

V₂O₅ 첨가가 Zn₃Nb₂O₈ 마이크로파 유전체 특성에 미치는 영향

윤호병 · 이태근 · 황연[†]
서울산업대학교 신소재공학과

The Effect of V₂O₅ Addition on the Microwave Dielectric Properties of Zn₃Nb₂O₈ Ceramics

Ho Byung Yun, Tae-Kun Lee and Yeon Hwang[†]

Department of Materials Science & Engineering, Seoul National University of Technology, Seoul 139-743, Korea

요 약

Zn₃Nb₂O₈ 세라믹스에 액상소결제인 V₂O₅를 첨가하여 소결하여 고주파 대역에서의 유전특성의 변화를 조사하였다. 1100°C에서 2시간 하소한 결과 Zn₃Nb₂O₈를 합성할 수 있었고, V₂O₅를 첨가하여 소결한 Zn₃Nb₂O₈에서 V₂O₅의 mole% 증가와 소결온도의 증가에 따라 상대밀도 95%의 소결특성을 확인하였다. 유전율 특성은 V₂O₅ mole ratio가 2~4%의 시편에서 모두 ε_r 21 이상으로 증가됨을 확인하였고, 품질계수는 900°C에서 소결한 V₂O₅ 2 mole% 시편에서 Q×f=40,000을 나타내었다. 온도계수는 900°C 소결하고 V₂O₅ 1 mole% 첨가한 경우 0에 제일 가까운 T_{cf}=-54 ppm/°C를 나타내었고, 다른 보편에서는 T_{cf}=-60~-80 ppm/°C의 값을 나타내었다.

Abstract

The microwave dielectric properties of Zn₃Nb₂O₈ with V₂O₅ addition were investigated. The addition of V₂O₅ enhanced the sinterability of Zn₃Nb₂O₈, which resulted in high density of Zn₃Nb₂O₈ ceramic greater than 95% of the theoretical value when sintered at 900°C for 4 hours. X-ray diffraction analysis of sintered Zn₃Nb₂O₈ ceramic showed no second phase with V₂O₅ addition. Dielectric permittivity (ε_r) and quality factor (Q×f) varied with both density at different sintering temperature and V₂O₅ addition. Dielectric permittivity, quality factor and temperature coefficient (T_{cf}) of the two mole of V₂O₅ added Zn₃Nb₂O₈ that was sintered at 900°C were 21.4, 40,000, -54 ppm/°C, respectively.

1. 서 론

정보통신 기술의 발달과 함께 단위시간당 대량의 정보전달을 필요로 하는 동화상전송 및 멀티미디어의 정보 전달을 위해 주파수 대역을 마이크로파 대역(300 MHz~300 GHz)으로 확대시킨 이동통신 및 위성통신의 서비스를 위한 연구가 활발히 진행되고 있다. 이러한 기술을 응용한 단말기의 수요 또한 세계적으로 급증하고 있고, 여기에 사용되는 마이크로파 대역 유전체 세라믹스 부품은

고기능, 경량, 저가격 및 고신뢰성 등이 요구된다. 기판의 배선밀도를 높이기 위하여 개별부품의 크기 축소와 수동부품의 모듈화를 동시에 실현할 수 있는 저온동시소성(Low Temperature Co-fired Ceramic; LTCC)기술에 관심이 집중되고 있다.¹⁾

현재까지의 LTCC는 대부분 전기적 길이를 고려치 않는 단순한 고밀도 배선기판에 불과하였으나 마이크로파 대역의 응용을 위한 LTCC는 2차원 평면상에 제작되어온 소자를 다층의 세라믹층을 적층하여 3차원으로서 제작함으로써 부품의

소형화와 다기능화를 이루었다. LTCC기술은 기존의 컴퓨터 CPU나 SAW필터용 세라믹 패키지에 사용되던 HTCC(High Temperature Co-fired Ceramic, 고온동시소성세라믹)와 유사하지만 저융점, 고전도 재료인 Ag, Cu 등을 내부 배선회로로 사용하기 위해 900°C 이하의 온도에서 실현되며, 저온에서 소성이 가능한 기술이라는 큰 차이점을 가지고 있다. 이 차이는 전기전도도가 가장 우수한 Ag나 Cu전극을 사용함으로써 고주파 대역에서 큰 손실 없이 부품을 만들 수 있다. 또한 LTCC 기술은 저항체 내장이 가능하여 저항(R), 인덕터(L), 캐패시터(C) 등의 수동소자 및 신호전달 배선을 기판내부에 형성하는 것이 가능하며, Si와 비슷한 열팽창 계수를 가짐으로서 Si 집적소자와의 통합이 용이하다는 장점을 가지고 있어 우수한 이동통신용 부품을 제작할 수 있는 기술로 여겨지고 있다.^{2,3)}

현재까지 마이크로파 유전체가 사용되어지는 용도인 유전체 필터나 공진기용 세라믹스의 조성은 BaO-Ln₂O₃-TiO₂(Ln=La, Sm, Nd)계,^{4,9)} (Zr,Sn)TiO₄계,¹⁰⁾ BaO-TiO₂계,¹¹⁻¹³⁾ complex perovskite계, (Mg,Ca)TiO₃계¹⁴⁾ 등이 있으나 이들은 소성온도가 1300°C 이상을 요구하여 Ag, Cu 등의 저온 고전도체 전극의 삽입이 어렵다는 단점을 가지고 있다.

