

## 포스테라이트계 유전체의 마이크로파 유전특성

김동영, 이홍열, 전동석, 이상석

한국전자통신연구원 유전체RF소자팀

### Microwave dielectric properties of Forsterite based Ceramics

Dong-Young Kim, Hong-Yeol Lee, Dong-Suk Jun and Sang-Seok Lee

ETRI

#### Abstract

For the millimeter-wave dielectrics, Forsterite-based ceramics were produced. Pure forsterite ceramics( $Mg_2SiO_4$ ) shows porous micro-structure and very low  $Q*f$  values, which is not suitable for the dielectrics for the millimeter-wave band. Several sintering aids including  $Al_2O_3$ ,  $Li_2CO_3$ ,  $Li_2SiO_4$ , were added to the forsterite ceramics in order to produce dense low-loss dielectrics. Among these additives,  $Li_2CO_3$  is the most effective sintering aids. Several sub-components including  $NiO$ ,  $ZnO$ ,  $SnO_2$ ,  $TiO_2$ , were added to enhance the microwave dielectric properties.  $TiO_2$  is the most effective additive to enhance the dielectric properties at microwave bands. The simultaneous addition of  $TiO_2$  and  $Li_2CO_3$  increases  $Q*f$  value over 170,000, which can be used as dielectrics in millimeter-wave bands.

**Key Words :** Forsterite, dielectric constant, quality factor

#### 1. 서 론

차세대 정보통신서비스를 위한 주파수 자원으로 30GHz 이상의 초고주파 자원인 밀리미터파 대역의 주파수가 적극 검토되고 있다. 이 대역의 주파수는 광대역특성을 이용하여 많은 양의 정보를 빠른 속도로 전달할 수 있고, 대기중의 전파감쇄가 크다는 점을 이용하면 인접지역에서 서로 간섭을 받지 않고서 동일한 주파수 대역을 사용할 수 있다는 주파수 재이용의 장점이 있기 때문에 많은 연구자들 사이에서 관심의 대상이 되어오고 있다.[1,2] 이에 따라 밀리미터파 주파수를 이용한 정보통신 서비스 및 시스템의 개발과 여기에 요구되는 각종의 소자부품에 대한 연구와 개발이 진행되고 있으며, 이와 함께 밀리미터파 대역에서 사용될 수 있는 세라믹 유전체소재의 개발이 요구되고 있다.

포스테라이트 세라믹은  $MgO$ 와  $SiO_2$  두가지 구성 성분으로 이루어지는 물질로서 유전상수가 작고

유전손실도 작은 특성을 가지는 것으로 알려져 있는바[3,4], 밀리미터파 대역용 유전체 소재에서 가장 절실히 요구되는 저 유전손실 특성을 만족시켜 줄 수 있는 소재로 주목받고 있다.

본 연구에서는 고순도의 원료분말을 이용하여 상합성을 완료한 포스테라이트 분말을 이용하여 일반적인 고상소결법을 이용하여 포스테라이트 유전체를 제조하고 그 유전특성(유전상수 및 품질계수)을 마이크로파 대역에서 측정하였다. 또한 순수 포스테라이트에 몇가지의 소결조제를 첨가한 조성의 포스테라이트 소결체에 대해서도 마이크로파 유전특성을 측정하여 그 결과를 보고하고자 한다.

#### 2. 실 험

고순도(99.9%)의  $MgO$  및  $SiO_2$  산화물 분말을 출발원료로 하여 포스테라이트의 조성이 되도록 각각을 2:1의 몰비로 혼합하였다. 원료분말을 폴리에틸렌 병에 넣고 에탄올과 지르코니아 볼을 이용

하여 20시간 동안 습식 밀링을 하고 100°C로 설정된 건조기 내에서 밤새 건조시켰다. 건조된 혼합분말을 100번 체(sieve)로 체거름하고 이를 알루미나 도가니에 담아서 전기로에서 1250°C/2시간의 조건으로 하소(calcination) 하였다. 하소가 완료된 분말에 부조성 물질로  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  그리고  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ 를 각각 2wt.%씩 과잉으로 첨가하여 다시 습식 혼합을 하고 이를 건조시킨 후에 200번 체로 체거름하여 조성분말을 준비하였다.

