

Zinc-borosilicate Glass Frit 첨가에 따른 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3\text{-CaTiO}_3$ 세라믹스의 마이크로파 유전 특성

Microwave Dielectric Properties of $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3\text{-CaTiO}_3$ Ceramics added with Zinc-borosilicate Glass Frit

윤상옥^{1,a}, 김관수¹, 조태현¹, 심상홍², 박종국²

(Sang-Ok Yoon^{1,a}, Kwan-Soo Kim¹, Tae-Hyun Jo¹, Sang-Heung Shim², and Jong-Guk Park²)

Abstract

$x\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3\text{-(1-x)}\text{CaTiO}_3$ ceramics were sintered under the presence of zinc-borosilicate(ZBS) glass and resultant microwave dielectric properties were investigated with a view to applying the composition to low-temperature co-fired ceramic(LTCC) technology. The addition of 5~15 wt% ZBS glass ensured successful sintering below 900 °C. In general, increased addition of ZBS glass increased sinterability but it decreased the quality factor($Q \times f_0$) significantly due to the formation of an excessive liquid and second phases. As for the addition of CaTiO_3 , the dielectric constant(ϵ_r) and temperature coefficient of resonant frequency(τ_f) increased, while the quality factor($Q \times f_0$) did not show an apparent change. The sintered $0.9\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3\text{-}0.1\text{CaTiO}_3$ specimen at 900 °C with 10 wt% ZBS glass demonstrated 39.6 in dielectric constant(ϵ_r), 4,400 in quality factor($Q \times f_0$), and -11 ppm/°C in temperature coefficient of resonant frequency(τ_f).

Key Words : LTCC, $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$, CaTiO_3 , Zinc-borosilicate, Dielectric constant

1. 서 론

최근 정보화 사회의 급속한 발전에 따라 시스템이 소형화, 경량화되고 있으며, 여기에 사용되는 수동부품들 또한 개발, 발전되고 있다. 사용 주파수 대역이 마이크로파 대역으로 옮겨가면서 고유전율, 저손실의 고효율성 유전체 재료들이 개발되었는데, 이것은 유전체 재료의 유전율을 높일수록 소자의 크기($\propto 1/\sqrt{\epsilon}$)를 감소시킬 수 있기 때문이다. 더욱이 최근 개발되고 있는 휴대용 통신기기 등에 사용되는 마이크로파용 유전체는 내부도체 금속 저항에 의한 손실을 최소화하고 마이크로파

특성을 최적화하기 위해 비저항이 낮은 Ag 또는 Cu 등으로 대체하고 있다. 그러나 Ag와 Cu는 용융점이 낮은 금속이므로 이들 금속 도체들과 LTCC(low temperature co-fired ceramic) 기술을 이용하여 유전체 재료를 동시소성하기 위해서는 유전체 재료 또한 1,000 °C 이하의 저온에서 소성이 가능해야 한다[1-5]. 저온소결용 마이크로파 유전체를 만드는 방법으로는 낮은 용점을 가지는 산화물과 세라믹스를 혼합하여 액상소결 시키는 방법과 glass frit을 매트릭스로 하고 세라믹스를 충전제로 하여 혼합하여 복합체를 제조하는 방법, glass-ceramic 공정을 이용하여 열처리시 결정화하는 유리로부터 원하는 결정상을 석출시키는 방법이 있다[6,7].

본 연구는 저온소결용 마이크로파 유전체를 제조하기 위해 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ 세라믹스에 zinc-borosilicate(ZBS) 결정화 유리를 첨가하여 LTCC용 마이크로파 유전체로의 응용 가능성에 대해 검

1. 강릉대학교 세라믹공학과
(강원도 강릉시 지변동 120)
2. 강원대학교 삼척캠퍼스 전기공학과
a. Corresponding Author : soyoon@kangnung.ac.kr
접수일자 : 2006. 4. 5
1차 심사 : 2006. 4. 26
심사완료 : 2006. 5. 4

토하였다. 또한 마이크로파 유전체에서 유전 특성에서 중요한 유전을 향상 및 온도계수 보정을 위해 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ 세라믹스에 CaTiO_3 세라믹스를 정량적으로 합성한 후, 모물질에 ZBS glass를 첨가하여 저온소결에 따른 소결 및 마이크로파 유전 특성을 조사하였다.

