

하소조건에 따른 Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃[BMT] 세라믹스의 마이크로파 유전특성

Microwave Dielectric Properties of Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃[BMT] Ceramics with Calcining Condition

황태광*, 임성수**, 정장호***, 배선기****, 이영희*
(Hwang Tae-Kwang, Lim Sung-Soo, Chung Jang-Ho, Bae Seon-Gi, Lee Young-Hie)

Abstract

The microwave dielectric properties of complex perovskite-structured Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ ceramics were investigated with calcining condition. The BMT ceramics were prepared by conventional mixed oxide method. Calcining conditions were 1200°C for 10hr., 1300°C for 2hr., and 5hr., respectively. And the specimens were sintered at 1650°C. The structural and microwave properties of BMT ceramics were investigated by XRD, SEM and network analyzer.

In the case of BMT ceramics calcined at 1300°C for 5 hr., dielectric constant, quality factor and temperature coefficient of resonant frequency were 20.26, 31,144(at 1GHz), 6.11[ppm/°C], respectively.

Key word(중요어구) : Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ ceramics(Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ 세라믹스, Calcining condition(하소조건), Complex perovskite structure(복합 페로브스카이트 구조), Microwave dielectric properties(마이크로파 유전특성)

1. 서론

정보통신 산업의 비약적인 발전에 따라 군수용 및 산업용으로서 마이크로파 대역에서의 이동 및 위성통신의 중요성이 점차 증가되어, 소자 및 시스템의 개발을 위한 많은 연구가 행하여지고 있다. 수동소자로서의 유전체 공진기는 특히 마이크로파 부품 생산에 있어서 경량(light weight), 온도 안정성 및 경제적인 면에서 장점을 가지고 있다.^{1,2)} 이런 관점에서 마이크로파 응용을 위한 여러 유전체 세라믹 물질들이 연

구되어지고 있으며 Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃[BMT]는 복합 페로브스카이트 구조로 지금까지 개발된 고주파 유전체 중에서 가장 높은 품질계수(저손실)를 갖기 때문에 위성통신과 같이 매우 높은 고주파 영역에서 작동해야 하는 통신 시스템에 적합한 재료이나 고온(1600°C 이상)에서의 장시간 소결 과정과 까다로운 열처리 과정 등의 큰 문제점을 가지고 있다.^{3,4)}

BMT계에서 높은 Q값을 얻기 위해서는 열처리 과정을 통한 B-site의 규칙화를 이루어야 하는 것이 관건이며, 그 외에도 불순물, 전위, 국부적인 변형 등의 격자결함제어와 입계, 기공, 입계석출물 등의 미세조직제어가 고려되어야 한다.³⁾

본 연구에서는 지금까지 보고된 하소조건을 개선시키기 위하여 하소온도와 시간을 변화시켜 BMT 세라믹스의 구조적 특성을 조사하였으며, 이에 따른

* : 광운대학교 전자재료공학과
(서울 노원구 월계동 447-1, FAX:(02)-915-8084
E-mail: yhlee@daisy.kwangwoon.ac.kr)

** : (주)한국전자
*** : (주)한원 마이크로웨이브
**** : 인천대학교 전기공학과

마이크로파 유전특성의 변화를 고찰하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서는 일반소성법으로 BMT 세라믹스를 제조하였다. 출발원료인 $BaCO_3$, MgO , Ta_2O_5 를 화학양론비에 맞게 평량한 후, 아세톤을 분산매로 지르코니아 볼을 사용하여 24시간 동안 혼합분쇄하였다. 혼합분쇄한 분말을 $100^\circ C$ 전기오븐에서 24시간 동안 충분히 건조한 후 알루미나 도가니에 넣어 $1200^\circ C$ 에서 10시간, $1300^\circ C$ 에서 2시간과 5시간으로 하소조건을 변화시켜 제조하였다. 하소시 온도상승율은 $300^\circ C/hr$ 로 하였다. 하소한 분말은 원통형 금형($\phi=12.8mm$)에 넣고 $1000kg/cm^2$ 의 압력을 가해 성형하여 $1650^\circ C$ 에서 2시간 동안 소결하였다. 이러한 BMT 세라믹스의 제조 공정을 그림 1에 나타내었다.

