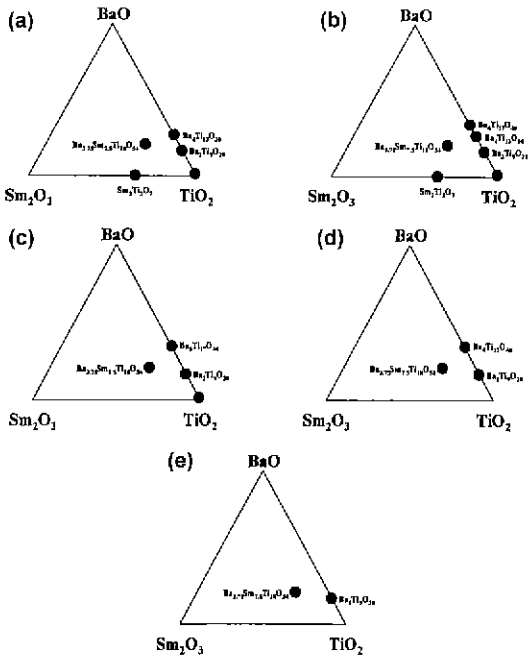


Fig. 8. Crystalline phases of $\text{BaO} \cdot \text{Sm}_2\text{O}_3 \cdot 4\text{TiO}_2$ powders prepared at 1000 to 1340°C for 2 h. (a) 1000°C, (b) 1100°C, (c) 1200°C, (d) 1260°C and (e) 1280~1340°C.

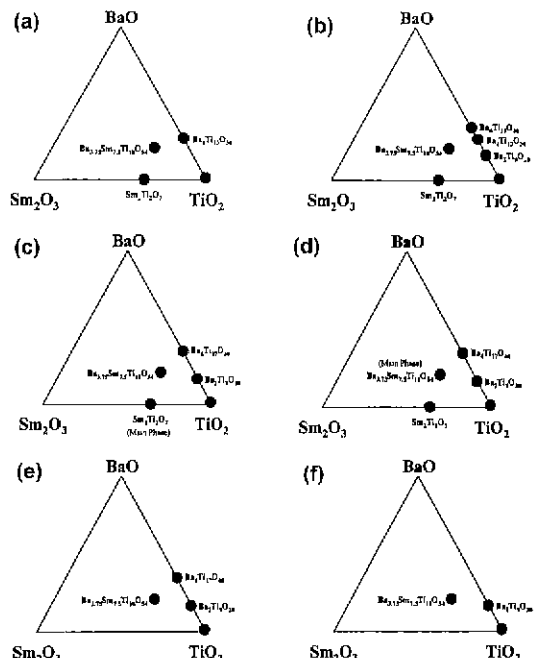


Fig. 9. Crystalline phases of $\text{BaO} \cdot \text{Sm}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{TiO}_2$ powders prepared at 1000 to 1340°C for 2 h. (a) 1000°C, (b) 1100°C, (c) 1200°C, (d) 1260~1280°C, (e) 1300°C and (f) 1320~1340°C.

Ti_8O_{54} 를 생성하는데 관여하는 것으로 생각된다. TiO_2 는 BaO-TiO_2 계 및 $\text{Sm}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ 계를 거쳐 $\text{Ba}_{3.75}\text{Sm}_{7.5}\text{Ti}_{18}\text{O}_{54}$ 를 형성하지만, TiO_2 자체가 직접 $\text{Ba}_{3.75}\text{Sm}_{7.5}\text{Ti}_{18}\text{O}_{54}$ 를

생성하는데 관여하기는 힘들다고 생각되어진다. BaCO_3 는 BaO-TiO_2 계를 거쳐 $\text{BaO-Sm}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ 계로 변화됨을 알

