

저온 소결용 고유전율 마이크로파 세라믹스

남명화, 김효태*, 김종희*, 남산**
 요업기술원*, 고려대학교**

High Permittivity Microwave Ceramics for Low-temperature Sintering

Myoung Hwa Nam, Hyo Tae Kim*, Jong Hee Kim* and Sahn Nahm**

Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology*, Dept. of Mat. Sci. & Eng., Korea University.**

Abstract

저온동시 소결용 세라믹스, LTCC, 를 사용한 RF/MW용 고유전율 세라믹을 개발하기 위하여 300이상의 고유전율과 낮은 손실 계수를 가지는 것으로 알려진 $Ag(Nb_{1/4}Ta_{3/4})O_3$ 고용체와 $CaTiO_3$, TiO_2 를 각각 혼합하여 공진주파수의 온도 계수가 0 에 가까운 안정된 유전체 특성을 얻고자 하였다. 유전율의 온도 안정성을 도모하기 위해 음의 온도 계수를 갖는 $Ag(Nb_{1/4}Ta_{3/4})O_3$ 와 양의 온도계수를 갖는 $CaTiO_3$ 및 TiO_2 를 일정 분율로 혼합한 복합체 구조의 시편을 제작하였다. LTCC 소자로의 적용을 위해 3wt.% 의 CuO를 첨가하여 소결 온도를 낮추었으며^[1], 소결 시편의 상 분석, 미세구조 및 전기적 특성을 조사하였다.

Key Words : $Ag(Nb,Ta)O_3$, $CaTiO_3$, TiO_2 , 주파수의 온도 계수, LTCC

1. 서 론

무선 통신 기기의 발전에 따른 RF/ Microwave 대역으로의 주파수 영역 확장과 부품의 소형화는 높은 유전율과 낮은 손실값을 요한다.

또한 Microwave 대역에서는 비저항 값이 낮은 Ag, Cu 전극이 사용되므로 이들의 용융 온도 (Ag: 961°C , Cu: 1083°C) 보다 낮은 온도에서 소성되어야 한다.

저온동시소성 세라믹스 (Low Temperature Cofired Ceramics, LTCC)는 기판용 재료와 내장 캐피시터용 재료로 구분지을 수 있으며^[2] 내장 캐피시터용 저온동시소성 세라믹스는 필터 등 다기능성 요소를 구성하기 위해 다양한 유전율을 갖는 물질들이 연구되고 있다.

본 연구에서는 고유전율과 낮은 손실 계수 ($\epsilon_r > 300$, $\tan \delta < 0.004$)를 갖는 것으로 알려진 $Ag(Nb_{1/4}Ta_{3/4})O_3$ ^{[1][3][4][5]}와 $CaTiO_3$ 및 TiO_2 를 각각 혼합하여 고유전율, 저손실율과 함께 0에 가까운 안정된 공진 주파수의 온도계수를 얻고자 하였다.

2. 실험

$Ag(Nb_{1/4}Ta_{3/4})O_3$ [이하 ANT(13)] 의 출발 원료는 Ag_2O , Nb_2O_5 , Ta_2O_5 ((≥99%, High Purity Chemicals, Japan)을 사용하여 ethanol을 매개로 습식 혼합하였다. 건조된 분말은 air 분위기에서 1100°C 온도로 2시간동안 하소하였다.

하소한 ANT(13) 분말과 $CaTiO_3$ 및 TiO_2 를 다음 식에 따라 혼합하였다.

$$\tau_c = (1-v) \cdot \tau_c(\alpha) + v \cdot \tau_c(\beta)$$

혼합 분말은 $\phi 10mm$ steel 몰드로 1000 kg/cm² 압력하에서 성형하였으며 SiC 튜브로에서 5°C/min의 승온 속도로 900~1000°C 온도에서 2시간 동안 소결하였다. 소결은 Ag가 환원되는 것을 방지하기 위하여 air 분위기에서 진행하였다^[6].

하소 및 소결한 시편의 상분석은 X-ray powder diffractometer (XRD: M03XHF22, Mac Sci. Co. Ltd., Japan, Cu-K α radiation) 을 사용하여 40KV-30mA로 20°≤2θ≤60° 구간에서 5°/min로 측정하였다. 미세구조는 Scanning Electron Microscopy를 통해 관찰하였다. 정전용량과 유전손실은 Impedance Analyzer (4294A, Agilent Technologies, U.S.A)를 사용하여 1MHz에서 측정하였다. 공진 주파수의 온도 계수는 전기 용량/ 저항 온도 특성 평가 시스템 (Saunders & Associates Inc./W-2500) 을 통해 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

1100°C에서 2시간 하소한 ANT(13) 분말과 $CaTiO_3$ 및 TiO_2 를 혼합하고 소결 조제로 3wt.% CuO를 첨가한 후 1000°C에서 소결한 시편의 XRD 패턴은 그림 1.과 같다.

ANT(13) 과 $CaTiO_3$ 및 TiO_2 의 상과 함께 unknown 상이 관찰되었다. 이는 첨가제에 따른 영향이라고 추측할 수 있다.