2. 실험

2.1 실험방법

본 연구에서는 일반적인 고상법인 산화물 혼합법(mixed oxide method)을 이용하여 CaCO_3 (우베, 99.9%), Li_2CO_3 (일본고순도화학, 99.99%), Nb_2O_5 (일본고순도화학, 99.9%), CaTiO_3 (일본고순도화학, 99.9%)를 사용하여 정량적으로 칭량한 후 24 시간 동안 ball milling하여 혼합한 후, 750 °C 에서 2 시간 하소하여 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ 세라믹스를 합성하였다. Glass frit은 결정화 특성을 갖고 있는 zinc-borosilicate glass를 사용하였다. Glass 재료로 ZnO (삼보, 99.9%), B_2O_3 (일본고순도화학, 99.9%), SiO_2 (Junsei, 99%)를 사용하여 정량적으로 칭량한 후 폴리에틸렌 용기에서 건식 혼합을 실시하였다. 혼합된 분말을 알루미늄 도가니에 넣어 각각 1300 °C 에서 1 시간 동안 유지, 용융시킨 후, 증류수에 급냉 시켜 glass frit을 제조하였다. 저온소결용 유전체를 제조하기 위해 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ 세라믹스에 glass frit을 5~15 wt% 까지 정량적으로 첨가한 후, 24 시간 동안 ball milling으로 혼합한 후 건조하여 분말을 합성하였다. 성형은 직경이 15 mm 원통형 mould를 사용하여 1000 kg/cm²의 압력으로 pellet 형태로 성형하여 각각 800~950 °C 에서 2 시간 동안 10 °C/min 승온속도로 공기 중에서 소결한 후 로냉을 하였다.

2.2 소결 및 유전 특성 분석

분말 합성 및 온도에 따른 상변화의 분석은 X-선 회절분석기(MO3XHF, MAC Science, Japan)로 Cu-K α target을 사용하였으며, Ni-filter를 이용하여 10°~80° 범위를 4 deg/min 로 조사하였고, 미세구조는 분석은 FE-SEM(S-4200, Hitachi, Japan)을 이용하였다. Pellet 소성체의 마이크로파 유전특성은 시편을 두 개의 평행 도체판 사이에 유전체를 넣고 Hakki-Colemann법을 사용하여 network analyzer(HP8720ES, Agilent, U.S.A)로 공진 주파수 f_0 , 공진 주파수 양쪽에서 3 dB 떨어진 지점에

서 공진폭 Δf 와 공진주파수에서의 삽입손실을 측정하여 유전을 및 $Q \times f_0$ 를 계산하였다. 공진주파수의 온도계수는 invar cavity를 사용하여 공동 공진기법으로 세라믹스 유전체를 넣은 cavity 공진기를 25 °C 에서의 공진주파수와 85 °C 까지 히터로 가열하였을 때의 공진주파수를 측정하여 온도 특성을 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 ZBS glass가 첨가된 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ 세라믹스의 소결 및 유전 특성

고상반응으로 CaCO_3 , Li_2CO_3 및 Nb_2O_5 를 정량적으로 합성한 후 750 °C 에서 2 시간 동안 하소한 후 합성된 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ 세라믹스에 ZBS glass를 5~15 wt% 로 정량적으로 합성한 후 800~950 °C 에서 2 시간동안 소결한 시편의 소결온도에 따른 선수축률 변화를 그림 1에 나타낸 것이다. ZBS glass가 5 wt% 첨가된 경우 950 °C 에서도 소결이 계속 진행되며, 10 wt% 이상 첨가된 경우 875 °C 에서부터 일정한 선수축률 나타내는 것을 확인할 수 있다. 또한 ZBS glass 함량이 증가함에 따라 액상이 과량 형성되면서 치밀화 온도가 낮아져 소결온도가 낮아지는 특성을 나타내었다.