각 조성의 분말을 약 4g씩 청량하여 직경 20mm의 원형몰드로 성형하고(1.8~2ton의 무게로 가압), 1350 ~ 1550°C에서 4시간 동안 소결한 후 벡터네트워크 분석기를 이용하여 마이크로파 대역에서의 유전상수 및 품질계수를 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

그림 1에 소결온도에 따른 포스테라이트의 유전율과 품질계수의 변화를 나타내었다. 1500°C이하의 온도에서 소결한 경우는 품질계수가 매우 낮은 값을 보여주는데 이는 소결체가 충분히 치밀화되지 못하기 때문으로 생각된다. 1550°C 이상에서는 품질계수가 30,000이상의 값을 가지나 밀리미터파 대역에서 사용하기에는 부적절하다. 이상에서 알아본 바와 같이 포스테아리트는 소결온도가 높기 때문에 소결조제를 첨가하여 소결온도를 낮춘는 연구를 수행하였다. 그림 2에  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$  그리고  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ 를 각각 2wt.%씩 과잉으로 첨가하여 1550°C에서 4시간 동안 소결한 소결체의 미세구조를 나타내었다.

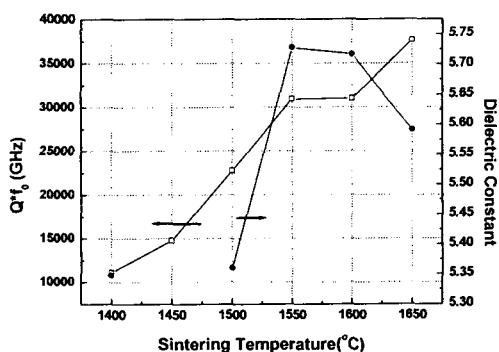


그림 1. 순수한 포스테라이트의 소결온도에 따른 유전특성의 변화.

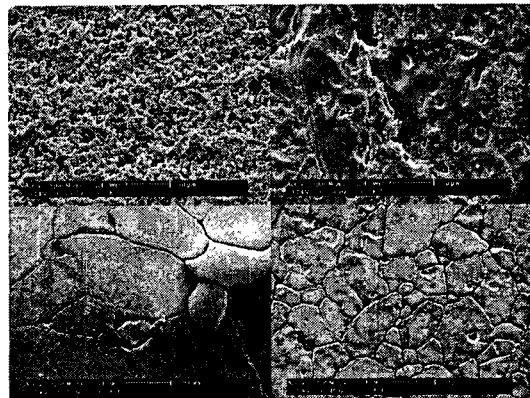


그림 2. 소결조제 첨가 포스테라이트 소결체의 미세구조(a. 순수한 포스테라이트, b.  $\text{Al}_2\text{O}_3$  첨가, c.  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ 첨가, d.  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ 첨가).

순수한 포스테라이트의 경우는 1550°C에서도 충분히 치밀화되지 않아서 기공이 매우 많은 구조를 보여준다.  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 를 소결조제로 첨가한 경우는 순수한 포스테라이트에 비해 소결체의 입자가 상당히 커졌음을 알 수 있다. 그러나 입자들간의 경계가 분명치 않은 점으로 보아서 실제로 결정립인지의 여부는 불분명하다. 또한 많은 크레이 존재한다. 이것 역시도 소결체의 유전특성에 좋지 않은 영향을 미친다고 생각된다. 그림3의 유전특성을 보면 온도의 상승과 더불어 품질계수도 커지고 있다. 이는 온도의 증가와 더불어 소결이 진행되기 때문이다. 그러나  $Q_{xf}$ 가 가장 높은 경우에도 55,000정도로 낮은 값을 가진다.

$\text{Li}_2\text{CO}_3$ 를 첨가한 포스테라이트의 경우는 입성장이 활발히 진행되어서 매우 발달된 구조를 보여준다. 결정립의 크기도 커서 평균  $400\mu\text{m}$ 의 크기를 가진다. 또한 입내나 입계에 기공을 가지지 않는 매우 치밀한 구조를 보여주고 있다. 이러한 구조를 가지는 소결체가 높은 품질계수를 가지리라 예상된다. 실제로 측정한 품질계수는 90,000정도로 다른 경우보다 월등히 높았다.

$\text{Li}_2\text{SiO}_3$ 를 첨가한 경우도 매우 치밀한 미세구조를 보여준다. 이때의 평균 입경은  $50\mu\text{m}$ 정도로  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ 에 비해서는 작았다. 그러나 이 경우는 1350°C에서 소결한 것으로  $\text{Li}_2\text{SiO}_3$ 의 첨가가 소결조제로 작용하여 소결온도를 낮춘것으로 생각되나 품질계수는 58,000정도로 그리 높지는 않았다.