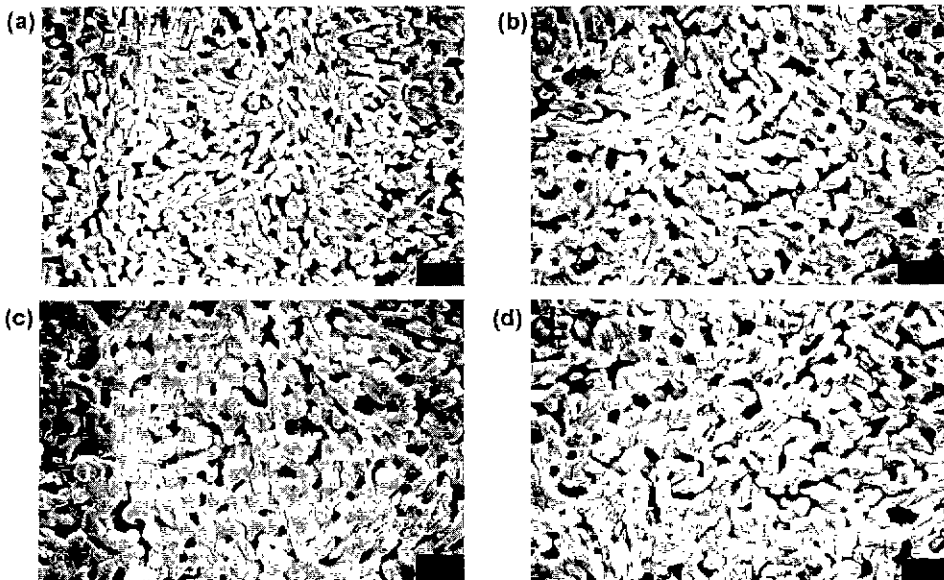


Fig. 10. SEM microphotographs of $\text{BaO} \cdot \text{Sm}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{TiO}_2$ specimens prepared at 1280 to 1340°C for 2 h. (a) 1280°C, (b) 1300°C, (c) 1320°C and (d) 1340°C.

수 있다. 소결 온도가 1280°C 이상에서는 Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄와 Ba₂Ti₉O₂₀이 공존하고 1340°C에서도 단일상을 얻기란 곤란함을 알 수 있다.

Fig. 6과 Fig. 9는 BaO · Sm₂O₃ · 5TiO₂의 소결 온도에 따른 X선 회절 분석 결과로 BaO · Sm₂O₃ · 4TiO₂와 마찬가지로 1340°C까지 단일상은 얻어지지 않았으며, 미반응 TiO₂와 중간생성물인 Ba₂Ti₉O₂₀이 존재하였다. Sm₂O₃는 Sm₂Ti₂O₇을 거쳐 1300°C 이상이 되면 Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄상을 생성하는데 모두 관여함을 알 수 있었으며, Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄는 BaO-TiO₂계와 Sm₂Ti₂O₇의 반응에 의해 생성된다고 생각되어진다. TiO₂는 Sm₂O₃-TiO₂계와 BaO-TiO₂계를 거쳐 Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄를 생성하지만, 미반응인 상태로 존재하거나 BaO-TiO₂계에서 Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄를 생성하지는 못한 경우도 존재하였다. 또한 BaCO₃와 TiO₂의 일부는 Ba₄Ti₁₃O₃₀과 Ba₆Ti₁₇O₄₀의 상을 거쳐 1320°C부터 Ba₂Ti₉O₂₀으로 변화됨을 볼 수 있다. BaO · Sm₂O₃ · 4TiO₂보다 TiO₂가 과잉이기 때문에 미반응 TiO₂가 존재하는 것으로 생각

되어 진다.

3.3. 미세구조 관찰

BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂(x=3, 4, 5) 조성을 갖는 성형체를 1260~1340°C로 2시간 소결한 후 표면을 SEM 관찰하였다. Fig. 10~12에 그 미세조직을 나타내었다

Fig. 10에서는 1340°C까지 아직 소결이 일어나지 않았음을 알 수 있었으며, 이것은 부피 밀도 및 유전특성 측정과정에서도 확인되었다. 따라서 BaO · Sm₂O₃ · 3TiO₂ 소결체 특성 평가의 실험은 여기서 중단하였다.

