

## 솔-젤법에 의해 제조한 $Mg_4Nb_2O_9$ 세라믹스의 마이크로파 유전특성

임성우, 이상욱, 방재철  
순천향대학교

### Microwave Dielectric Properties of $Mg_4Nb_2O_9$ Ceramics Produced by a Sol-gel Route

Sung-woo Lim, Sang-wook Lee, and Jaechool Bang  
Soonchunhyang University

**Abstract** :  $Mg_4Nb_2O_9$  (MN) ceramics have been prepared by a sol-gel method. The powder characteristics, phase evolution, and microwave dielectric properties of the MN were investigated in various processing conditions such as sol-gel compositions, calcination, and sintering temperatures. A  $Q \times f_0$  value of 111,717 GHz with a  $\epsilon_r$  of 10.59 and a  $\tau_f$  of +1.736 ppm/°C was obtained after sintering at 1300°C for 5 h.

**Key Words** ::  $Mg_4Nb_2O_9$ , Sol-gel route, Microwave dielectric properties, Sintering, Calcination

#### 1. 서론

1990년대 중후반 휴대전화는 900 MHz~1.2 GHz의 주파수 대역을 사용하였고, 최근 2 GHz 이상의 주파수 대역을 사용하고 있으며, 무선 LAN 등 네트워크 관련기기나 자동차 관련부품의 사용 주파수대는 S band (2~4 GHz)나 이 이상의 Ka band 등으로 더욱 높아지고 있다. 이러한 마이크로파 대역에서 대용량의 정보를 높은 품질과 고속으로 서비스하기 위해서는 낮은 유전손실, 0 ppm/°C 근접한 공진주파수 온도계수, 및 모듈에 적합한 다양한 유전율의 조건 및 품질계수가 요구된다. 이에 본 연구에서는  $Mg_4Nb_2O_9$ (MN) 세라믹스를 선정하여, 솔-젤(sol-gel) 공정에 의해 분말을 제조함으로써 마이크로파 유전특성의 조절 및 향상 여부를 이해하기 위한 연구를 하였다.

#### 2. 실험 방법

순도 99%의 Magnesium nitrate hexahydrate ( $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ )(Aldrich)와 Niobium(V) chloride ( $NbCl_5$ )(Aldrich)를 각각 탈이온수(DI water)에서 마그네틱 스테러로 24시간 혼합한 후, Ethylene glycol과 Citric acid를 4:1로 혼합한 용액을 1~5 ml 첨가한다. 90°C에서 24시간 혼합을 다시한 후, 135°C에서 24시간 고분자화(polymerization), 250°C에서 24시간 잔류 유기물과 용매를 제거 한다. 완전하게 건조된 분말을 승온속도 10°C/min로 700°C에서 5시간 하소한 후, 900°C~1300°C에서 5시간동안 각각 소결한다. 하소한 분말 및 소결체의 상변화를 확인하기 위하여 X-ray 회절기 (D/Max-2200PC, RIGAKU Japan)로 분석하였고, 유전특성 중 품질계수에 영향을 미치는 미세조직변화를 관찰하기 위하여 SEM(JEOL-5310)으로 관찰 하였고, 소결밀도는 Archimedes 법으로 측정하였다. 그리고 품질계수와 유전율은 Network Analyzer (8720ES, Agilent, USE)를 이용하여 Hakki 와 Coleman 에 의해 제시되고 Kobayashie 등이 보정한 평행판법(parallel plate method)을 이용하여 유전율( $\epsilon_r$ ) 과 품질계수 ( $Q \times f_0$ )를 측정하였다.

#### 3. 결과 및 고찰

그림1에 MN을 700°C에서 5시간 하소한 후의 XRD 결과를 Ethylene glycol : Citric acid (4:1)의 첨가량의 변화에 따라 비교하였다. 1~2ml 첨가한 MN에서는  $Mg_4Nb_2O_9$ 상 이외에 미량의  $MgNb_2O_6$ 상이 존재하지만 3ml이상 첨가한 XRD결과에서는  $Mg_4Nb_2O_9$ 의 단일상이 검출되었다.

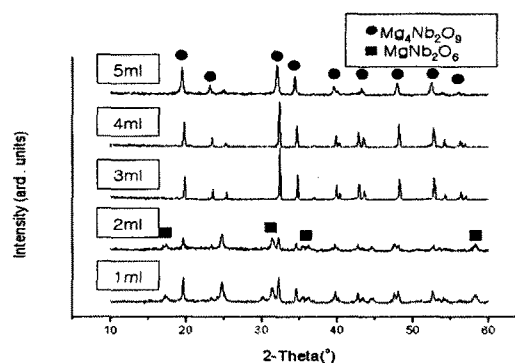


그림 1. MN 수열합성시 첨가한 Ethylene glycol : Citric acid (4:1)의 양에 따른 MN의 700°C에서 5시간 하소 후 XRD 패턴

그림2에는 유전 특성이 가장 좋았던 Ethylene glycol : Citric acid (4:1)를 1ml 첨가 후, 900~1300°C 소결한 후의 XRD 결과를 나타내었다.  $Mg_4Nb_2O_9$ 이 주상이었으며, 900 ~ 1200°C 소결한 경우,  $MgNb_2O_6$ 상이 미량이지만 공존하였고, 1300°C에서는  $Mg_4Nb_2O_9$ 이 단일상으로 존재하였다.