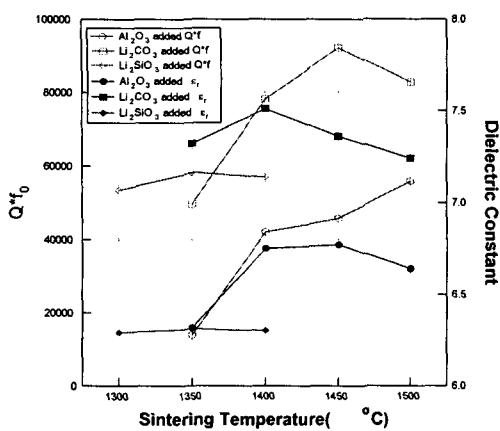


그림 3. 소결조제 첨가 포스테라이트 소결체의 소결온도에 따른 유전특성의 변화.

이상에와 같이  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  가 소결조제로 가장 적합함을 확인하였다.

포스테라이트의 유전특성을 향상시키기 위한 첨가물을 조사하기 위해서 포스테라이트의 구성원소인 Mg의 일부를 Ni, Zn로 또한 Si의 일부를 Sn, Ti로 치환했을 경우의 유전특성의 변화를 조사하였다. 그림 4에 각각의 원소가 첨가된 소결체의 유전특성을 나타내었다.

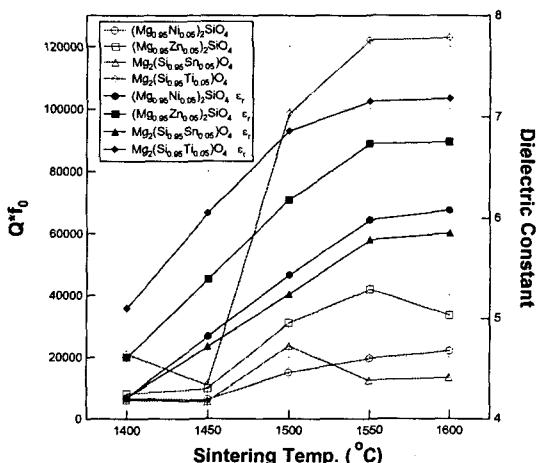


그림 4. 특성조제 첨가 포스테라이트 소결체의 소결온도에 따른 유전특성의 변화.

Mg 자리를 치환한 Ni와 Zn은 품질계수의 증진에는 별 도움을 주지 못하고 있으며, 이들 시편은

소결온도 증가에 따라 약간의 품질계수 증가를 나타낸다. 반면에 Ti를 소량 첨가시킨  $\text{Mg}_2(\text{Si}_{0.95}\text{Ti}_{0.05})\text{O}_4$  조성의 시편에서는 1500°C 이상의 소결온도에서 100,000을 상회하는 큰  $Q_{xf}$  값을 가지는 것으로 나타났으며, 소결조제를 첨가하지 않은 상황을 고려하면  $\text{TiO}_2$  부조성은 포스테라이트의 유전손실 특성을 개선시켜주는 우수한 특성 조제라고 생각할 수 있다. 그러나  $\text{Mg}_2\text{SiO}_4$  -  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  pseudo binary system의 상평형도를 참고하면 Ti가 Si 자리를 치환하여 들어가는 고용체상의 형성은 없고 대신 침가된  $\text{TiO}_2$ 가  $\text{MgO}$ 와 반응하여  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ 를 형성하여 1520°C 이하의 온도 범위에서  $\text{Mg}_2\text{SiO}_4$ 와  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  두 가지 상의 물질이 공존하는 것으로 나타나았다.  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ 는 포스테라이트에 비해 유전상수가 크고 또한 품질계수가 큰 물질로 알려져 있는바, 그림 4에 나타난  $\text{TiO}_2$ 를 첨가한 포스테라이트의 큰 품질계수는 바로  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ 에 의한 것이라고 판단된다. 그림 5에 각각의 첨가물을 첨가하여 1550°C에서 소결한 소결체의 미세구조를 나타내었다. NiO를 첨가한 시편은 순수한 포스테라이트의 미세구조와 거의 차이가 없는 기공이 많은 매우 porous한 구조를 보여주고 있다.  $Q_{xf}$ 가 20,000정도로 순수한 포스테라이트와 큰 차이가 없다.  $\text{SnO}_2$ 를 첨가한 시편도 마찬가지로 매우 porous한 구조를 나타내며  $Q_{xf}$ 도 20,000이하로 좋지 않다. 따라서 이러한 NiO와  $\text{SnO}_2$ 는 유전특성을 향상시키기 위한 소결 조제로는 적합하지 않다고 생각된다.

