

# 0.15BaO-0.15Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0.7TiO<sub>2</sub> 세라믹스의 마이크로파 유전 특성

이근일\*, 박인길\*, 이영희\*, 윤석진\*\*

\* 광운대학교 전자재료공학과, \*\* 한국과학기술연구원 세라믹스부

## Microwave Dielectric Properties of 0.15BaO-0.15Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0.7TiO<sub>2</sub> Ceramics

Lee Geun-Jil\*, Park In-Gil\*, Lee Young-Hie\*, Yoon Seok-Jin\*\*

\* Dept. of Electronic Materials Eng. Kwang Woon Univ., \*\* Division of Ceramics, KIST

### ABSTRACT

0.15BaO-0.15Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0.7TiO<sub>2</sub> ceramics were fabricated by mixed-oxide method. Microwave dielectric properties were investigated with sintering temperature and annealing time. In the specimen sintered at 1350[°C], dielectric constant, quality factor and temperature coefficient of resonant frequency had a good values of 80.19, 2006 (at 4.6851[GHz]), -27.54[ppm/°C], respectively. Increasing the annealing time, dielectric constant was almost constant and quality factor was increased. Temperature coefficient of resonant frequency was minimum value (-1.28[ppm/°C]) at 4 [hr] annealed.

### 1. 서 론

최근 전자, 통신 및 정보 산업의 발전에 따라 마이크로파를 이용한 이동통신, 위성통신 및 위성방송 시스템의 급속한 발전과 더불어 대역통과필터(Band pass filter), 공진기 소자 또는 마이크로파 집적회로(MIC)등에 유전체 세라믹스의 응용이 크게 증대되고 있다. 유전체 공진기를 사용함으로서 마이크로파 소자의 소정화, 경량화 및 저가격화를 도모할 수 있을 뿐만 아니라 온도 안정성도 크게 향상 시킬 수 있다.

고주파용 유전체 재료가 갖추어야 할 가장 중요한 특성은 1) 공진기의 크기가  $1/\epsilon_r$ 에 비례하여 감소하므로 유전상수( $\epsilon_r$ )가 커야 한다. 2) 공진 주파수의 선택성을 좋게 하기 위해서는 유전손실이 작아야 한다.(즉 무부하 Q가 커야 함) 3) 온도 변화에 따른 안정성을 높이기 위해 공진 주파수의 온도계수( $\tau_f$ )가 작아야 한다.<sup>1)</sup>

지금까지 보고된 대표적인 마이크로파 유전체 재료는 Ba(Mg<sub>1/2</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>와 같이 유전율이 20~30 대에서 높은 Q 값을 나타내는 복합 페로브스카이트형 재료<sup>2)</sup>, Ba<sub>2</sub>Ti<sub>3</sub>O<sub>9</sub><sup>3)</sup>과 같이 유전율 30~40 대로 중간 정도의 Q값을 갖는 고용체 그리고 (Ba,Sr)O·Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·TiO<sub>2</sub>와 같이 유전율 80~90 정도로 높으나 비교적 낮은 Q값을 갖는 재료<sup>4)</sup>등이 있다.

따라서 본 연구에서는 고유전율 재료인 0.15BaO-0.15Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0.7TiO<sub>2</sub> 세라믹을 선택하여 소결 온도 및 Annealing 시간 변화에 따른 마이크로파 유전 특성을 조사하여 유전체 공진기로의 응용 가능성을 고찰하고자 한다.

### 2. 실험

#### 2-1. 시편의 제작

본 실험에서는 순도 99.9% 이상의 BaCO<sub>3</sub>, Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub>를 조성식에 따라 평량한 후 아세톤을 분산매로 하여 볼밀로 16 [hr] 동안 혼합 분쇄하였다. 혼합 분쇄한 시료를 1050[°C]에서 2[hr]동안 하소시킨 후 원통형 금형( $\phi=12[\text{mm}]$ )에 넣고 800[kg/cm<sup>2</sup>]의 압력으로 성형한 후 1325~1400[°C]에서 2[hr] 동안 소결하였다. 소결된 시편은 1200[°C]에서 2[hr] 동안 annealing한 후, 표면 연마하여 Microwave 유전 특성을 조사하였다.

#### 2-2. 측정

시편의 소결 온도 및 Annealing 시간 변화에 따른 소결 성 및 2차상의 존재를 관찰하기 위해 Rigaku 사의 D/MAX - IIIC X-ray generator를 사용하여 X-선 회절 분석을 하였다. 또한 전자 현미경을 사용하여 미세구조를 관찰하였고, EDS, EPMA를 사용하여 정량 분석을 하였다.