Fig. 11은 BaO · Sm₂O₃ · 4TiO₂ 조성을 갖는 성형체를 1260~1340°C까지 2시간 소결한 시편 표면의 미세조직을 나타낸다. 소결 온도가 증가함에 따라 결정 입자의 크기가 서서히 증가하고, 기공은 감소함이 관찰되었으나, 1320°C 이상이 되면, 갑작스런 입자의 성장으로 기공이 다시 증가함을 볼 수 있다.

Fig. 12에서 나타난 BaO · Sm₂O₃ · 5TiO₂ 조성의 소결체의 경우는 BaO · Sm₂O₃ · 4TiO₂와 유사하며 이것 역시

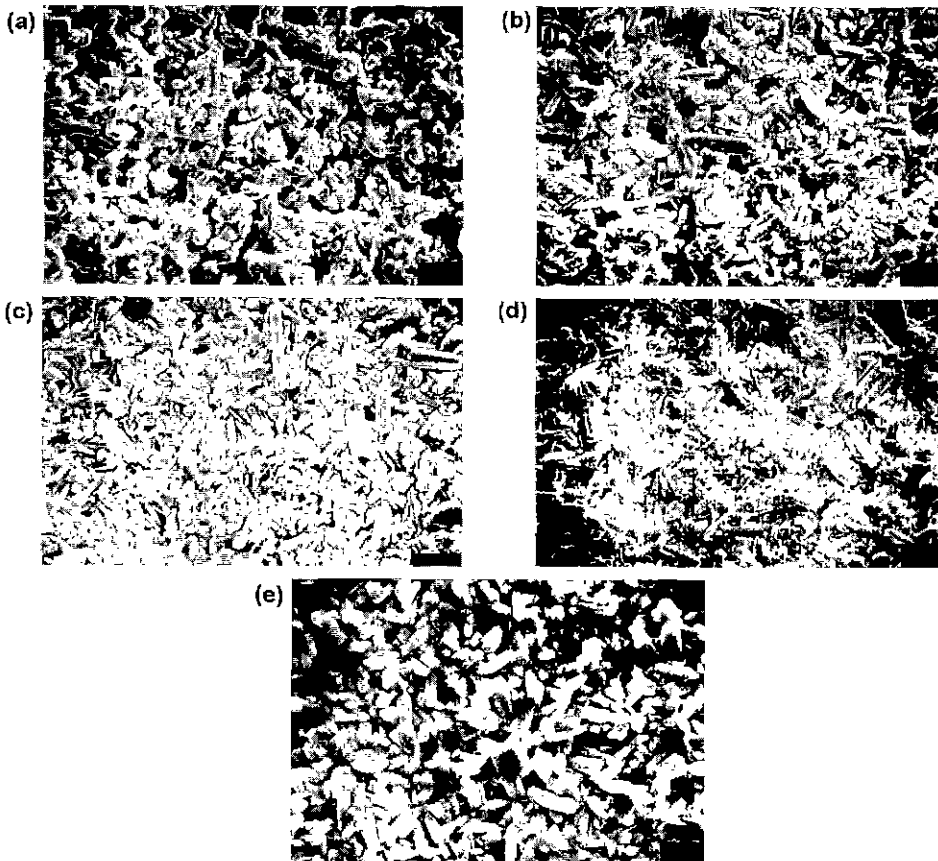


Fig. 11. SEM microphotographs of BaO · Sm₂O₃ · 4TiO₂ specimens prepared at 1260 to 1340°C for 2 h (a) 1260°C, (b) 1280°C, (c) 1300°C, (d) 1320°C and (e) 1340°C.

