

수열합성법에 의해 제조한 $Mg_4(Nb_{2-x}V_x)O_9$ 세라믹스의 마이크로파 유전특성

이상욱, 임성우, 김윤태, 방재철

순천향대학교

Microwave Dielectric Properties of $Mg_4(Nb_{2-x}V_x)O_9$ Ceramics Produced by a Hydrothermal Method

Sangwook Lee, Sungwoo Lim, Yoontae Kim, and Jaechoel Bang

Soonchunhyang University

Abstract : $Mg_4(Nb_{2-x}V_x)O_9$ (MNV) ceramics have been prepared by a hydrothermal method. Low-temperature sintering of $Mg_4(Nb_{2-x}V_x)O_9$ (MNV) by V substitution for Nb was discussed in this study. A $Q \cdot f_0$ value of 103,297 GHz with a ϵ_r of 12.56 and a τ_f of -10.53 ppm/°C was obtained when $x=0.0625$ after sintering at 1100°C for 5 h.

Key Words : $Mg_4(Nb_{2-x}V_x)O_9$, Microwave dielectric properties, Hydrothermal method, Sintering

1. 서 론

최근 정보통신의 발달로 이동통신 및 위성방송의 정보통신 분야에서 마이크로파를 이용하는 유전체 세라믹 소자에 대한 연구가 증대되고 있다. 마이크로파 유전체는 유전체 공진기, 발진기 등에 사용된다. 높은 품질계수와 유전율은 마이크로파 유전체 소자가 소형화하기 위한 중요한 특성이고, 온도에 변화에 따른 신뢰성을 위해 0ppm/°C에 가까운 온도계수가 필요하다.

본 연구에서는 현재 많은 연구가 진행중인 $Mg_4Nb_2O_9$ (MNV) 세라믹스에 대해 Nb를 V으로 일부 치환하고, 수열합성법에 의해 나노 스케일의 분말을 제조함으로써, 소결온도를 저하하고자 하였다.

2. 실험 방법

순도 99%의 Magnesium nitrate hexahydrate ($Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$) 와 Niobium(V) chloride ($NbCl_5$), 순도 97%의 Vanadium(III) acetylacetonate ($V(C_5H_7O_2)_3$)를 각각 탈이온수 (DI water)에서 녹인 후 혼합한다. 혼합된 용액을 마그네슘 교반기에서 24시간 유지하여 완전히 용해한 후, NH_4OH 를 이용하여 용액의 pH를 10.33으로 적정한다. 이 용액을 Autoclave에 장입하고 90°C 72시간 유지한 후, 침전된 분말을 원심분리기를 이용하여 추출하고, 건조기에서 90°C로 건조한다. 건조된 분말을 700°C에서 20시간 하소한 후, 1000°C ~ 1300°C에서 5시간 각각 소결한다. 하소한 분말 및 소결체의 상변화와 V 첨가량에 따른 2차상의 생성유무를 확인하기 위하여 X-선 회절기 (D/Max-2200 PC, RIGAKU Japan)로 분석하였고, 유전특성 중 품질계수에 영향을 미치는 미세조직변화를 고찰하기 위하여 Field Emission Scanning Electron

Microscopy(FE-SEM)로 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(ϵ_r)과 품질계수($Q \times f_0$)를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

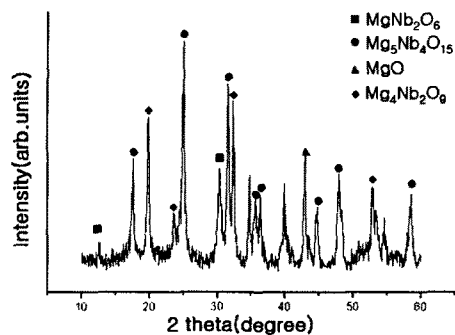


그림 1. $Mg_4(Nb_{2-x}V_x)O_9$ ($x=0.0625$)의 700°C에서 20시간 하소 후 XRD 패턴

그림1은 $x=0.0625$ 조성의 MNV를 700°C에서 20시간 하소 후의 XRD 회절결과로써, $Mg_4Nb_2O_9$, $MgNb_2O_6$, $Mg_5Nb_4O_{15}$, MgO 상이 공존함을 알 수 있었다.

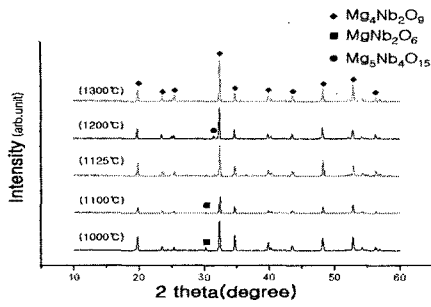


그림 2. $Mg_4(Nb_{2-x}V_x)O_9$ ($x=0.0625$)의 1000°C~1300°C에서 5시간 소결 후 XRD 패턴a

그림 2는 $x=0.0625$ 조성의 MNV를 1000°C~1300°C에서 5시간 소결 후 XRD 패턴으로써 모든 소결온도에서 주상이 $Mg_4Nb_2O_9$ 상이고 1000°C와 1100°C에서 $MgNb_2O_6$ 상이 관찰되었고, 1200°C에서는 $Mg_5Nb_4O_{15}$ 상이 나타났다.