이와 같이 높은 소성온도는 낮추려는 노력으로 기존 저손실 고유전율 특성의 유전체 재료에 저융점 유리를 첨가한 후 소결하는 방법은¹⁵⁻¹⁷⁾ 세라믹재료의 마이크로파 유전특성을 급격히 저하시키는 문제점을 안고 있다. 이러한 약점들을 극복하고자 본고에서는 저온동시소성 세라믹 제조법의 또 다른 대안으로 떠오르고, 저온동시소성에서의 고밀도의 유도가 가능하게 하는 액상소결 첨가제를 가하는 방법을 이용하여 Zn₃Nb₂O₈의 유전체를 제작하여 미세구조의 변화와 전기적 특성을 실험하고자 한다.

LTCC의 적용을 위해서 Tsai,¹⁸⁾ 등은 ZnO에 V₂O₅를 0.25~2 mole% 첨가하여 비선형의 전류 전압특성을 가지는 바리스터를 제작하여 입자성장에 따른 영향을 조사하였는데, 입자성장의 기구는 ZnO-V₂O₅간에 발생하는 공정화합물이며, V₂O₅는 ZnO 입자의 비정상적인 성장을 촉진시키고 밀도의 향상에 영향을 미치지만 주성분을 용해시키지

는 않는다고 하였다. 또한 ZnO에 1 mole%의 V₂O₅를 첨가하면 890°C에서 생성되는 ZnO-V₂O₅의 공정반응물인 Zn₃(VO₄)₂가 900°C 이상의 시편에서 액상으로 존재하여 치밀화가 유도된다.

마이크로파 유전체 세라믹스의 한 종류인 zinc niobate의 소결향상을 위해 첨가된 액상소결제는 CuO와 V₂O₅를 이용한 보고가 있는데, 그중 Kim¹⁹⁾ 등이 ZnNb₂O₆를 이용하여 액상소결제인 CuO를 첨가하여 1150~900°C로 소결하여 $Q \times F=59,500$, $\epsilon_r=22.1$, $\tau_f=-66$ ppm/°C를 보고하였는데 온도계수(τ_f)가 음의 값을 가지는 이유는 액상소결제로 첨가된 CuO가 (ZnCu₂)Nb₂O₈의 2차상을 만들었기 때문이라고 보고하였고, Lee²⁰⁾ 등은 Zn₃Nb₂O₈을 이용하여 액상소결제인 V₂O₅를 추가하여 소결온도 900°C, 1000°C, 1100°C의 구간에서 실험하여 유전특성 $Q \times F=67,500$, $\epsilon_r=22.4$ 의 결과를 보고하였으나 유전체의 특성 중 τ_f 를 제외하였다. 따라서 본 논문에서는 Zn₃Nb₂O₈를 ZnO와 Nb₂O₅를 이용하여 고상반응합성 후 액상소결제인 V₂O₅를 0.5, 1, 2, 3, 4, 5 mole%로 첨가하여 실용 LTCC 소결구간인 900°C를 비롯하여 950°C, 1000°C에서 소결하였으며, 전기적 특성인 주파수의 온도계수(τ_f)를 포함한 유전율(ϵ_r), 품질계수($Q \times F$)의 측정과 함께 미세구조의 변화를 평가하고, 응용의 가능성을 고찰하였다.

2. 실험방법

2-1. Zn₃Nb₂O₈의 제조

원료분말은 99.9% 이상의 ZnO와 Nb₂O₅를 사용하였으며 몰비는 3대1의 비율로 하여 alumina ball, ethyl alchole, polypropylene bottle을 이용하여 6시간 동안 교반 및 건조하였으며, 하소조건은 1100°C, 2h의 조건으로 알루미늄 도가니를 이용하여 대기중에서 하소하였다. 합성된 Zn₃Nb₂O₈를 마노 유발을 이용하여 조분쇄 후 alumina ball, ethyl alchole, polypropylene bottle을 이용하여 5시간 동안 milling 하였고, 120°C에서 건조 하였다.

V₂O₅는 99.9% 이상의 분말을 마노 유발을 이용하여 분쇄 후 합성된 Zn₃Nb₂O₈ 분말에 첨가하였고 첨가되는 양은 0, 0.5, 1, 2, 3, 4, 5%의 몰비율로 첨

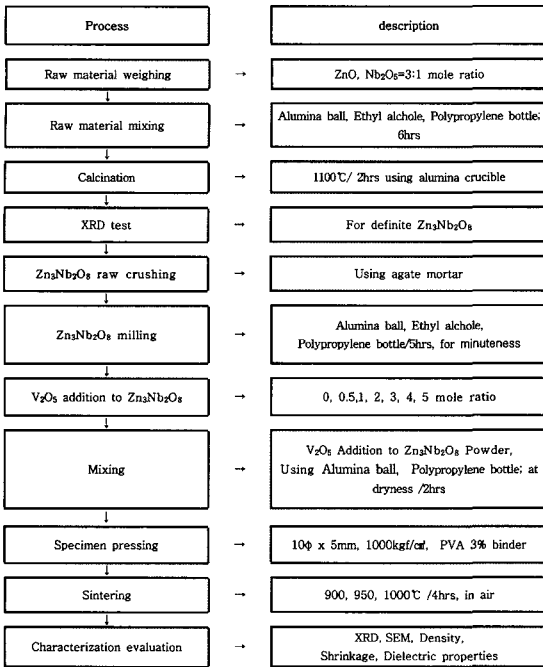


Fig. 1. Schematic diagram of sample preparation and analysis.