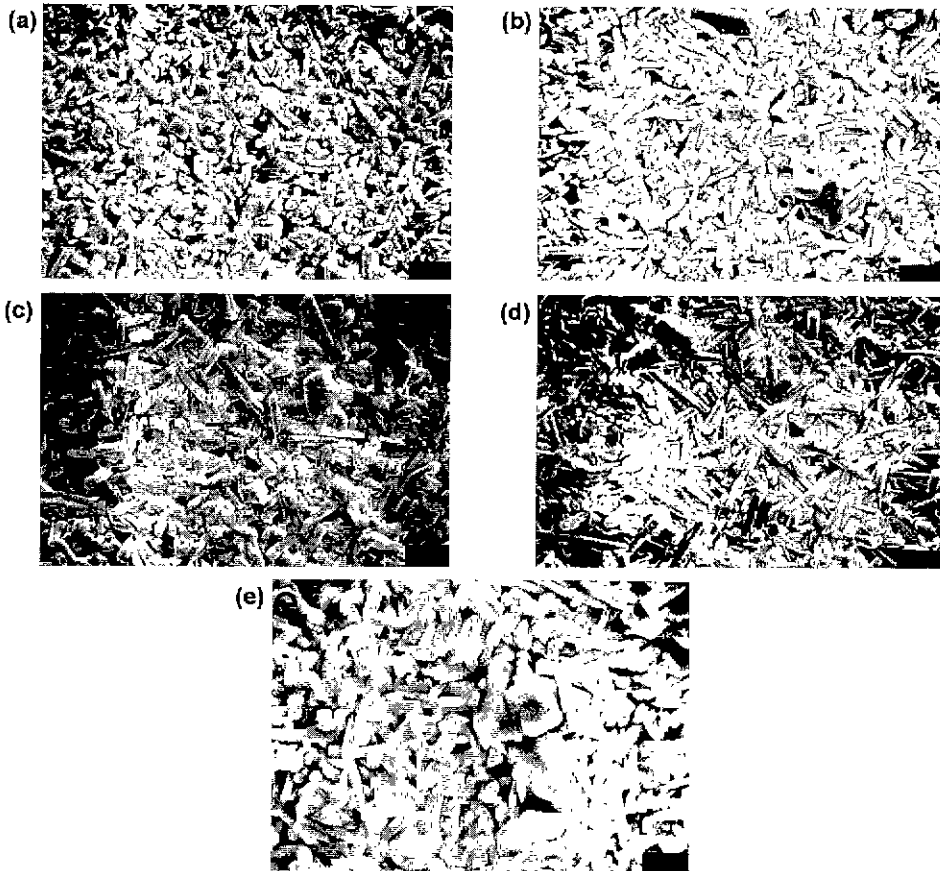


Fig. 12. SEM microphotographs of $\text{BaO} \cdot \text{Sm}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{TiO}_2$ specimens prepared at 1260 to 1340°C for 2 h. (a) 1260°C, (b) 1280°C, (c) 1300°C, (d) 1320°C and (e) 1340°C.

1320°C 이상에서 입자의 급성장으로 인한 기공의 증가를 보이고 있다.

3.4. 소결체의 밀도 측정

$\text{BaO} \cdot \text{Sm}_2\text{O}_3 \cdot x\text{TiO}_2$ ($x=4, 5$) 조성의 소결체를 아르키메데스법으로 밀도 측정을 행하여 Fig. 13에 나타내었다. 두 조성 모두 1320°C까지 밀도가 증가함을 볼 수 있으며, 이것은 SEM 관찰 결과와도 잘 일치함을 알 수 있다. 즉, 소결 온도가 증가함에 따라 결정입자들 사이의 기공이 감소되고 1320°C가 되면 치밀화가 가장 잘 일어났으며, 그 이상의 온도가 되면 치밀화되기 이전에 입자의 급성장으로 인하여 기공이 증가하고 부피 팽창의 영향으로 밀도의 감소를 가져온 것으로 생각되어 진다. $\text{BaO} \cdot \text{Sm}_2\text{O}_3 \cdot 4\text{TiO}_2$ 의 경우 1320°C에서 5.55 g/cm^3 이었으며, 그 온도에서 $\text{BaO} \cdot \text{Sm}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{TiO}_2$ 는 5.58 g/cm^3 의 밀도값을 나타내었다