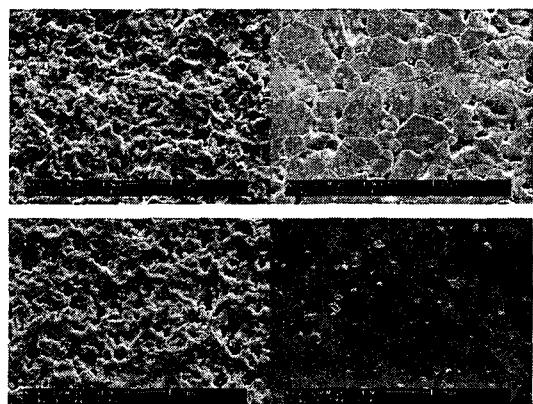


그림 5. 부조성첨가 포스테라이트 소결체의 미세구조 (a. NiO, b. ZnO, c.  $\text{SnO}_2$ , d.  $\text{TiO}_2$ ).

반면에 ZnO를 첨가한 소결체는 소결이 잘 진행되어서 어느 정도 치밀한 구조를 보여주고 있다. 그러나 입계에 많은 기공을 가지고 있어서 유전특성을 저하시키리라고 생각된다. 실제로 유전특성 측정결과를 보면  $Q_{xf}$  가 40,000을 약간 넘는 정도이다.

그러나  $TiO_2$ 를 첨가한 소결체는 미세구조 사진에서 볼수 있듯이 기공이 거의 없는 매우 치밀한 구조를 보여주고 있다. 유전특성 측정결과  $Q_{xf}$  가 120,000정도로 다른 첨가물에 비해서 매우 우수한 유전특성을 보임을 알 수 있다.

이상에서와 같이 Ti의 첨가에 의해서 1550°C 이상에서 소결하는 경우 품질계수가 크게 향상됨을 알 수 있었다. 여기에 소결조제 역할을 하는  $Li_2CO_3$  를 동시에 첨가하여 제조한 소결체의 유전특성을 그림 6에 나타내었다.  $TiO_2$  와  $Li_2CO_3$  의 동시첨가에 의해서  $Q_{xf}$  값이 크게 향상되었음을 알 수 있다. 즉 1500°C 이상의 온도에서 소결할 소결체의  $Q_{xf}$  값이 150,000이상으로 밀리미터파 대역의 유전체로 사용하기에 적합한 우수한 특성을 보여주고 있다.

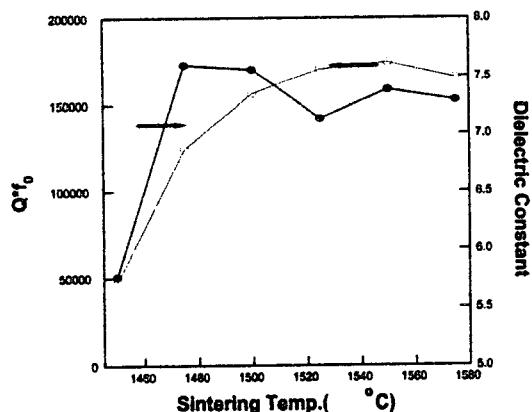


그림 6.  $TiO_2$  와  $Li_2CO_3$  의 동시첨가 포스테라이트의 소결온도에 따른 유전특성의 변화.

#### 4. 결 론

밀리미터파에서 사용 가능한 유전체로 포스테라이트 조성의 유전체를 제조하였다. 순수한 포스테라이트는 치밀화가 이루어지지 않아서 열악한 유전특성을 보여주었다. 포스테라이트의 소결을 도와주는 소결조제로  $Li_2CO_3$  를 선정하였다.  $Li_2CO_3$  의

첨가에 의해서 치밀화가 촉진되고 품질계수가 증가하였다. 또한 포스테라이트에서 Si의 일부를 Ti로 바꾸어 줌으로서 치밀하고 손실이 적은 유전체를 제조하였다.  $TiO_2$  와  $Li_2CO_3$  를 동시에 첨가하면 최대 170,000이상의  $Q_{xf}$  값을 가지는 우수한 유전체를 제조 할 수 있었다.

#### 참 고 문 헌

- [1] T. Matsui, "Overview of Market and Technologies for mm-wave Commercial Application", APMC2002 Workshops Digest, pp133-138, 2002
- [2] K. Takahashi, and M. Inoue, "Millimeter-wave Broadband Wireless LAN System Using Low-cost MCM Techniques", APMC2002 Workshops Digest, pp147-153, 2002
- [3] A. von Hippel, "Dielectric Materials and Applications", Technology Press of MIT, pp.183-184, 1954
- [2] K. Okazaki, "세라믹유전체공학", Gakken-sha Publishing Co.,Ltd., pp393-394, 1992.