

졸-겔 공정에 의해 제조된 저온소결 $MgCo_2(VO_4)_2$ 세라믹스의 마이크로파 유전특성

이지훈, 방재철
순천향대학교

Microwave Dielectric Properties of Low-temperature Sintered $MgCo_2(VO_4)_2$ Ceramics Synthesized by Sol-Gel process

Ji-Hun Lee, Jaecheol Bang
Soonchunhyang University

Abstract : We studied the effect of sol-gel processing and sintering temperature on the microwave properties of $MgCo_2(VO_4)_2$ system(MCV) which is applicable to LTCC(low-temperature cofired ceramics). The MCV was synthesized by sol-gel process using solution that contains precursor molecules for Mg, Co, and V. SEM analysis shows that the average particle size is $\sim 1 \mu m$ and size distribution is very uniform compared to the one prepared by conventional solid-state reaction process. Highly dense samples were obtained at the sintering temperature range of $750^\circ C \sim 930^\circ C$. The maximum $Q \times f_0$ value of 55,700GHz, dielectric constant(ϵ_r) of 10.41 and temperature coefficient(τ_f) of $-85 ppm/^\circ C$ was obtained at the sintering temperature of $930^\circ C$. The superior microwave properties of sol-gel processed MCV relative to conventional solid-state reaction processed one is remarkable especially at lower sintering temperatures such as $750^\circ C$ and $800^\circ C$.

Key word : Microwave dielectric properties, $MgCo_2(VO_4)_2$, sol-gel process, LTCC

1. 서 론

본 연구에서는 일반적 고상반응법에 의해 합성이 가능하고 저온 소결이 가능하며 마이크로파 유전특성이 우수하다고 알려진 $MgCo_2(VO_4)_2$ 계(MCV계) 조성 [1]에 대하여 졸-겔(sol-gel) 공정에 의해 분말을 제조하여 마이크로파 유전특성을 연구하였다. 즉, 고에너지 밀링과 같은 추가 장비나 공정 없이 졸-겔 공정을 이 조성에 도입하여 크기가 작고 그 크기 분포가 균일한 분말을 제조함으로써, 소결온도를 크게 낮추면서도 우수한 마이크로파 유전특성을 갖는 세라믹스를 개발하고자 한다.

2. 실험방법

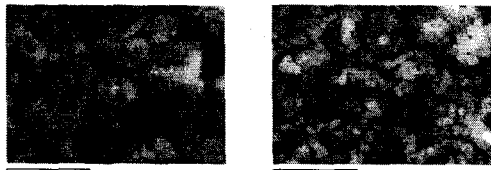
졸-겔 공정에 사용한 금속 유기염 원료는 각각 Magnesium nitrate hexahydrate(99%, Aldrich), Cobalt(II) nitrate hexahydrate(>98%, Aldrich), Vanadium(III) acetylacetonate(>97%, Aldrich)이며, 이들을 1 : 2 : 2mol 비로 측정하여 acetic acid와 methanol의 4:1 혼합액 용매에 넣고 마그

네틱 핫플레이트에서 용해시킨 후, $90^\circ C \sim 100^\circ C$ 에서 겔을 형성 시켰다. 이 겔을 전기로에 장입하여 $5^\circ C/min$ 의 승온속도로 $700^\circ C$ 에서 10시간 하소하였으며, 하소하고 건조된 분말을 과립화 한 후 원주형 몰드에 넣고 $1000 kg/cm^2$ 의 압력으로 일축가압 성형하여 전기로에서 $5^\circ C/min$ 의 승온속도로 $750^\circ C \sim 930^\circ C$ 의 온도범위에서 5시간 소결하였다.

소결된 각 조성별 시편의 소결밀도, 마이크로파 유전특성 측정, XRD와 SEM 분석 등을 하였다

3. 결과 및 고찰

분말의 특성을 알아보기 위하여 졸-겔 공정과 고상반응 공정에 의해 각각 MCV 분말을 제조하고 $700^\circ C$ 에서 10시간 하소한 후에 전자주사현미경으로 관찰하였다. 그림 1에 나타난 바와 같이 고상반응에 의해 제조된 분말들은 크기도 매우 불균일하고 $\sim 5 \mu m$ 이상의 분말들이 많이 관찰된 반면, 졸-겔 공정에 의해 제조된 분말들은 크기가 $\sim 1 \mu m$ 정도이고 분포도 균일한 것을 확인할 수 있었다.