3.5. 유전 특성 평가

요업학회지

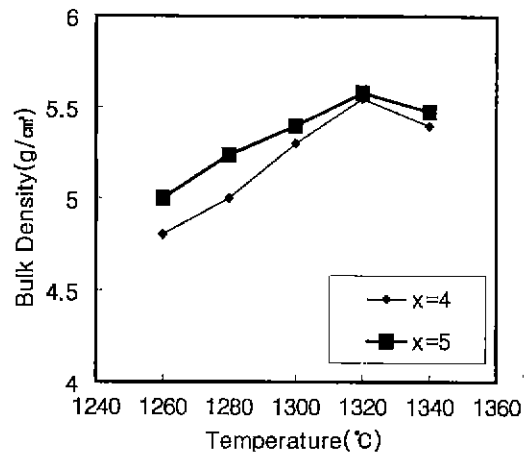


Fig. 13. Bulk density of specimens prepared by $\text{BaO} \cdot \text{Sm}_2\text{O}_3 \cdot x\text{TiO}_2$ ($x=4, 5$) at 1260 to 1340°C for 2 h.

$\text{BaO} \cdot \text{Sm}_2\text{O}_3 \cdot x\text{TiO}_2$ ($x=4, 5$) 조성으로 소결된 시편을 Hakki and Cole- man법에 의해 측정된 공진 주파수(f_0)

와 상대유전율(ϵ_r), 선택성(Q) 및 공진기의 온도계수(τ_f)의 분석 결과를 Fig. 14~17 및 Table 3에 나타내었다.

Fig. 14에서는 소결 온도에 따른 BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂ (x=4, 5)의 공진 주파수를 나타내었는데, 소결 온도가 증가함에 따라 1320°C까지는 3 GHz를 전후로 감소하는 경향을 보이고 있다. 또한 1340°C에서는 오히려 증가하고 있다. 유전율의 경우 소결 온도에 따라 1320°C까지 증가함을 볼 수 있으며, BaO · Sm₂O₃ · 4TiO₂보다 BaO · Sm₂O₃ · 5TiO₂가 양호한 1320°C에서 76.6의 값을 나타내고 있다. 이런 결과는 미세구조 분석에서도 알 수 있듯이 1320°C에서 가장 치밀화가 일어난 영향 때문으로 생각된다.

Fig. 16은 $f_0 \cdot Q$ 의 분석 결과이다. BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂ 모두 1320°C에서 가장 높은 값을 나타냈으며, BaO · Sm₂O₃ · 5TiO₂에서는 9439, BaO · Sm₂O₃ · 4TiO₂에서는 7383을 나타내었다.

Fig. 17은 소결 온도에 따른 공진 주파수의 온도계수

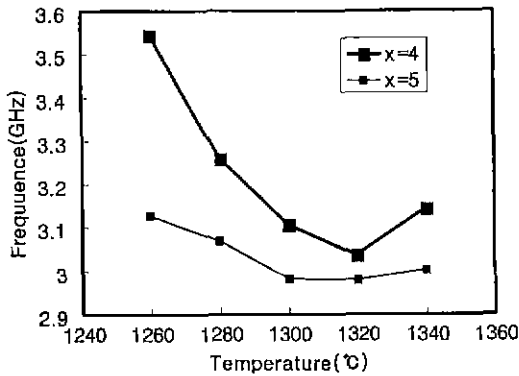


Fig. 14. Resonant frequency (f_0) of BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂ (x=4, 5) specimens prepared at 1260 to 1340°C for 2 h.