하소한 분말과 소결한 시편의 고용체 형성과정 및 결정구조의 변화를 관찰하고자 X-선 회절 분석을 하였다. BMT 시편은 주사전자 현미경(SEM)을 이용하여 미세구조를 관찰하였고 HP8757D Network Analyzer를 이용하여 마이크로파 유전특성을 조사하였다.

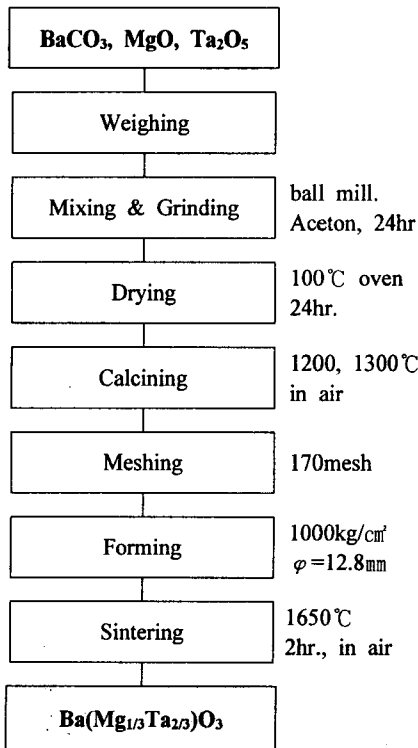


그림 1. $Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O_3$ 세라믹스의 제조 공정

3. 결과 및 고찰

그림 2는 하소 조건에 따른 BMT 분말의 X-선 회절 분석 결과이다. 하소 후 미반응물이 존재하는 경우는 소결에서 비정상적인 입자가 존재할 수 있다. X-선 회절 분석결과, 미반응상과 이차상이 나타나지 않은 단일상의 BMT로 합성되었다. $1300^\circ C$ 에서 5시간 동안 하소한 경우, 하소조건이 다른 BMT 분말보다 초격자 반사면인 (100)면의 강도가 증가하였고, 상 형성이 더 잘 이루어졌다. 따라서 $1300^\circ C$ 에서 5시간 동안 하소하는 것이 적절하다고 사료된다.

그림 3은 각각의 하소 분말을 성형한 후 $1650^\circ C$ 에서 2시간 동안 소결한 BMT 세라믹스의 X-선 회절 분석결과이다. 모든 시편에서 규칙구조(ordered structured)를 형성할 때 나타나는 초격자구조 반사(superstructure reflection)면 (100), (111), (200), (103)면이 관찰되었다. 이들 초격자 피크의 존재는 B-site의 규칙화에 의한 상전이에 기인한 것으로 사료된다. 그림 2의 하소 분말에 비하여 B-site의 Mg와 Ta가 1:2 규칙 구조를 형성함에 따라 X-선 분석에서 관찰되는 초격자 구조 반사면인 (100)면의 피크 강도가 증가되어 규칙도가 증가했음을 알 수 있었다.