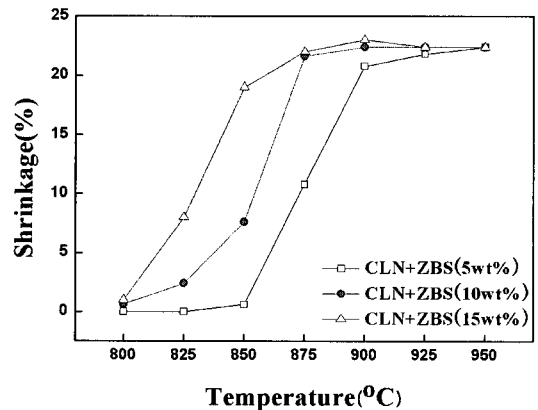


그림 1. $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ 에 x wt% ZBS glass를 첨가한 세라믹스의 소결온도에 따른 수축 특성.

Fig. 1. Shrinkage properties of $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ ceramics with x wt% ZBS glass as a function of sintering temperature.

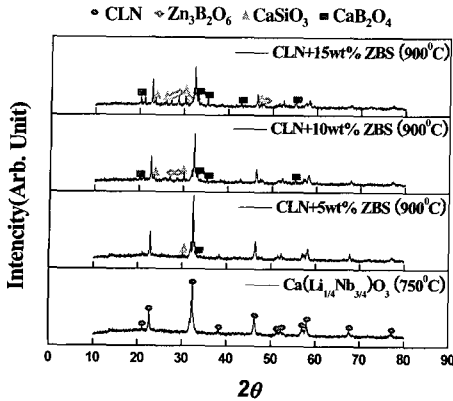


그림 2. ZBS glass 함량에 따라 900 °C에서 소결한 Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스의 XRD.

Fig. 2. XRD patten of Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ ceramics with x wt% ZBS glass sintered at 900 °C.

그림 2는 750 °C 에서 하소한 Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스와 이에 ZBS glass를 5~15 wt% 첨가하여 900 °C 에서 소결한 시편의 XRD 분석을 나타낸 것으로, 750 °C 에서 하소하였을 때 perovskite 결정 구조를 갖는 Ca(Li_{1/3}Nb_{3/4})O₃ peak 외에 다른 2차상이나 출발원료 peak는 발견되지 않았다[8]. Ca(Li_{1/3}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스에 ZBS glass를 정량적으로 첨가한 결과 CaB₂O₄, CaSiO₃, Zn₃B₂O₆ 의 2차상이 관찰되었고, glass의 함량이 증가함에 따라 2차상도 증가하였다.

그림 3은 Ca(Li_{1/3}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스에 ZBS glass를 5~15 wt% 첨가하여 900 °C 에서 소결한 시편의 미세구조 분석을 나타낸 것이다. ZBS glass 함량이 증가함에 따라 결정립과 결정립 사이에 neck을 형성하면서 결정립 성장과 기공이 감소하며 치밀화가 일어나는 것을 확인할 수 있다.

그림 4는 Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스에 ZBS glass를 5~15 wt% 첨가하여 소결온도에 따른 유전을 변화를 나타낸 것이다. ZBS glass가 5 wt% 첨가된 경우 소결온도에 따라 유전율은 지속적으로 증가하였고, 10, 15 wt% 첨가된 경우 각각 900, 875 °C에서부터 일정한 유전을 변화를 나타내었는데, 이는 glass 함량이 증가함에 따라 치밀화 온도가 낮아지기 때문으로 사료되며, 5 wt%일 경우 완전소결이 일어나지 않아 유전율이 지속적으로 증가하는 경향을 보였다.