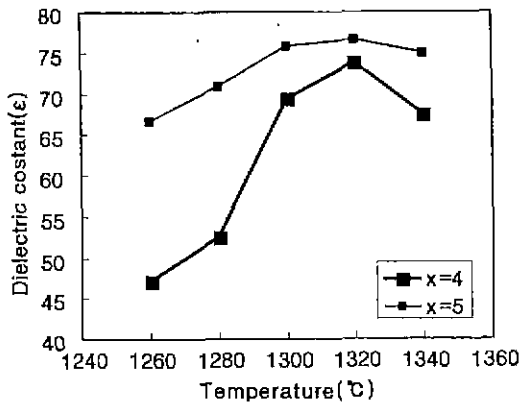


Fig. 15. Dielectric constant (ϵ_r) of BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂ (x=4, 5) specimens prepared at 1260 to 1340°C for 2 h.

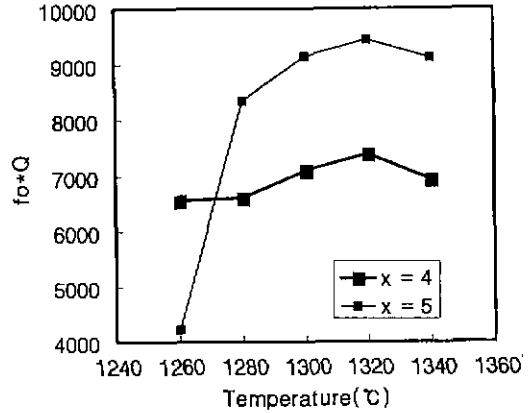


Fig. 16. $f_0 \cdot Q$ value of BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂ (x=4, 5) specimens prepared at 1260 to 1340°C for 2 h.

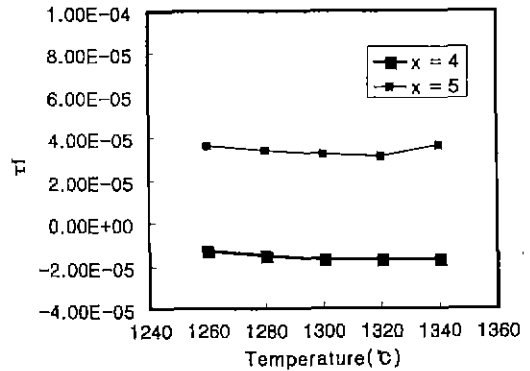


Fig. 17. Temperature coefficient of resonant frequency (τ_f) of BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂ (x=4, 5) specimens prepared at 1260 to 1340°C for 2 h.

Table 3. Microwave Dielectric Properties of Sintered BaO · Sm₂O₃ · xTiO₂(x=4, 5)

	Sintering temperature	f_0	ϵ_r	τ_f	$f_0 \cdot Q$
x=4	1320°C	3.03629	73.8	-1.7E-05	7383
x=5	1320°C	3.03629	73.8	-1.7E-05	7383

(τ_f)를 측정 한 결과이다. 두 조성 모두 약 10⁻⁵의 값으로 거의 0(zero)에 가까운 값을 보이고 있음이 확인되었다.

따라서 본 실험에서 사용된 BaO · Sm₂O₃ · 5TiO₂ 조성이 BaO · Sm₂O₃ · 4TiO₂ 보다 유전 특성면에서 뛰어났으며, 그때의 소결 온도는 1320°C 임을 알 수 있었다. 이런 유전 특성은 상생성 및 미세구조와 연관지어 고려해 볼 때 미반응 TiO₂의 영향보다는 치밀화에 의해 유전 특성이 향상 될 수 있다고 생각되어진다.

4. 결 론

BaO·Sm₂O₃·xTiO₂(x=3, 4, 5) 조성의 성형체를 소결 온도에 따라 생성 상, 소결 특성 및 유전 특성을 확인해 본 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) BaO·Sm₂O₃·3TiO₂ 소결체의 생성 상 변화를 관찰한 결과 Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄ 및 그 중간상인 Sm₂Ti₂O₇이 주 결정상으로 존재했으며, BaO-TiO₂계의 상 및 미반응 TiO₂도 잔존하였다. 이 경우 미세조직을 관찰한 결과 1340°C까지 소결이 진행되지 않았음을 알 수 있었으며, 이것은 TiO₂ 증가가 소결 온도를 낮추주기 때문인 것으로 생각된다.