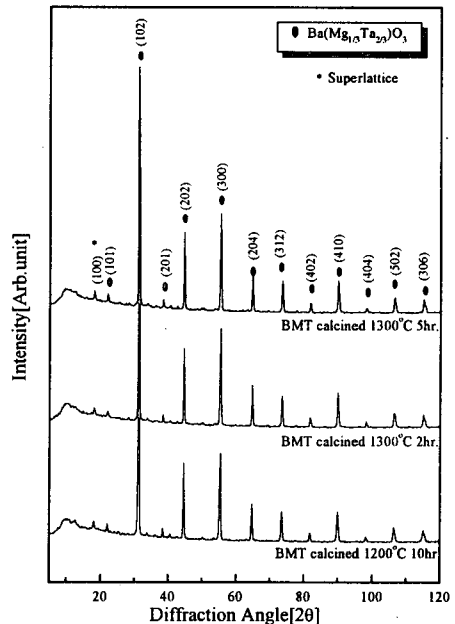


그림 2. 하소조건에 따른 BMT 분말의 X-선 회절 모양

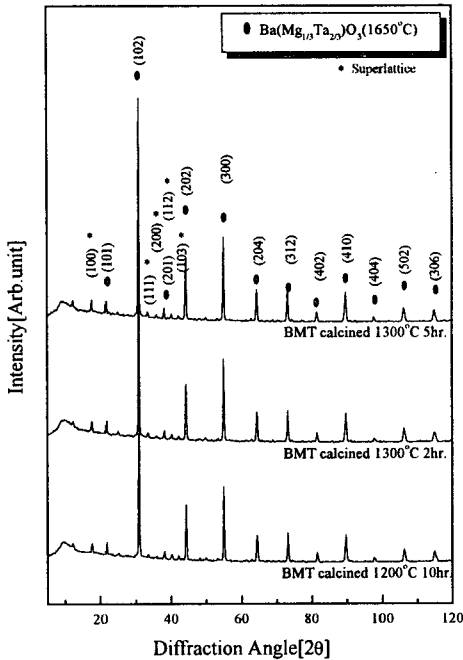


그림 3. 하소조건을 달리하여 1650°C(2hr.)에서 소결한 BMT 세라믹스의 X-선 회절모양

BMT와 동일한 결정구조를 갖는 $Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O_3$ 에서 Zn과 Ta가 1:2의 규칙화를 나타냄에 따라 X-선 회절의 면지수의 합인 $(2H+K+L)/3$ 이 정수가 아닌 초격자 피크를 나타내며 격자 비틀림(lattice distortion) 현상을 수반하므로써 (422)와 (226)면의 x-선 피크 분리(peak splitting)가 일어난다고 Kawashima 등이 보고하였다.⁵⁾ 본 실험의 BMT에서도 Mg와 Ta가 규칙화됨에 따라 격자 비틀림 현상으로 인한 (422)와 (226)면의 X-선 피크 분리가 관찰은 되었으나, 명확히 나타나지 않았으며 이는 냉각 속도 조절 등을 통해 개선시킬 수 있을 것이라 사료된다. 그림 4는 113.5° ~ 116°까지의 X-선 피크 분리를 관찰하여 나타낸 것이다. 이때 step size는 0.02°로 하였다.

그림 5는 1650°C에서 2시간 소결한 BMT 시편의 표면과 파단면의 미세구조이다. (a)와 (c)의 경우, 기공이 거의 없는 치밀한 표면상태를 나타내었으며, 1300°C에서 2시간 하소한 (b)의 표면에서 기공이 관찰되었다. 하소조건에 관계없이 모든 BMT 시편의 파단면에서 많은 기공이 관찰되었으며, 이러한 기공들은 BMT 시편의 밀도를 감소시키고, 마이크로파 유전 특성을 저하시키는 원인으로 사료된다.

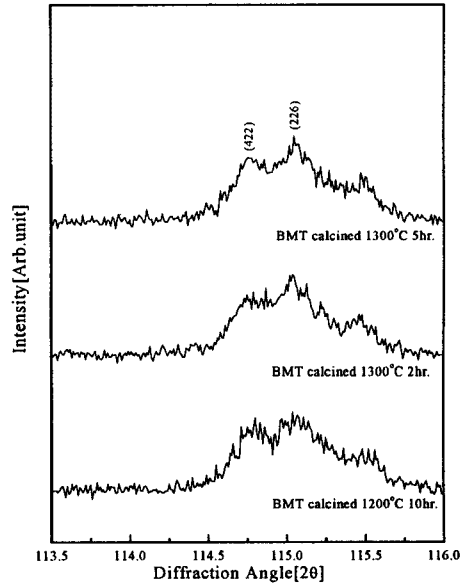
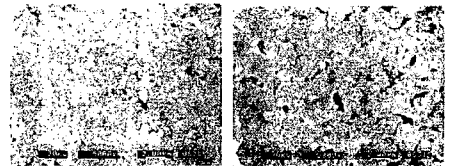
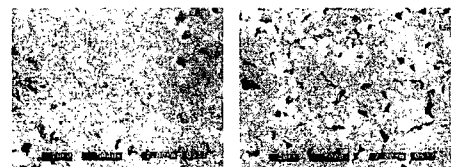