연마된 시편은 두장의 도체판 사이에 넣고 Network Analyzer를 사용하여 TE<sub>011</sub> 공진 모드를 이용하는 Hakki - Coleman 방법으로 마이크로파 유전 특성을 측정하였고, 공진 주파수의 온도계수( $\tau_f$ )는 Impedance analyzer를 사용하여 1 [MHz]에서의 온도에 따른 유전율의 변화를 측정한 후식<sup>1)</sup>을 이용하여  $\tau_f$ 를 구하였다.<sup>5)</sup>

$$\tau_f = -(\alpha + \tau_e/2) \quad 1)$$

### 3. 결과 및 고찰

그림 1은 0.15BaO-0.15Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0.7TiO<sub>2</sub> 시편의 소결온도에 따른 미세구조를 나타낸 것이다. 1350[°C]에서 소결시킨 시편의 경우 구형 결정립과 needle-shape의 결정립이 공존하고 있으며 소결온도가 증가함에 따라 구형의 결정립은 감소하고 needle-shape의 결정립이 증가하였다.

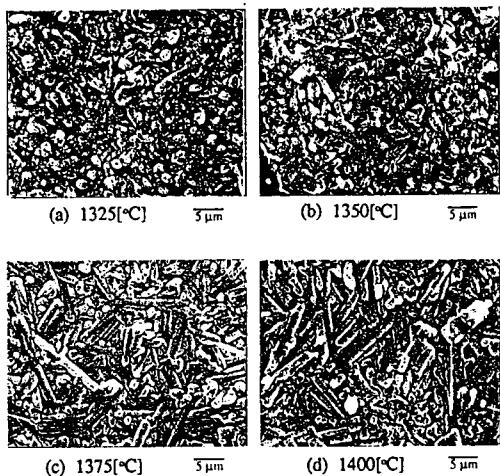


그림 1 소결온도에 따른 미세구조

Fig. 1 Microstructure of as-sintered surfaces with sintering temperature

그림 2는  $0.15\text{BaO}-0.15\text{Sm}_2\text{O}_3-0.7\text{TiO}_2$  시편의 소결온도에 따른 소결밀도를 나타낸 것이다. 소결밀도는 소결온도가  $1350^\circ\text{C}$ 인 시편에서  $5.46[\text{g}/\text{cm}^3]$ 의 최대값을 나타내었으며, 그 이상에서는 감소하였다. 이는 소결온도가 증가함에 따라 그림 1의 미세구조에서 알 수 있는 바와 같이 needle-shape 결정립의 성장으로 인하여 void가 증가하였기 때문으로 사료된다.<sup>4)</sup>

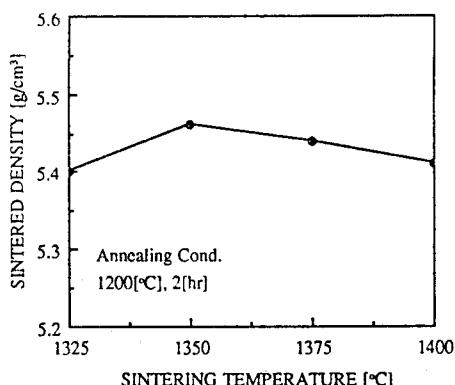


그림 2 소결온도에 따른 소결밀도

Fig. 2 Sintered density as a function of sintering temperature

그림 3은  $0.15\text{BaO}-0.15\text{Sm}_2\text{O}_3-0.7\text{TiO}_2$  시편의 소결온도에 따른 유전율과 품질계수를 나타낸 것이다.  $1350^\circ\text{C}$ 에서 소결시킨 시편의 경우 유전율 및 품질계수는  $80.19$ ,  $2006$  ( $f_0=4.6851[\text{GHz}]$ )의 최대값을 나타내었고, 소결온도가 증가함에 따라 감소하였다.