가하였다. Zn₃Nb₂O₈와 V₂O₅분말의 혼합은 alumina ball, polypropylene bottle을 이용하여 2시간 동안 전식 혼합하였다.

Zn₃Nb₂O₈와 V₂O₅의 혼합분말을 3 wt%의 PVA와 혼합하여 직경 10 mm 높이 5 mm의 몰드를 이용하여 1000 kgf/cm²의 압력으로 성형하였다. 성형된 시편은 900, 950, 1000°C로 대기 중에서 4시간 동안 소결하였다. 실험의 개략도를 Fig. 1에 나타내었다.

2-2. 물성측정

시편의 상분석을 위해서 소결된 시편을 원형을 유지한 상태로 X-선 회절분석기(Rigaku)를 회절 각 2θ=20~80°, 스캔 속도=5°/min, step=0.02°의 조건으로 측정하였다. 이 때 X-선 발생원의 전압은 30 kV, 전류는 30 mA로 하였다.

소결특성의 측정은 마이크로미터를 이용하여 원기둥 형태 시편의 직경을 측정하여 수축률을 조사하였고, 이후 시편의 밀도는 water immersion technique(ASTM STD(373-72))으로 측정하였다.

시편을 증류수에서 3시간 동안 중탕 후 저울을

이용하여 소수점 이하 3자리에서 측정하였으며 (1)의 식으로 밀도를 계산하였다.

$$D_{app} = \frac{W_{dry}}{W_{sat} - W_{wet}} \times \rho_{water} \tag{1}$$

여기서 W_{dry} 는 건조무게, W_{sat} 는 함수무게, W_{wet} 는 수중무게, ρ_{water} 는 측정시 매질로 사용한 물의 온도에 따른 밀도(온도보정계수)이다.

마이크로파 유전율 측정을 위하여 소결된 시편의 표면을 SIC연마지(#800~#2000)를 이용하여 순차적으로 연마하여 직경과 두께의 비를 1:0.45~0.5)의 비율이 되도록 연마하였다.

소결체의 마이크로파 유전율 ϵ_r 은 Hakki-Colemann에 의해 제시된 평형 도체판법(post resonator method)으로 network analyser(E8346A; Agilent Technology)를 이용하였다. Fig. 2는 평형도체판법에 사용되는 장치의 개략도이다.

최종 유전율 산출식은 다음과 같은 과정을 거쳐 유도되었다. 먼저 유전율 ϵ_r , 직경이 a 이고 높이가 h 인 저손실의 원통형 유전체를 두개의 평면도체 사이에 놓고 전자파를 유기시킬 때 공진을 일으키는 전계 E 와 자계 H 의 성분은 Maxwell 방정식으로부터 도출할 수 있다. 각 영역에서의 전자기장을 경계조건에 대입하여 특성 방정식을 유도하면 (2)와 같은 방정식을 도출할 수 있다.

$$\lambda_o = \frac{C}{f_o}, \lambda_g = \frac{2h}{l}, l=1, 2, \dots \tag{2}$$

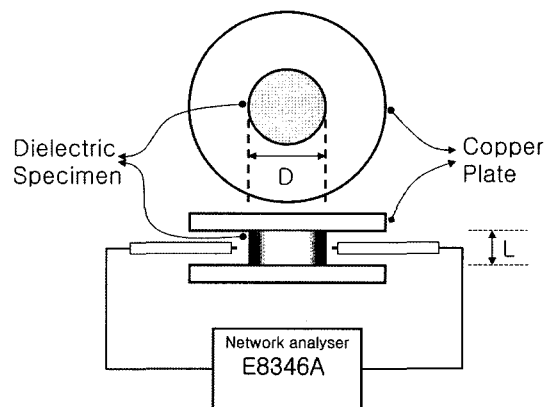


Fig. 2. Schematic diagram of post resonate method.

$$v^2 = \left[\frac{\pi d}{\lambda_o} \right]^2 \left[\left(\frac{\lambda_o}{\lambda_g} \right)^2 - 1 \right] \quad (3)$$

λ_o =Free Space Resonate Wavelength

λ_g =Guiding Wavelength

C=광속, d=직경, h=높이

(2)와 (3)의 식에서 구한 v 값을 아래의 TE mode 공진의 특성 방정식에 대하여 관계식을 만족하는 u 값을 구한다. 이때 u 값을 구하기 위하여 고정된 v 값을 넣고 식 (4)와 같이 프로그램을 이용한 iteration으로 계산이 가능하다.