그림 2.는 ANT(13)와 $CaTiO_3$ 혼합 분말에 3wt.% CuO를 첨가한 후 1000°C에서 소결한 시편의 파단면에 대한 SEM 이미지이다.

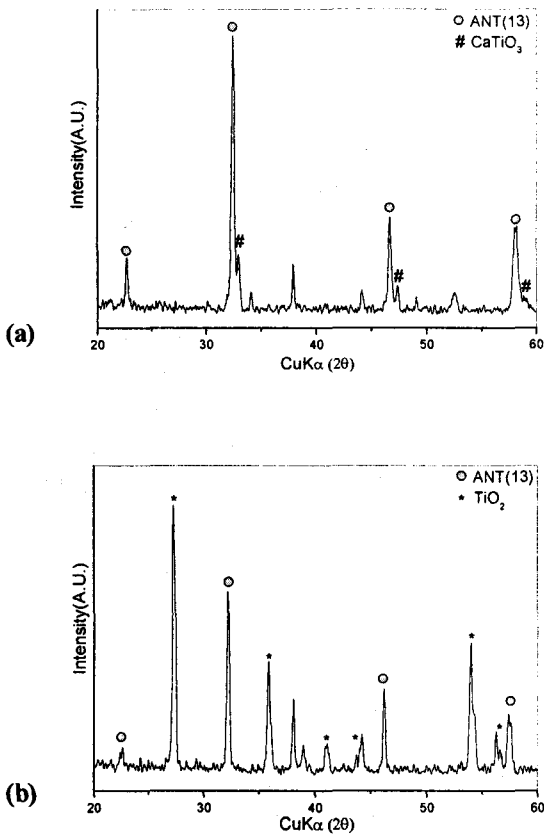


그림1. 3wt.% CuO를 첨가한 $Ag(Nb_{1/4}Ta_{3/4})O_3$ solid solution 과 (a) $CaTiO_3$ 혼합 (b) TiO_2 혼합후 $1000^\circ C$ 에서 2시간 소결한 시편의 XRD 패턴.

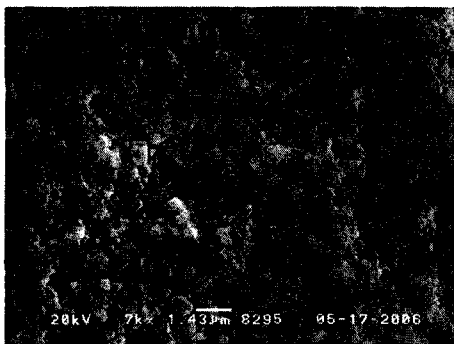


그림2. 3wt.% CuO를 첨가한 $Ag(Nb_{1/4}Ta_{3/4})O_3$ 과 $CaTiO_3$ 혼합한 시편을 $1000^\circ C$ 에서 2시간 소결한 시편의 SEM 이미지.

저온 소결 조제로 CuO를 첨가하였으나 $1000^\circ C$ 에서 치밀화 하지는 못한 것으로 보여진다. 이는 모상과의 반응에 따른 결과라고 생각되며, 따라서 소결 조제의 반응에 따

른 영향을 줄이고자 대체 소결제를 고안하여 실험을 보완하고자 한다.

1MHz에서 측정된 유전율과 유전 손실 및 절연 특성은 표 1. 과 같다.

표1. 3wt.% CuO를 첨가한 $Ag(Nb_{1/4}Ta_{3/4})O_3$ solid solution과 (a) $CaTiO_3$ 혼합 (b) TiO_2 혼합후 $1000^\circ C$ 에서 2시간 소결한 시편의 전기적 특성.

	ϵ_r	$\tan\delta$	I.R.(Ω)
(a)	252.67	0.06	1×10^7
(b)	380.86	0.03	1×10^6

4. 결론

본 연구에서는 고유전율 재료로 음의 온도 계수를 가지는 것으로 알려진 $Ag(Nb_{1/4}Ta_{3/4})O_3$ 고용체와 양의 온도 계수를 가지는 $CaTiO_3$, TiO_2 를 각각 혼합하여 유전율의 온도 안정성을 도모하고자 하였다.

그러나, 소결 조제와 모상이 반응함에 따라 전기적, 유전적 특성이 저하됨을 확인하였다.

따라서, ANT(13) 고용체와 $CaTiO_3$ 및 TiO_2 복합체의 2 phase만 공존함과 동시에, 소결 온도를 낮출 수 있는 소결 조제의 대체가 요구된다.

참고 문헌

- [1] H.T.Kim, T. ShROUT, C. Randall, M. Lanagan, J. Am. Ceram. Soc., 85 [11] 2738-44 (2002)
- [2] 김동환, 홍국선, 세라미스트, 6 [1] 21-25, 2003
- [3] C. Wang, T. ShROUT, G. Yang, H.T.Kim, D. K. Kwon & M. Lanagan, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., vol. 783, 2004
- [4] M. Valant, D. Suvorov, J. Am. Ceram. Soc., 82 [1] 81-87 (1999)
- [5] M. Valant, D. Suvorov, J. Am. Ceram. Soc., 82 [1] 88-93 (1999)
- [6] A. Kania, Phase Transitions, vol. 3, 131-140, 1983