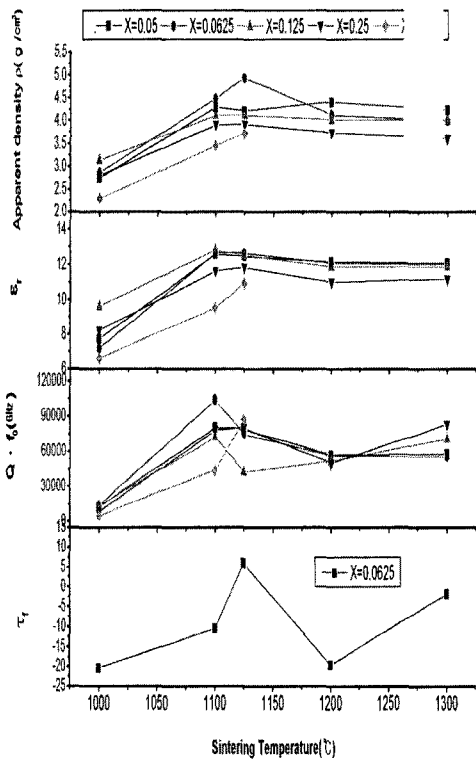


그림 3. $Mg_4(Nb_{2-x}V_x)O_9$ ($x=0.05-0.5$) (a)밀도, (b)유전율(ϵ_r), (c)품질계수($Q \times f_0$), (d)손도계수(τ_f)

MNV의 소결 및 마이크로파 유전특성 결과를 그림 3에 나타내었다. 조성이 $x=0.0625$ 일 때 소결온도 1100°C에서 가장 우수한 마이크로파 유전특성을 나타내었다. 이때의 ϵ_r 은 12.65이고, $Q \times f_0$ 값은 103,297GHz이었다. V 첨가에 따라 밀도와 유전율은 감소하는 경향을 보였고, 소결온도에 따른 τ_f

의 변화 경향에 대해서는 특정한 연관성을 찾지 못하였다.

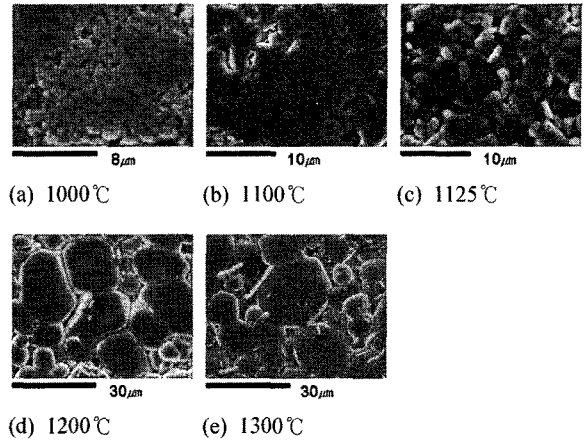


그림 4. FE-SEM micrographs of $Mg_4(Nb_{2-x}V_x)O_9$ at $x=0.0625$ sintered at 1000, 1100, 1125, 1200 and 1300°C for 5h in air

한편, 그림 4는 $x=0.0625$ 조성의 소결 후 미세조직 사진으로써, 1125°C에서 액상의 출현하기 시작하고 비정상 결정립 성장이 과도하게 일어나는 것을 알 수 있었다. 이것이 1100°C 이후 $Q \times f_0$ 값의 저하를 초래하는 것으로 사료된다.

4. 결론

수열합성법에 의해 제조한 $Mg_4(Nb_{2-x}V_x)O_9$ 의 마이크로파 유전특성을 연구하였다. 수열합성법에 의해 나노 스케일의 분말을 얻을 수 있었으며, $x=0.0625$ 의 조성에서 $Mg_4Nb_2O_9$ 의 경우보다 훨씬 낮은 소결온도인 1100°C의 소결로 매우 우수한 마이크로파 유전특성을 얻을 수 있었다. 이때의 $Q \times f_0=103,297\text{GHz}$, $\epsilon_r=12.65$, $\tau_f=-10.53$ 이었다.

감사의 글

이 논문은 산업자원부 한국산업기술평가원 지정 순천향대학교 차세대BIT우선부품지역혁신센터 지원에 의한 것입니다.

참고 문헌

1. 심우성, 방재철 “ $(Zn_{0.8}Mg_{0.2})TiO_3$ 세라믹의 마이크로파 유전특성에 관한 연구”, 전기 전자재료학회논문지, 16권, 7호, p.604, 2003
2. 이지형, 방재철 “ $ZnTiO_3$ 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