$$u = \frac{J_0(u)}{J_1(u)} = -v \frac{K_0(v)}{K_1(v)} \quad (4)$$

$J_n(u)$ =1차 Bessel 함수

$K_n(v)$ =2차 Modified Bessel 함수

위의 식(4)의 특성방정식에서 구한 u, v 값과 측정된 공진주파수를 아래의 식(5)에 대입하여 계산하면 유전율 값을 평가할 수 있다. 즉, 마이크로파 유전율 평가를 평행판 공진기를 이용한 공진주파수를 측정하고 이를 해석함으로써 유전율을 구할 수 있다.

$$e' = \left[\frac{\lambda_o}{\pi d} \right]^2 (u^2 - v^2) \quad (5)$$

품질계수의 측정에서는 시편은 표면의 거칠기

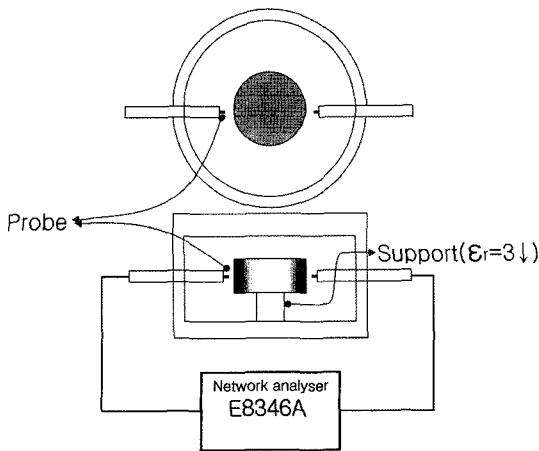


Fig. 3. Schematic diagram of open cavity method.

가 품질계수에 영향을 미치므로 SiC 연마지 #2000까지 순차적으로 연마 한 후 측정하였으며, 측정은 온도금된 cavity를 사용하여 캐비티 공진법 (Open Cavity Resonator Method)으로 측정하였으며, 장치도를 Fig. 3에 나타내었다. 무부하 품질계수(Q_u)의 값의 계산은 식 (6), (7)을 이용하였다. 측정장비는 Network Analyser E8346A를 사용하였다.

$$Q_u = \frac{Q_m}{1 - 10^{IL/20}} \quad (6)$$

$$Q_m = \frac{f_o}{\Delta f_1} \quad (7)$$

Q_m=Measured quality factor

Q_u=Unloaded quality factor

IL=Insertion Loss

f_o=공진주파수, Δf₁=3 db Bandwidth

공진주파수 온도계수는 (Temperature Coefficient of resonance Frequency: τ_{cf})는 마이크로파 소재의 온도계수를 나타내는 지수로써 유전체 소재를 사용한 공진기의 온도 의존성을 평가함으로써 측정 가능하다. 유전체 공진기는 여러 가지 공진모드를 나타내는데, 이중 TE₀₁₁ 공진모드를 선정하여 온도변화에 따른 공진 주파수의 이동정도를 측정하여 환산함으로써 측정가능하며, 환산식은 식(8)과 같다.

$$TCF = \frac{f_T - f_{ref}}{f_{ref}(T - T_{ref})} \times 10^6 (\text{ppm}/^\circ\text{C}) \quad (8)$$

여기서 f_T는 온도 T에서의 공진주파수, f_{ref}는 Reference 온도 T_{ref}에서의 공진주파수, T는 온도변화구간의 처음온도, T_{ref}는 온도변화구간의 마지막 온도이다.

온도계수 평가는 평행판 공진기를 이용하여 측정하는 방법과 유전체 공동공진기를 이용하여 측정하는 방법이 있으나, 본 실험에서는 유전체 공동공진기를 이용하여 온도계수를 측정하였다. 이때 유전체 공동공진기의 재질은 열팽창계수가 작은 재질인 invar 재질을 사용하였으며 내부는 온도금된 공진기를 사용하였다.

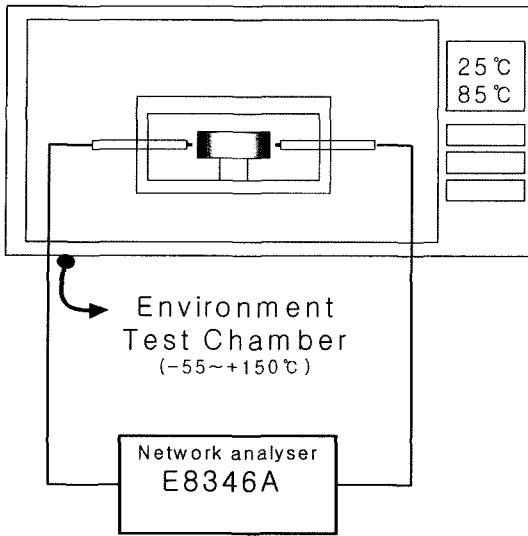


Fig. 4. Construction of Tcf equipment.

Fig. 4와 같은 $-55\sim+150^{\circ}\text{C}$ 까지 온도시험이 가능한 환경시험장비에 유전체공동공진기를 넣고 TE_{011} 공진모드의 온도계수를 측정하기 위해 Network Analyser E8346A를 $25\sim 85^{\circ}\text{C}$ 의 온도구간에서 공진주파수를 측정한 후 식(8)에 의하여 계산하였다.