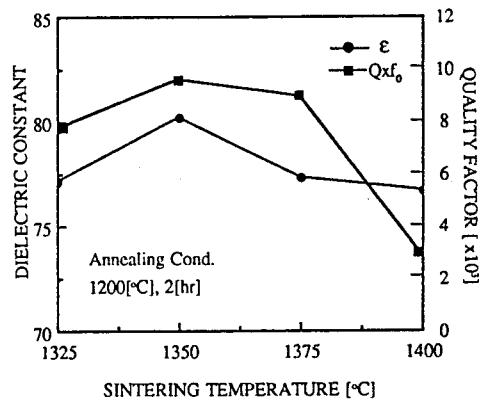


그림 3 소결온도에 따른 유전율 및 품질계수

Fig. 3 Dielectric constant and quality factor as a function of sintering temperature

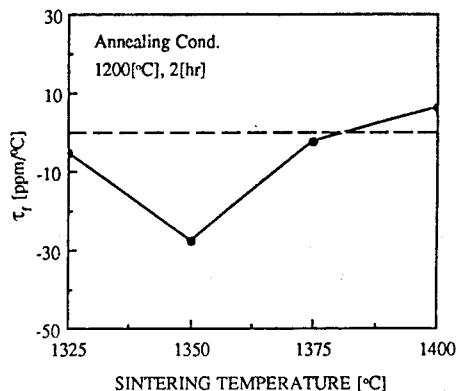


그림 4 소결온도에 따른 공진 주파수의 온도계수( $\tau_r$ )

Fig. 4 Temperature coefficient of resonant frequency( $\tau_r$ ) as a function of sintering temperature (at  $1[\text{MHz}]$ )

그림 4는  $0.15\text{BaO}-0.15\text{Sm}_2\text{O}_3-0.7\text{TiO}_2$  시편의 소결온도에 따른 공진주파수의 온도계수( $\tau_r$ )를 나타낸 것이다.  $1350^\circ\text{C}$ 에서 소결시킨 시편의 경우  $\tau_r$ 는  $-27.54[\text{ppm}/\text{°C}]$ 로 최소값을 나타내었으나, 소결온도가 증가함에 따라  $\tau_r$ 는 negative에서 positive로 변화되는 특성을 나타내어  $1400^\circ\text{C}$ 에서 소결시킨 시편의 경우  $+5.98$  [ $\text{ppm}/\text{°C}$ ]의 값을 나타내었다.

따라서 위의 실험 결과를 기초로 하여 유전율과 품질계수는 양호하나, 큰  $\tau_r$  특성을 나타낸  $1350^\circ\text{C}$  시편에 대해 annealing 온도를  $1200^\circ\text{C}$ 로 고정시키고 시간을  $2\text{-}16[\text{hr}]$  까지 변화시켜, annealing 시간에 따른 Microwave 유전 특성을 고찰하였다.

그림 5는 annealing 시간에 따른 표면연마된 시편의 미세구조를 나타낸 것으로, annealing 시간이 증가함에 따라 이차상은 감소하였다. 이차상은 그림6의 EPMA 분석 결과 BT상인 것으로 판명되었으며, Nishigaki 등의 보고<sup>6)</sup>에 따르면  $\text{Ba}_2\text{Ti}_3\text{O}_{10}$ 상으로 사료된다.

그림 7은 annealing 시간에 따른 유전율 및 품질계수를

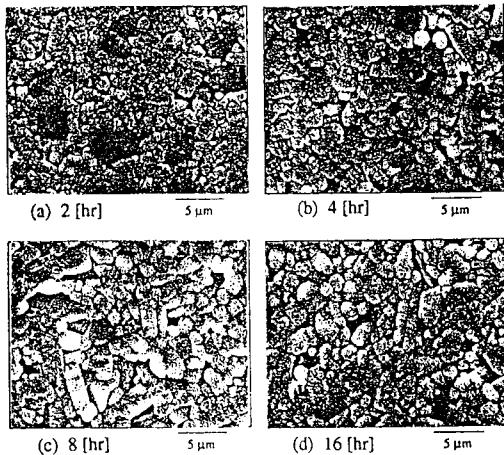


그림 5 어닐링 시간에 따른 미세구조

Fig.5 Microstructure of polished surface with annealing time

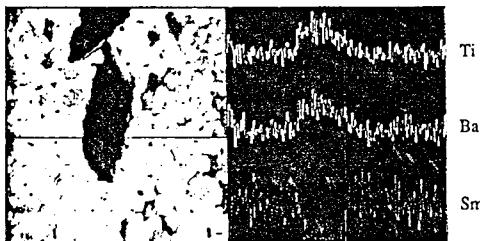


그림 6 1200[°C], 2시간 어닐링시킨 시편의 EPMA

Fig. 6 EPMA of the annealed specimen for 2[hr] at 1200[°C]