고상반응법

졸-겔법

그림 1. 고상반응법과 졸-겔법에 의해 분말제조 후 700℃에서 10시간 하소한 MCV 분말의 미세조직 사진.

그림 2에는 졸-겔 공정에 의해 제조한 MCV 세라믹스의 소결 및 마이크로파 유전특성 측정 결과를 나타내었다. 밀도는 소결 온도에 따라 지속적으로 증가하였는데, 특히 표 1에 나타난 바와 같이 저온에서 두 공정간 밀도의 차가 컸다. 750℃에서 고상반응 분말은 거의 소결이 일어나지 않은 반면 졸-겔 분말은 3.5 g/cm³으로 치밀화가 상대적으로 많이 진행되었다. 상대 유전율(ϵ_r)은 소결 온도구간에서 9.12~10.41로 온도에 따라 증가하는 경향을 나타냈으며, 두공정간에 차이는 크지 않았지만 졸-겔법의 경우가 상대유전율이 다소 높았는데 이는 치밀화가 더 진행된 결과에 의한 것이라 사료된다. 품질계수($Q \times f_0$)도 소결온도에 따라 증가하여 930℃에서 최대값인 55,700GHz에 달하였다. 이는 치밀화와 이에 수반되는 입자성장의 결과에 기인한 것으로 설명되어진다. 한편, 저온인 750℃와 800℃에서도 각각 34,400GHz, 45,600GHz로 높은 품질계수를 나타내는 것이 주목할 만하며, 이 값은 이전의 Umemura의 연구 결과[1]에서 보다 우수한 결과이다. 공진주파수 온도계수는 소결온도 구간에서 -10 ppm/℃로부터 -85ppm/℃으로 온도에 따라 감소하는 경향을 나타냈다.

표 1. 고상반응법과 졸-겔법에 의해 제조된 MCV 세라믹스의 마이크로파 유전특성 비교.

소결온도 /시간	밀도 (g/cm ³)		ϵ_r		$Q \times f_0$ (GHz)		τ_f (ppm/℃)	
	◇	◆	◇	◆	◇	◆	◇	◆
750℃/5h	x	3.5	x	9.12	x	34400	x	-10
800℃/5h	2.9	3.9	9	10	19500	45600	-15	-16
850℃/5h	3.9	4.0	9.5	10	43000	52000	-20	-50
900℃/5h	3.9	4.2	10.04	10.31	45000	55300	-24	-55
930℃/5h	4.2	4.4	10.01	10.41	55310	55700	-5	-85

◇고상반응법, ◆졸-겔법, x측정불가

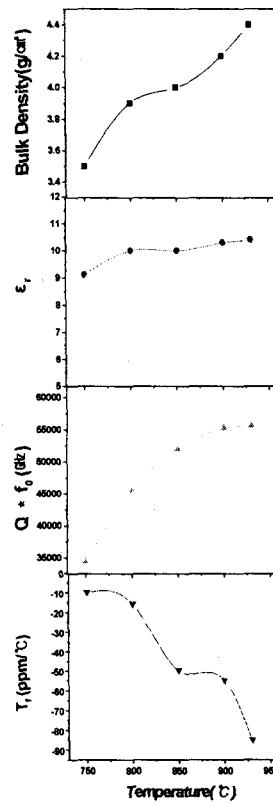


그림 2. 소결온도에 따른 MCV 세라믹스의 밀도 및 마이크로파 유전특성변화.

4. 결 론

졸-겔 공정에 의해 입도가 작고 균일한 크기 분포를 갖는 저온소결 가능한 MCV 마이크로파 유전체를 개발하였다. 가장 우수한 마이크로파 유전특성을 보인 시편은 930℃에서 5시간 소결한 것으로써, 이때의 $Q \times f_0 \sim 55,700$ GHz, $\epsilon_r \sim 10.41$, $\tau_f \sim -85$ ppm/℃ 이었다. 한편, 800℃ 이하의 저온에서 소결시 고상반응에 의해 제조된 시편과 비교하여 그 우수성이 더욱 현저하였다.

감사의 글

본 연구는 산업자원부 지방기술혁신사업 (RTI04-01-02) 지원으로 수행되었음.

참고 문헌

- [1] R. Umemura, H. Ogawa and H. Ohsato et., "Microwave dielectric properties of low-temperature sintered Mg₃(VO₄)₂ ceramic", J.Eur. Ceram. Soc., 20, p.2865, 2005.