2-3. 미세구조 관찰

소결된 시편의 미세구조는 전자주사현미경(JEOL)을 이용하여 관찰 하였으며 SiC 연마지를 이용하여 최종적으로 #2000 까지 순차적으로 연마 후 alumina paste($0.3, 0.05\ \mu\text{m}$)로 경면연마 한 후 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

ZnO 와 Nb_2O_5 를 이용하여 1000°C 4 hr에서 하소 한 후 $\text{Zn}_3\text{Nb}_2\text{O}_8$ 분말의 XRD 피크를 확인한 결과 $\text{Zn}_3\text{Nb}_2\text{O}_8$ 의 합성이 완전히 진행됨을 알 수 있었다(Fig. 5). Fig. 6은 하소된 $\text{Zn}_3\text{Nb}_2\text{O}_8$ 분말의 SEM 사진인데 입자의 크기는 $2\sim 3\ \mu\text{m}$ 이었다. 소결온도 $900, 950, 1000^{\circ}\text{C}$ 에서 V_2O_5 의 조성비 0.5, 1, 2, 3, 4, 5의 mole%로 하여 소결한 $\text{Zn}_3\text{Nb}_2\text{O}_8$ 의 XRD 패턴은 $\text{Zn}_3\text{Nb}_2\text{O}_8$ 상 이외에 다른 상을 보이지 않는다.

V_2O_5 를 첨가하지 않은 $\text{Zn}_3\text{Nb}_2\text{O}_8$ 소결체의 SEM 미세구조를 보면 소결이 전혀 일어나지 않았다.

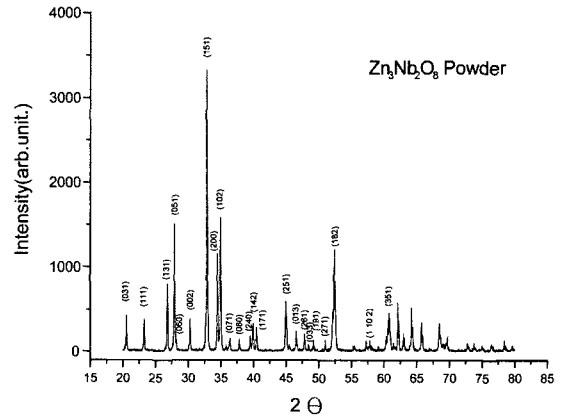


Fig. 5. X-Ray diffraction pattern of calcined $\text{Zn}_3\text{Nb}_2\text{O}_8$ powder.

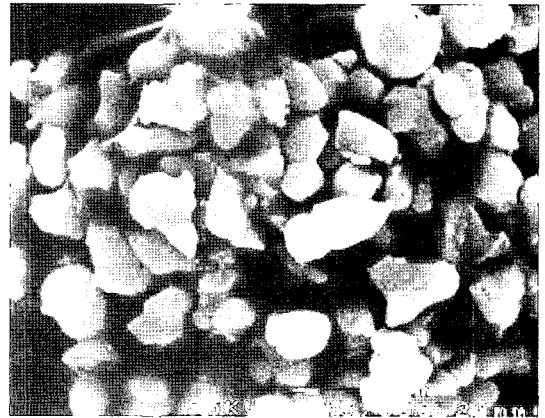


Fig. 6. $\text{Zn}_3\text{Nb}_2\text{O}_8$ powder calcined at 1100°C for 2 h.

V_2O_5 첨가량에 관계없이 소결온도의 증가와 함께 치밀해지고 있다. Fig. 7은 V_2O_5 의 첨가량에 따라 1000°C 에서 소결한 시편의 미세구조 변화를 보여주는데, V_2O_5 의 첨가량이 증가함에 따라 소결이 일어나면서 미세구조의 치밀함이 증가된 것을 보이고 있다. 이는 $\text{ZnO-V}_2\text{O}_5$ 로 형성된 $\text{Zn}_3(\text{VO}_4)_2$ 공정 계면의 생성으로 인하여 구조의 치밀화를 유도한 것으로 보인다. V_2O_5 의 첨가량과 소결온도의 영향에 따라 증가된 밀도의 변화는, 수축율, 유전율, 품질계수의 결과를 변화시키는 원인을 발생시킨다.

소결된 시편의 온도와 V_2O_5 의 첨가량에 따른 수축 및 밀도의 변화를 측정하였다. V_2O_5 의 첨가량과 소결온도가 높아짐에 따라 수축율의 증가를 보이다가 V_2O_5 의 첨가량이 3 mole%에서부터 전