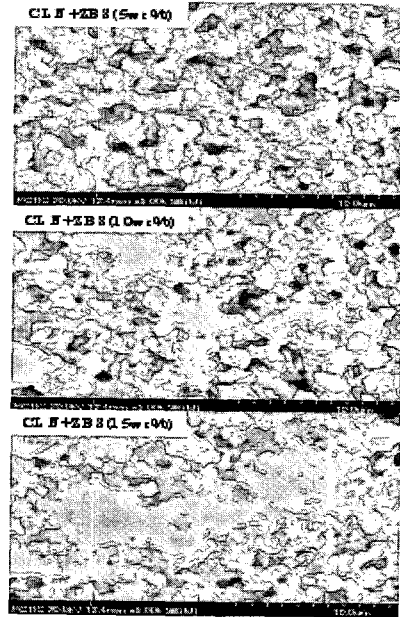


그림 3. Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃에 x wt% ZBS glass를 첨가하여 900 °C 에서 소결한 세라믹스의 주사 전자현미경 미세구조.

Fig. 3. SEM micrographs of Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ ceramics with x wt% ZBS glass sintered at 900 °C.

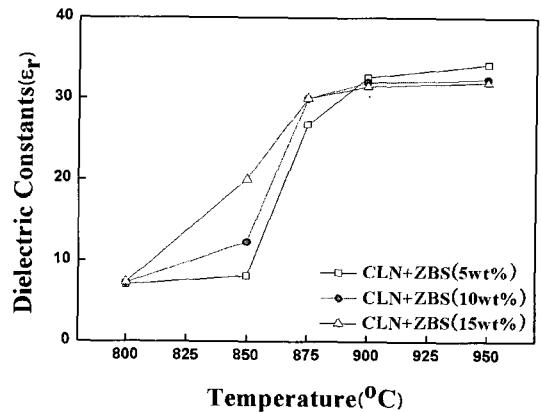


그림 4. Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃에 x wt% ZBS glass를 첨가한 세라믹스의 소결온도에 따른 유전 특성.

Fig. 4. Dielectric properties of Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ ceramics with x wt% ZBS glass as a function of sintering temperature.

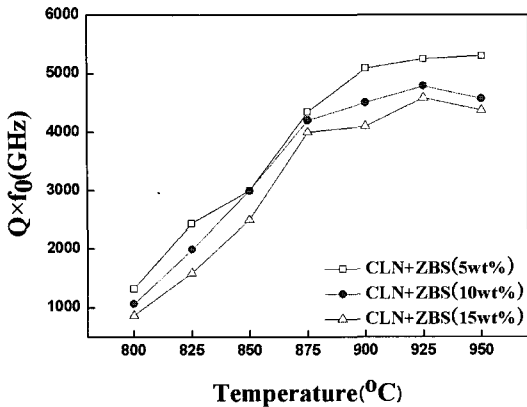


그림 5. Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃에 x wt% ZBS glass를 첨가한 세라믹스의 소결온도에 따른 품질계수.

Fig. 5. $Q \times f_0$ values of Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ ceramics with x wt% ZBS glass as a function of sintering temperature.

그림 5, 6은 Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스에 ZBS glass를 5~15 wt% 로 첨가하여 소결온도에 따른 품질계수와 공진주파수 온도계수 변화를 나타낸 것이다. 앞의 그림 2의 X-선 회절 분석 결과에서 알 수 있듯이 ZBS glass의 함량이 증가함에 따라 CaB₂O₄, CaSiO₃, Zn₃B₂O₆의 2차상이 다량 형성되는 것으로 보아 유전손실이 증가하는 것으로 사료된다. 또한 공진주파수 온도계수(τ_f) 변화를 측정된 결과 -49 ppm/°C 의 Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스와 -10±5 ppm/°C 를 갖는 ZBS glass의 구성상 체적비에 의존한 대수 혼합법칙(logarithmic mixing rule)에 따라 ZBS glass 함량이 증가함에 따라 온도계수가 음(-)에서 양(+)으로 변화하였다[9-11].

Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스를 1275 °C에서 소결하였을 때 $\epsilon_r=26$, $Q \times f_0=13,000$, $\tau_f=-49 \pm 2$ ppm/°C 의 유전 특성을 나타내었는데[12], 이에 ZBS glass 5~15 wt% 로 정량적으로 첨가하여 소결한 결과, 900 °C 에서 저온소결이 가능하였고, 10 wt% ZBS glass를 첨가한 Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스가 $\epsilon_r=32$, $Q \times f_0=4,500$, $\tau_f=-28$ ppm/°C 의 우수한 유전특성 나타내었다. 그러나 ZBS glass를 첨가한 Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스가 낮은 온도계수를 갖기 때문에 단독으로 유전체 공진기로 사용하기 힘들다. 따라서 높은 양의 온도계수를 갖는 CaTiO₃ 세라믹스와 정량적으로 합성할 경우 유전율의 증가와 함께 공진주파수 온도계수를 보정할 수 있어 고유전율을 갖는 LTCC로 응용이 가능할 것으로 사료된다.

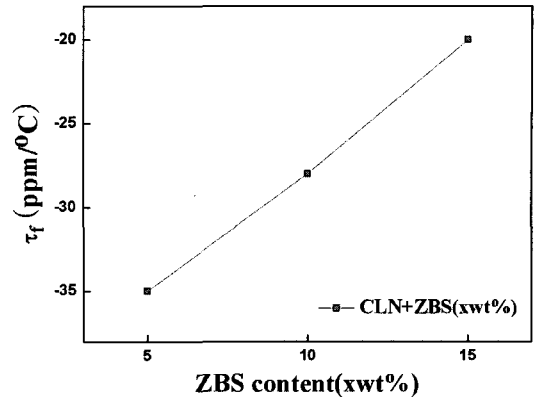


그림 6. Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃에 x wt% ZBS glass를 첨가하여 900 °C에서 소결한 세라믹스의 공진주파수 온도 계수.

Fig. 6. Temp. coefficient of resonant frequency of Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ ceramics with ZBS glass as a function of glass contents sintered at 900 °C.

3.2 ZBS glass가 첨가된 Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃-CaTiO₃ 세라믹스의 소결 및 유전 특성

그림 7은 xCa(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃-(1-x)CaTiO₃ 세라믹스에 ZBS glass를 10 wt% 첨가하여 소결한 시편의 CaTiO₃ 세라믹스 함량과 소결온도에 따른 선수축률 변화를 나타낸 것이다. CaTiO₃ 세라믹스 함량에 상관없이 875 °C 에서 완전 소결이 이루어지는 것을 확인할 수 있으며, 미반응의 CaTiO₃ 세라믹스, 또는 상이 다른 multiphase에 의해 치밀화가 저하되거나 유전율의 감소, 또는 유전손실의 증가가 발생하게 되는데, 그러나 그림 9에서 CaTiO₃의 함량이 증가함에 따라 유전율이 증가하는 특성을 보였으나, 그림 10에서 CaTiO₃의 함량에 따른 유전손실의 변화는 발생하지 않았다.

그림 8은 0.9Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃-0.1CaTiO₃ 세라믹스에 ZBS glass 함량에 따라 900 °C 에서 소결한 시편의 X-선회절 분석한 결과를 나타낸 것으로 Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스에 CaTiO₃ 세라믹스가 완전 고용되는 것을 알 수 있으며, 이는 두 조성이 같은 perovskite 결정 구조를 갖기 때문으로 사료된다. 또한 앞의 그림 2의 Ca(Li_{1/4}Nb_{3/4})O₃ 세라믹스의 X-선 회절 분석 결과처럼 ZBS glass 함량이 증가함에 따라 다량의 2차상이 관찰되었고, 그림 3과 같이 ZBS glass 함량이 증가함에 따라 입자 성장과 액상의 기공채움으로 인한 치밀화가 일어나는 것을 FE-SEM으로 확인할 수 있다.