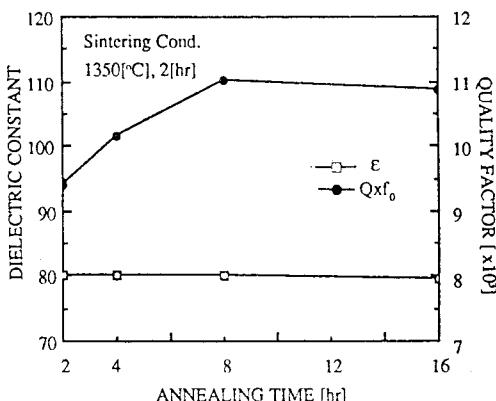


그림 7 어닐링시간에 따른 유전율 및 품질계수

Fig. 7 Dielectric constant and quality factor as a function of annealing time

나타낸 것이다. annealing 시간이 증가함에 따라 유전율은 거의 변화가 없었으나, 품질계수는 증가하여 8[hr] annealing 시 킨시편의 경우  $2306(f_0=4.7781[\text{GHz}])$ 의 최대값을 나타내었다

그림 8은 annealing 시간에 따른 공진주파수의 온도계수( $\tau_f$ )를 나타낸 것이다. annealing 시간이 4[hr]인 시편에서  $-1.28[\text{ppm}/\text{°C}]$ 의 최소값을 나타내었으며, annealing 시간이 증

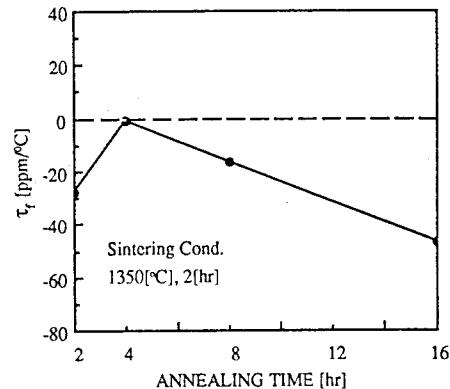


그림 8 Annealing 시간에 따른 공진주파수의 온도계수( $\tau_f$ )

Fig. 8 Temperature coefficient of resonant frequency( $\tau_f$ ) as a function of annealing time(at 1[MHz])

가함에 따라  $\tau_f$ 는 증가하였다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는  $0.15\text{BaO}-0.15\text{Sm}_2\text{O}_3-0.7\text{TiO}_2$  세라믹을 선택하여 소결온도 및 annealing 시간 변화에 따른 Microwave 유전 특성을 조사하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 소결온도가 1350에서 1400[°C]로 증가함에 따라 소결 밀도는 5.46에서 5.41[g/cm³]로 감소하였다.
2. 1350[°C]에서 소결시킨 시편의 경우 유전율, 품질계수 및 공진주파수의 온도계수는 각각 80.19, 2006 (at 4.685 [GHz]), -27.54[ppm/°C]로 양호한 특성을 나타내었다.
3. Annealing 시간이 증가함에 따라 품질계수는 증가하는 경향을 나타내었으며, 공진주파수의 온도계수는 4 [hr] annealing시킨 시편에서 최대값을 나타내었다.
4. Annealing 을 4 [hr] 행한 시편의 경우 유전율, 품질계수 및 공진주파수의 온도계수는 각각 79.98, 2161 (at 4.6923 [GHz]), -1.28[ppm/°C]로 우수한 특성을 나타내었다.

#### 참 고 문 헌

1. W. Wersing, "Electronic Ceramics", ELSEVIER APPLIED SCIENCE, pp.67~119, 1991.
2. K. Matsumoto et al., " $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$  Ceramics with Ultra-low Loss at Microwave Frequencies", In proc. of the Sixth IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics, pp.278~281, 1973.
3. J. K. Plourde et al., " $\text{Ba}_2\text{Ti}_9\text{O}_{10}$  as a Microwave Dielectric Resonator", J. Am. Ceram. Soc., Vol.58, No.9~10, pp.418~420, 1975.
4. Nishigaki et. al. "Microwave Dielectric Properties of  $(\text{Ba},\text{Sr})\text{O}-\text{Sm}_2\text{O}_3-\text{TiO}_2$  Ceramics" Am. Ceram. Soc. Bull., Vol.66, No.9, 1405~1410, 1987.
5. K. Junichi, "マイクロ波用高誘電率セラミックの特徴と応用", 電子材料, Vol.9, pp.112~118, 1991.