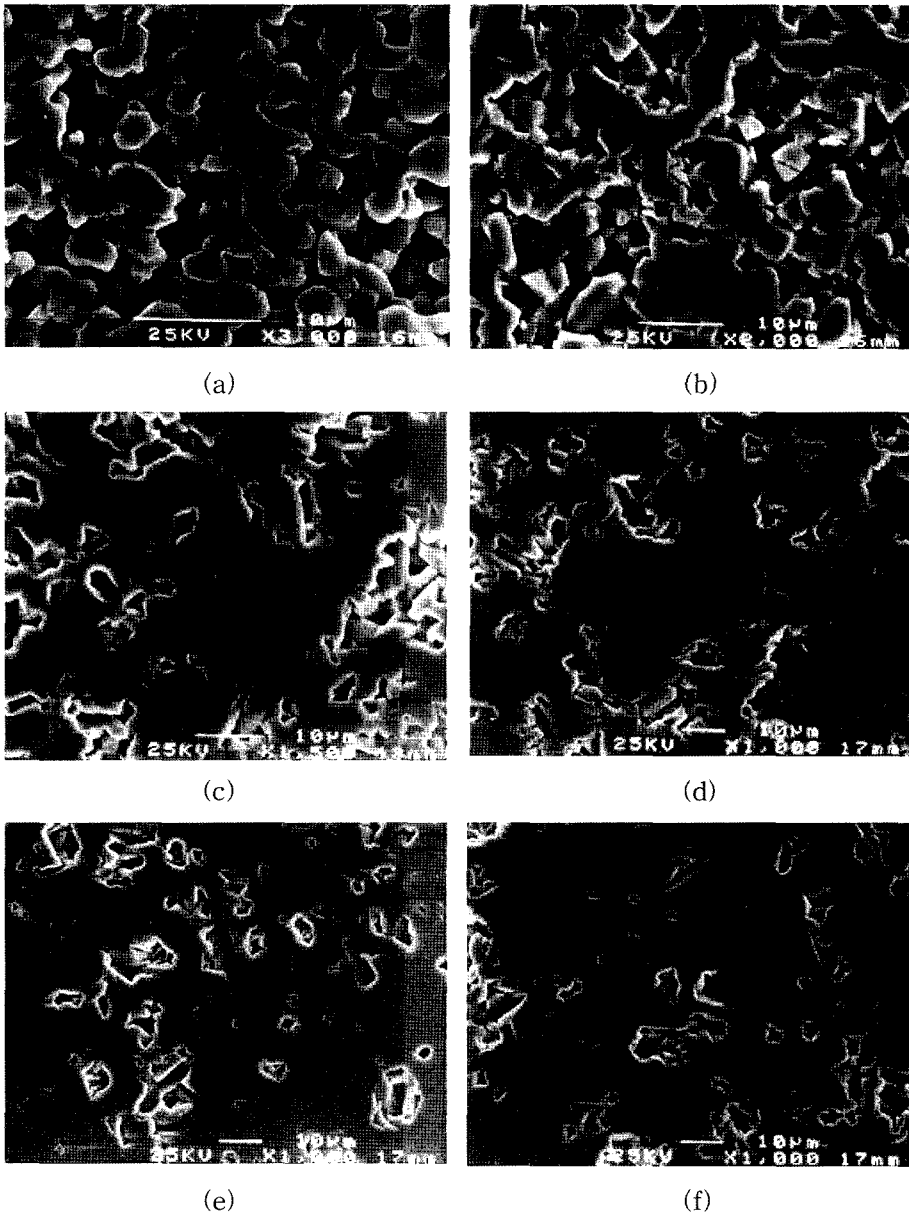


Fig. 7. SEM microstructure of Zn₃Nb₂O₈ dielectric specimen sintered at 1000°C for 4 hrs with the addition of V₂O₅, a) 0.5 mol%, b) 1.0 mol%, c) 2.0 mol%, d) 3.0 mol%, e) 4.0 mol%, and f) 6.0 mol%.

체적으로 수축율이 낮아지는 경향을 보이고 있다. 벌크 밀도 역시 마찬가지로 V₂O₅의 첨가량 0 mole%부터 시작하여 V₂O₅의 첨가량이 증가할수록 증가하다가 3 mole% 이상에서부터 전체적으로 밀도가 낮아지는 경향을 보이고 있다. 각 소결 온도에서의 상대밀도를 Fig. 8에 나타내었다.

평행판 공진기와 network analyser를 이용하여 주파수범위를 광대역으로 측정할 때, 가장 먼저 나타나는 공진주파수 Peak는 HEM₁₁₁로 나타나며, 그 다음피크가 측정하고자하는 TE₀₁₁ 공진모드 Peak가 나타난다. V₂O₅의 첨가량과 소결온도가 높아짐에 따라 유전율의 증가를 보이는데, 1000°C

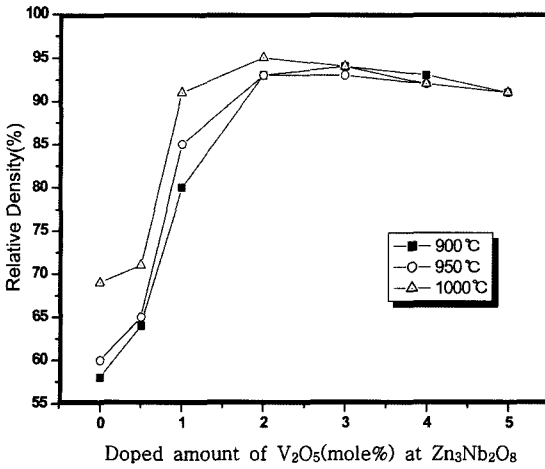


Fig. 8. Relative density at different sintering temperature and various doped amount of V₂O₅ mole ratio.