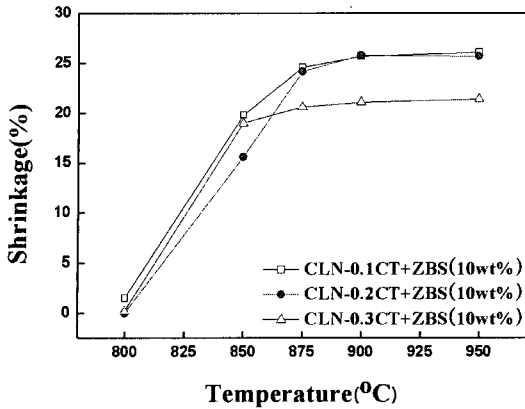


그림 7. $x\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-(1-x)\text{CaTiO}_3$ 에 10 wt% ZBS glass를 첨가한 세라믹스의 소결 온도에 따른 수축 특성.

Fig. 7. Shrinkage properties of $x\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-(1-x)\text{CaTiO}_3$ ceramics with 10 wt% ZBS glass as a function of sintering temp.

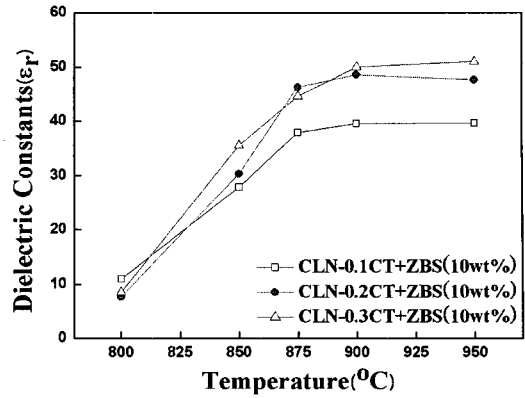


그림 9. $x\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-(1-x)\text{CaTiO}_3$ 에 10 wt% ZBS glass를 첨가한 세라믹스의 소결 온도에 따른 유전 특성.

Fig. 9. Dielectric properties of $x\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-(1-x)\text{CaTiO}_3$ ceramics with 10 wt% ZBS glass as a function of sintering temp.

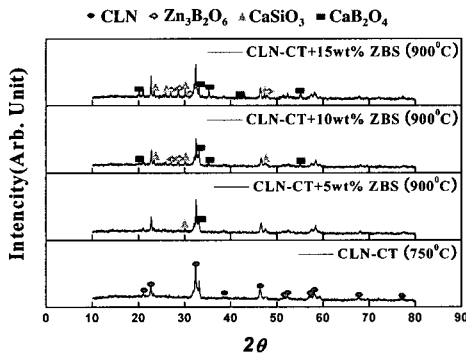


그림 8. $0.9\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-0.1\text{CaTiO}_3$ 에 x wt% ZBS glass를 첨가하여 900 °C 에서 소결한 세라믹스의 X-선 회절 패턴.

Fig. 8. XRD patten of $0.9\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-0.1\text{CaTiO}_3$ ceramics with x wt% ZBS glass sintered at 900 °C.

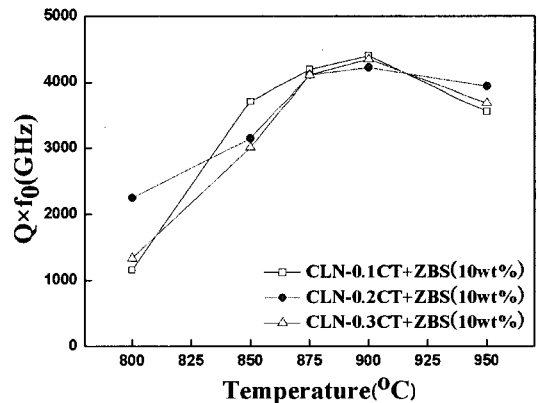


그림 10. $x\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-(1-x)\text{CaTiO}_3$ 에 10 wt% ZBS glass를 첨가한 세라믹스의 소결 온도에 따른 품질계수.