그림 3에는 MN을 900~1300°C의 온도범위에서 소결한 후 측정된 소결 및 마이크로파 유전특성을 Ethylene glycol : Citric acid (4:1)의 첨가량별로 비교한 결과를 나타내었다. 그림 3에 나타난 바와 같이 2,029 ~ 111,717GHz까지 광범위하게  $Q \times f_0$  값이 변하였다. 소결밀도와 유전율( $\epsilon_r$ )은 소결 온도가 높을수록 증가하였으며 각각 2.2 ~ 4.0  $g/cm^3$ , 6.5 ~ 15 정도의 값을 보였다.  $Q \times f_0$  값은 1300°C 소결시 가장 높은 값을 나타내었으며, Ethylene glycol : Citric

acid (4:1) 1ml 첨가의 경우가 최대값으로써 111,717GHz로 측정되었다. 공진주파수온도계수( $\tau_f$ )는 -10 ~ +6 사이의 값이 나왔으며 Ethylene glycol : Citric acid (4:1) 1ml 첨가시 +1.763 ppm/°C로 측정되었다.

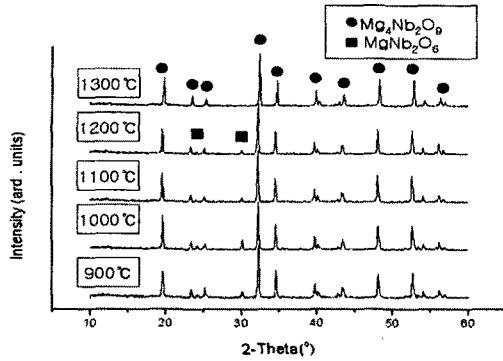


그림 2. MN 수열합성시 첨가한 Ethylene glycol : Citric acid (4:1)의 양이 1ml인 경우, 900~1300°C에서 5시간 소결 후 MN의 XRD 패턴

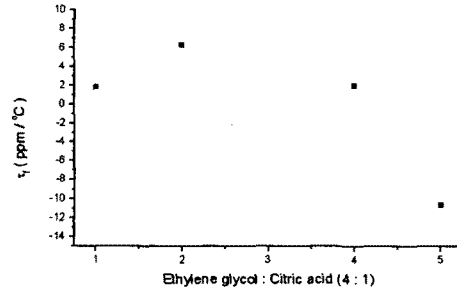
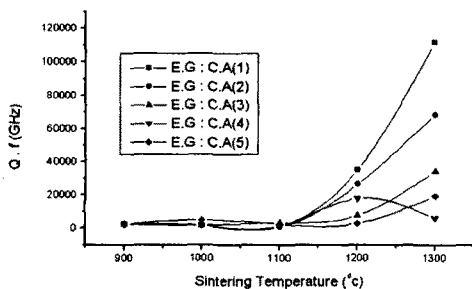
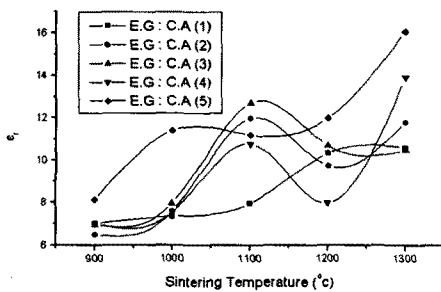
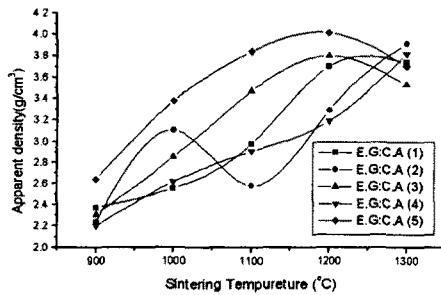


그림 3. MN의 소결밀도와 마이크로파 유전특성의 변화

#### 4. 결론

습-겔법에 의해  $Mg_4Nb_2O_9$ (MN) 마이크로파 유전체 세라믹스를 제조하였다. Ethylene glycol : Citric acid (4 : 1) 첨가량, 하소온도, 소결온도에 따른 소결 및 마이크로파 유전특성을 연구하였다. Ethylene glycol : Citric acid (4:1) 1ml 첨가하고, 700°C에서 하소 후, 1300°C에서 소결된 조건에서  $Q \times f_0 = 111,717\text{GHz}$ ,  $\epsilon_r = 10.59$ ,  $\tau_f = 1.763\text{ppm/}^\circ\text{C}$ 의 우수한 마이크로파 유전체를 제조할 수 있었다.

#### 감사의 글

이 논문은 산업자원부 한국산업기술평가원 지정 순천향대학교 차세대BIT우선부품지역혁신센터 지원에 의한 것입니다.

#### 참고 문헌

1. 심우성, 방재철 "( $Zn_{0.8}Mg_{0.2}$ )TiO<sub>3</sub> 세라믹의 마이크로파 유전특성에 관한 연구", 전기전자재료학회논문지, 16권, 7호, p.604
2. 이지형, 방재철 "ZnTiO<sub>3</sub> 계 마이크로파 유전체 세라믹스의 저온소결에 관한 연구", 전기전자재료학회 논문지, 15권, 1호, p.30, 2002
3. 김준철, 이형규, 방규석, "고주파 유전체 재료의 특성 측정방법", 전기전자재료학회지, 11권, 5호, p.412, 1988
4. 박재환, 박재관, "마이크로파 유전체의 미세구조와 품질계수의 상관관계에 대한 컴퓨터 시뮬레이션", 한국재료학회지, 11권, 2호, p.146, 2001.