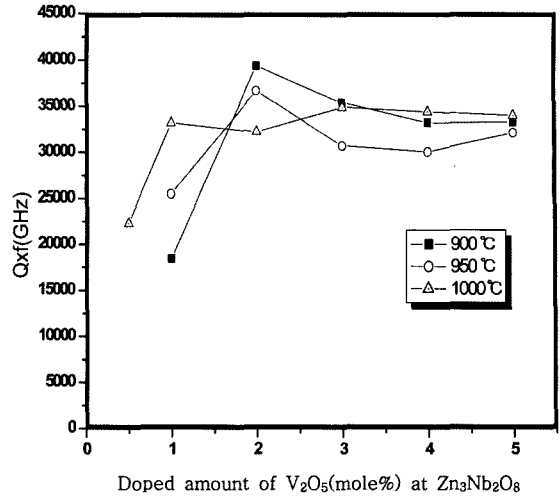


Fig. 10. Quality-Factor at different sintering temperature and various doped amount of V₂O₅ mole ratio.

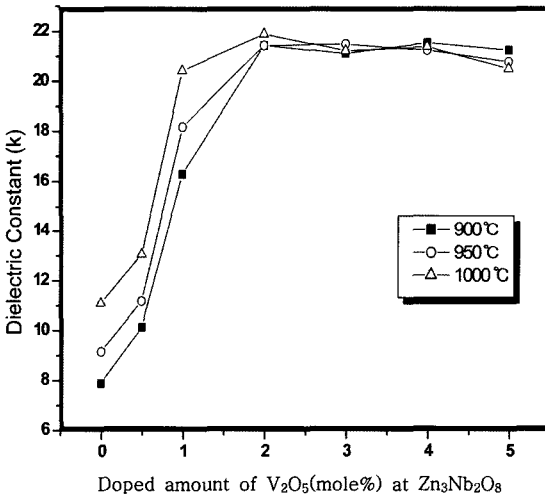


Fig. 9. Dielectric constant at different sintering temperature and various doped amount of V₂O₅ mole ratio.

소결군에서 V₂O₅ mole ratio가 2%에서 최고의 ε_r 값인 21.9를 나타내었고, 900°C 소결군에서는 V₂O₅ mole ratio가 2%인 시편에서 ε_r 21.4를 나타내었다. 전체적으로 V₂O₅ mole ratio가 2~4%의 시편에서 모두 ε_r 21 이상을 나타내었으며, V₂O₅의 첨가량이 3 mole%에서부터 상대적으로 유전율이 조금 낮아지는 경향을 보이고 있다. 유전율의 소결온도에 대한 변화를 Fig. 9에 나타내었다.

Fig. 10은 품질계수를 나타낸다. 품질계수 측정

에 이용되는 주파수 또한 TE₀₁₁ mode인데 이는 유전율의 측정에 이용되는 평행판공진기에서 나타나는 원편으로부터 HEM₁₁₁ mode, TE₀₁₁ mode의 순서와 다르게 정상적인 시편의 경우 가장 원편에 자리잡는 피크인데, 특징으로는 안정된 피크라는 것이다. 이런 이유로 공동공진기의 내부에 유전체를 넣는 순간부터 제일 원편에 안정적으로 나타나고, 공동공진기의 cover를 닫는 순간까지 그 주파수의 위치가 변하지 않음으로 공동공진기의 TE₀₁₁ mode peak로 판별할 수 있다. 측정된 시편 중 900°C와 950°C의 V₂O₅ mole ratio가 0, 0.5%인 시편 그리고 1000°C의 V₂O₅ mole ratio가 0%인 시편에서는 소결이 불완전하게 진행함에 따라 정상적인 TE₀₁₁ mode의 peak를 나타내지 않았다. 따라서 불완전한 peak를 나타낸 시편의 품질계수는 결과에 포함하지 않았다. 또한 900°C, 950°C 온도 구간의 V₂O₅의 첨가량이 1%인 시편에서 각각 최저의 품질계수를 나타내었는데, 이는 1000°C 시편 V₂O₅ 0.5% 첨가된 시편과 함께 기공의 대량존재로 인해 품질계수의 값이 낮아진 것으로 판단할 수 있다. 소결온도 900°C, V₂O₅ 2 mole%에서 최고의 Q×f값인 40,000을 나타내었고, V₂O₅의 첨가량이 증가함에 따라 그 값이 낮아지는 경향을 보이지만 전반적으로 큰 차이를 보이지는 않았다.

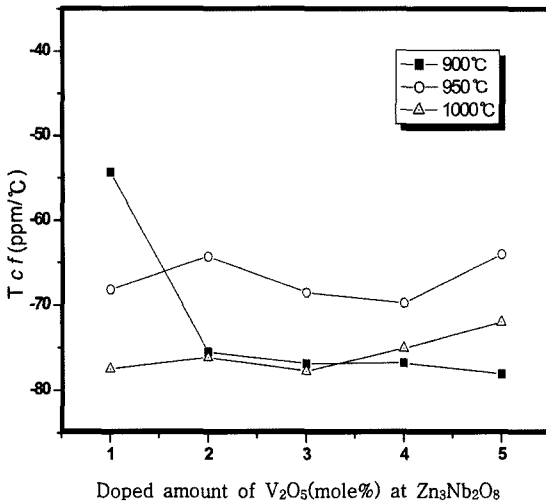


Fig. 11. Temperature coefficient at different sintering temperature and various doped amount of V₂O₅ mole ratio.