Fig. 10. $Q \times f_0$ values of $x\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-(1-x)\text{CaTiO}_3$ ceramics with 10 wt% ZBS glass as a function of sintering temp.

그림 9는 $x\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-(1-x)\text{CaTiO}_3$ 세라믹스에 ZBS glass를 10 wt% 첨가하여 소결한 시편의 소결온도에 따른 유전을 변화를 나타낸 것이다. 소결온도가 증가함에 따라 선형적으로 증가하다

가 875 °C 에서 일정해지는 특성을 나타내었다. 또한 CaTiO_3 세라믹스 함량이 증가함에 따라 유전율도 증가하였는데, 이는 ZBS glass가 첨가된 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ 세라믹스의 유전율($\epsilon_r=14$)과 CaTiO_3

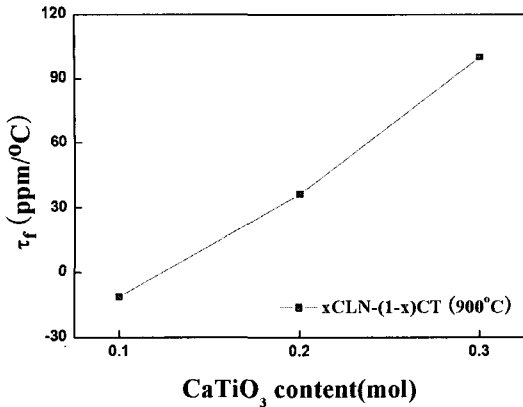


그림 11. $x\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-(1-x)\text{CaTiO}_3$ 에 x wt% ZBS glass를 첨가하여 900 °C에서 소결한 세라믹스의 공진주파수 온도계수.

Fig. 11. Temp. coefficient of resonant frequency of $x\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-(1-x)\text{CaTiO}_3$ ceramics with ZBS glass as a function of glass contents sintered at 900 °C.

세라믹스가 갖는 유전율($\epsilon_r=170$)의 구성상의 체적비에 의존한 대수 혼합법칙(logarithmic mixing rule)의 결과로 사료된다.

그림 10에서 CaTiO_3 세라믹스 함량에 상관없이 4,400 정도의 품질계수 특성을 나타내는 것으로 보아 CaTiO_3 세라믹스와 대수 혼합법칙을 따르지 않으며, 2차상으로 형성된 CaB_2O_4 , CaSiO_3 , $\text{Zn}_3\text{B}_2\text{O}_6$ 와 입계에 형성된 glass에 의한 유전손실로 사료된다.

그림 11은 $x\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-(1-x)\text{CaTiO}_3$ 세라믹스에 ZBS glass를 10 wt% 첨가하여 900 °C에서 소결한 시편의 공진주파수 온도계수 변화를 나타낸 것이다. ZBS glass를 10 wt% 첨가한 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ 세라믹스가 -28 ppm/°C의 공진주파수 온도계수를 갖기 때문에 positive 값의 공진주파수 온도계수($\tau_f=+800$ ppm/°C)를 갖는 CaTiO_3 세라믹스를 첨가한 결과, CaTiO_3 세라믹스 함량에 따라 음(-)에서 양(+)으로 변화되었다.

본 실험의 결과에서 900 °C에서 $0.9\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-0.1\text{CaTiO}_3$ 조성에서 $\epsilon_r=39.6$, $Q \times f_0=4,400$, $\tau_f=-11$ ppm/°C의 우수한 유전특성을 갖는 LTCC 소재를 제조할 수 있었다.

4. 결론

1. 750 °C에서 2시간 동안 하소한 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$

세라믹스에 ZBS glass를 5~15 wt%로 정량적으로 첨가하여 800~950 °C에서 2시간동안 소결한 결과 glass 함량이 증가할수록 다량의 2차상이 형성되었고, 900 °C에서 완전소결이 가능하였다. 또한 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ 세라믹스에 ZBS glass를 10 wt% 첨가하여 900 °C에서 소결한 조성에서 $\epsilon_r=32$, $Q \times f_0=4,500$, $\tau_f=-28$ ppm/°C의 우수한 유전특성 나타내었다.