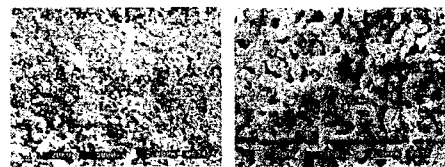
그림 4. BMT 세라믹스의 (226)면과 (422)면의 회절선 분리 모양



표면 파단면
(a) 1200°C, 10hr. 하소



표면 파단면
(b) 1300°C, 2hr. 하소



표면 파단면
(c) 1300°C, 5hr. 하소

그림 5. 하소조건을 달리하여 1650°C(2hr.)에서 소결한 BMT 세라믹스의 표면과 파단면의 미세구조

표 1. 하소조건에 따른 BMT 시편의 마이크로파 유전특성

Calcining condition	Sintering temp.	f_0 [GHz]	$Q \times f_0$	ϵ_r	TCRF [ppm/°C]
1200°C, 10hr.	1650°C, 2hr.	7.613	26,102	20.35	6.11
1300°C, 2hr.		7.564	20,112	20.35	
1300°C, 5hr.		7.635	31,144	20.26	

표 1은 하소조건에 따른 BMT 시편의 마이크로파 유전특성을 나타낸 것이다. 하소조건에 따라 유전율은 큰 변화를 나타내지 않았으나, 규칙화를 이룬 BMT의 유전율(25)에 비해 낮은 값을 나타내었다. 1300°C에서 5시간 동안 하소한 후 1650°C에서 2시간 소결한 시편의 경우 유전상수, 품질계수, 공진주파수의 온도계수는 각각 20.26, 31,144(at 1GHz), 6.11[ppm/°C]의 특성을 나타냈다.

4. 결 론

본 실험에서는 복합 페로브스카이트 구조의 BMT 세라믹스를 합성하여 하소조건에 따른 구조적 특성과 마이크로파 유전특성을 조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 실험에서 선택한 하소조건에서 하소한 BMT 분말의 X-선 회절 분석 결과, 미반응상 및 이차상은 나타나지 않았으며, 1300°C에서 5시간 동안 하소한 BMT분말은 다른조건의 BMT분말에 비해 상 형성이 잘 이루어졌다.
2. 각각의 하소조건에서 하소한 후 1650°C에서 2시간 동안 소결한 모든 시편에서 초격자구조 반사면이 관찰되었고, 하소분말에 비해 (100)면의 피크 강도가 증가하였다.
3. 1350°C에서 5시간 동안 하소하여 소결한 경우, (100)면의 피크 강도가 증가하였으며, 더 치밀한 표면상태를 나타내었다.
4. 1300°C에서 5시간 동안 하소한 후 소결한 BMT

시편의 경우, 유전상수, 품질계수, 공진주파수의 온도계수는 각각 2.26, 31,144(at 1GHz), 6.11[ppm/°C]의 특성을 나타냈다.

이상의 연구결과로부터 1300°C에서 5시간 하소한 후 제조한 BMT세라믹스는 기존의 하소조건(1200°C, 10시간)에 비하여 단시간의 열처리과정으로 제조가능하여 공정개선 및 제조비용 절감에 큰 효과가 있을 것으로 사료된다.

참 고 문 헌

1. Kai Chang, "Microwave Solid-state And Application", Jone Wiley & Sons, INC., pp.5~8, 1994.
2. R. Raheesh et al., "Whispering Gallery mode microwave characterization of Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ dielectric resonators", J. Phys. D : Appl. Phys., 32, pp.2821~2826, 1999.
3. Jung-A Lee et al., "Effect of Calcining Temperature on the Sintering Behaviors and Microwave Dielectric Properties of Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ Ceramics", Journal of the Korean Ceramic Society, Vol.31, No.12, pp.1561~1569, 1994.
4. S. Nomura, K. Toyama, and K. Kaneta, "Ba(Mg_{1/3}-Ta_{2/3})O₃ Ceramics with Temperature-Stable High Dielectric Constant and Low Microwave Loss", Jpn. J. Appl. Phys. 21(10), L624~L626, 1982.
5. S. Kwasima, M. Nishida, I. Ueda, and H. Ouchi, "Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O₃ Ceramics with Low Dielectric Loss at Microwave Frequencies", J. Am. Ceram. Soc., 66(6), pp.421~23, 1983.