이는 감쇄정수(γ)의 증가로 인한 품질계수에 영향을 미치는 기공의 존재와 비교하여 입계 액상의 영향이 작다는 것을 알 수 있다.

온도계수평가를 위해 공동공진기로 관찰한 TE₀₁₁ mode의 peak는 온도가 25°C에서 85°C로 증가 할수록 낮은 주파수로의 이동이 관찰 되었는데, 품질계수평가에서 TE₀₁₁ mode를 관찰할 수 있는 V₂O₅ mole ratio가 가장 작은 시편인 1000°C, V₂O₅ 0.5 mole%의 시편에서조차 85°C에서 TE₀₁₁ mode의 peak의 관찰이 불가능 했는데, 이는 peak가 왼편으로의 이동과 함께 강도의 약화로 인해 사라졌기 때문이다. 따라서 소결온도의 세 가지 조건 중 V₂O₅의 첨가량이 0, 0.5 mole%인 시편의 온도계수는 결과에서 제외하였다. Fig. 11은 V₂O₅의 첨가량과 각각의 온도조건에서 소결한 시편의 온도계수의 변화를 나타낸 것이며, 900°C에서 소결한 시편 중 V₂O₅의 첨가량이 1 mole%에서 가장 0에 가까운 T_{cf} 값인 -54 ppm/°C를 나타내었고, 나머지 시편들은 T_{cf} 값이 -60~-80 ppm/°C인 음의 값을 나타내었다.

4. 결 론

본 연구에서는 Zn₃Nb₂O₈세라믹스에 액상소결제

인 V₂O₅를 첨가하여 소결하였고, 그에 따른 고주파 대역에서의 유전특성의 변화를 조사하였다. 선수축율, 밀도, X-선 회절과 SEM을 이용한 미세구조의 변화를 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

(1) 1100°C에서 2시간 하소한 결과 Zn₃Nb₂O₈를 합성할 수 있었다.

(2) V₂O₅를 첨가하여 소결한 Zn₃Nb₂O₈에서 ZnO-V₂O₅계 액상의 형성으로 인하여, V₂O₅의 mole% 증가와 소결온도의 증가에 따라 상대밀도 95%의 소결특성을 확인 하였다.

(3) 유전율특성의 시험결과 Zn₃Nb₂O₈ 밀도의 변화로 인하여 V₂O₅ mole ratio가 2~4%의 시편에서 모두 ϵ_r 이 21 이상으로 증가됨을 확인하였고, 품질계수는 900°C · V₂O₅ 2 mole ratio에서 $Q \times f = 40,000$ 을 나타내었으며, 온도계수는 900°C · V₂O₅ 1 mole ratio에서 0에 제일 가까운 T_{cf} = -54 ppm/°C를 나타내었고 그 이하의 시료에서는 T_{cf} = -60~-80 ppm/°C의 값을 나타내었다.

참고문헌

- 1) Rao R. Tummala, *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**(5), 895 (1991).
- 2) 이효종, "LTCC용 소재", www.icm.re.kr/trends/pinoceramics/
- 3) 홍국선, *Ceramist*, **3**(2), (2000).
- 4) Ohsato, H., Nishigaki, S. and Okuda, T., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**(9B), 3136 (1992).
- 5) Takahashi, J., Ikegami, T. and Kakeyama, K., *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**(8), 1873 (1991).
- 6) Kolar, D., Gaberscek, S., Volavsek, B., Parker, H. S. and Roth, R. S., *J. Solid State Chem.*, **38**(2), 158 (1981).
- 7) Jaakola, R., Uusimaki, A., Rautioaho, R. and Leppavuori, S., *J. Am. Ceram. Soc.*, **69**(10), 234 (1986).
- 8) Wersing, W., *Electronic Ceramics*, p. 67, B.C.H. Steele, Elsevier Science Pub. London (1991).
- 9) Gabrscek, S. and Kolar, D., *J. Mater. Sci. Lett.*, **1**, 37 (1982).
- 10) Wakino, K., Minai, K. and Tamura, H., *J. Am. Ceram. Soc.*, **67**(4), 278 (1984).
- 11) Burn, I., *J. Mater. Soc.*, **17**, 1398 (1982).

- 12) Jacola, T., Mottonen, J., A. Unsimaki, Rautioaho and Leppavuori, S., *Ceram. Int.*, **13**, 151 (1987).
- 13) Takahashi, J., Ikegami, T. and Kakeyama, K., *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**(8), 1868 (1991).
- 14) Nagata, E., Tanaka, J., Tsutumi, M. and Bannai, E., *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **56**, 3173 (1983).
- 15) Takada, T., *et al.*, *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**(7), 1909 (1994).
- 16) Takada, T., *et al.*, *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**(9), 2485 (1994).
- 17) Jantunen, H., Rautioaho, R., Uusimaki, A. and Leppavuori, S., *J. Eur. Ceram. Soc.*, **20**, 2331 (2000).
- 18) Tsai, J. K. and Wu, T. B., *Materials Letters*, **26**, 199 (1996).
- 19) Kim, D. W., Ko, K. H. and Ko, S. K., *J. Am. Ceram. Soc.*, **84**(6), 1286 (2001).
- 20) Lee, Y. C., Lin, C. H. and Lin, I. N., *Material Chemistry and Physics*, **79**(2-3) 124, (2003).