2. 공진주파수 온도계수 특성을 개선하기 위해 $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$ 세라믹스에 CaTiO_3 세라믹스를 0.1~0.3 mol로 정량적으로 합성한 후, 이에 ZBS glass를 5~15 wt% 첨가하여 소결한 결과 $0.9\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-0.1\text{CaTiO}_3$ 세라믹스에 ZBS glass를 10 wt% 첨가하여 900 °C에서 소결한 조성에서 $\epsilon_r=39.6$, $Q \times f_0=4,400$, $\tau_f=-11$ ppm/°C의 가장 우수한 유전특성을 나타내었다.

감사의 글

본 연구는 중소기업청 산학연 공동기술개발 컨소시엄 사업으로 시행한 "LTCC 기술을 이용한 2.4 GHz 대역통과 필터 개발" 과제의 의한 것입니다.

참고 문헌

- [1] R. R. Tummala, "Ceramic and glass-ceramic packing in the 1990s", J. Am. Cer. Soc., Vol. 74, No. 5, p. 895, 1991.
- [2] S. D. Park and H. K. Hong, "Multichip module 개발을 위한 LTCC 및 LTCC-M기술", J. Microelectronics & packaging Soc., Vol. 6, No. 3, p. 25, 1999.
- [3] 김민한, 남 산, "저온동시소성 세라믹스의 저온소결", 세라미스트, 8권, 3호, p. 20, 2005.
- [4] 송승모, "LTCC 및 동시소성 MLCC용 저온소결 Glass", 세라미스트, 8권, 3호, p. 44, 2005.
- [5] J. R. Yoon, S. W. Lee, and H. Y. Lee, "Microwave dielectric properties of low temperature co-fired ceramics with glass frit and TiO_2 additives", J. of KIEEME(in Korean), Vol. 17, No. 9, p. 942, 2004.

- [6] F. U. Chikoba, S. Nakajima, and T. Ito, "Fabrication of multilayer capacitors with silver internal electrode and alumina-glass composite materials", J. Cer. Soc. Jpn., Vol. 103, No. 9, p. 969, 1995.
- [7] G. Gejger, "Glass in electronic packaging application", J. Am. Cer. Soc. Bull., Vol. 69, No. 7, p. 1131, 1990.
- [8] P. Liu, H. Ogawa, E. S. Kim, and A. Kan., "Microwave dielectric properties of low temperature sintered $\text{Ca}[(\text{Li}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{1-x}\text{Ti}_x]_{3-5}$ ceramics", J. European. Ceram., Soc., Vol. 24, p. 1761, 2004.
- [9] K. Hapa, T. Ishii, J. Mashiuyama, and T. Ikeda, "Dielectric properties of two-phase mixture ceramics composed of rutile and its compounds", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 31, No. 9B, p. 3156, 1992.
- [10] J. M. Wu, M. C. Chang, and P. C. Yao, "Reaction sequence and effects of calcination and sintering on microwave properties of $[\text{Ba,Sr}]\text{O}-\text{Sm}_2\text{O}_3-\text{TiO}_2$ ceramics", J. Am. Ceram. Soc., Vol. 73, No. 6, p. 1599, 1990.
- [11] Wakino K., "Recent development of dielectric resonator materials and filters", in Japan. Ferroelectrics, Vol. 91, p. 68, 1989.
- [12] S. O. Yoon, D. M. Kim, S. H. Shim, J. K. Park, and K. S. Kang, "Microwave dielectric properties of $\text{Ca}(\text{Li}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3-\text{CaTiO}_3$ ceramic systems", J. European. Ceram., Soc., Vol. 26, No. 10-11, p. 2023, 2006.