2) BaO·Sm₂O₃·4TiO₂ 소결체의 경우 1340°C까지 단일상은 얻을 수 없었으며, 1280°C부터 Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄와 Ba₂Ti₉O₂₀이 존재하였다. 미세구조 관찰 결과 1320°C에서 가장 크게 치밀화되었으며, 그 영향으로 유전 특성 및 밀도의 향상을 가져왔다고 생각된다.

3) BaO·Sm₂O₃·5TiO₂ 소결체의 상생성 여부를 관찰한 결과 Sm₂Ti₂O₇ 및 BaO-TiO₂계의 상을 거쳐 Ba_{3.75}Sm_{7.5}Ti₁₈O₅₄ 및 Ba₂Ti₉O₂₀이 1340°C까지 잔존하였으며, 미반응 TiO₂도 관찰되었다. 미세구조 결과 1320°C에서 가장 치밀한 조직으로 구성되어 있는 것이 관찰되었으며, 밀도 및 유전 특성에서 가장 양호한 결과를 얻을 수 있었다.

4) BaO·Sm₂O₃·xTiO₂(x=3, 4, 5) 조성의 소결 온도에 따라 소결 특성 및 유전 특성을 관찰한 결과 x=5인 조성에서 가장 양호하여 1320°C에서 밀도는 5.58 g/cm³, 유전을 76.6, fo·Q는 9439를 나타냈으며, τ_r는 거의 0에 가까운 값을 나타내었다.

REFERENCES

1. S. Kawashima, M. Nishida, I. Ueda and H. Ouchi. "Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O₃ Ceramics with Low Dielectric Loss at the Microwave Frequency," *J. Am. Ceram. Soc.*, **66**(6), 421-423 (1983).
2. S. Nomura, K. Toyama and K. Kaneda. "Effect of Mn Doping on the Dielectric Properties of Ba₂Ti₉O₂₀ Ceramics at Microwave Frequency," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **22**(7), 1125-1128 (1983).
3. S. G. Mhaisakar, D. W. Readey and S. A. Akbar, "Microwave Dielectric Properties of Doped BaTi₄O₉," *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**(8), 1894-1898 (1991).
4. D. Kolar, S. Gaberscek and B. Volavsek, "Synthesis and Crystal Chemistry of BaNd₂Ti₃O₁₀, BaNd₂Ti₅O₁₄ and Nd₄Ti₉O₂₄," *J. Solid State Chem.*, **38**, 158-164 (1981).
5. K. Wakino, K. Minai and H. Tamura, "Microwave Characteristics of (Zn,Sn)TiO₂ and Bao-Pbo-Nd₂O₃ Dielectric Resonators," *J. Am. Ceram. Soc.*, **67**(4), 278-281 (1984).
6. S. Nishigake, H. Kato, S. Yano and R. Kamimura, "Microwave Dielectric Properties of (Ba,Sr)O-Sm₂-TiO₂ Ceramics," *Am Ceram. Soc. Bull*, **66**(9), 1405-1410 (1987).
7. A. Yamada, Y. Utsumi and H. Watari. "The Effect of Mn Addition on Dielectric Properties and Microstructure of BaO-Nd₂O₃-TiO₂ Ceramics," *Jpn. J. Appl Phys.*, **30** (9B), 2350-2353 (1991).
8. J. Takahashi and T. Ikegami, "Occurrence of Dielectric 1:1:4 Compound in the Ternary System BaO-Ln₂O₃-TiO₂(Ln=La, Nd, Sm) : II. Reexamination of Formation of Isostructural ternary Compounds in Identical System," *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**(8), 1873-1879 (1991).