

## 첨가물에 따른 저온소결형 ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> 세라믹스의 마이크로파 유전특성

김정훈, 김재식, 김지현, 이문기, 이영희  
광운대학교

### The Microwave Dielectric Properties of Low-Temperature Sintered ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> Ceramics with Addition

Jung-Hun Kim, Jae-Sik Kim, Ji-Heon Kim, Moon-Kee Lee, Young-Hie Lee  
Kwangwoon Univ.

**Abstract :** The ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> ceramics with 3wt% CuO and B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(1,3,5wt%) were prepared by the conventional mixed oxide method. The ceramics were sintered at the temperature of 1000°C~1050°C for 3hr. in air. The structural properties were investigated with sintering temperature by XRD and SEM. Also, the microwave dielectric properties were investigated with sintering temperature. Increasing the sintering temperature, the peak of second phase (Cu<sub>3</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>8</sub>) was increased. But no significant difference was observed as sintering temperature. In the ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> ceramics with 3wt% CuO and 5wt% B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sintered at 1025°C for 3hr, the dielectric constant, quality factor, temperature coefficient of the resonant frequency were 22.92, 20,271GHz, -14.27ppm/°C, respectively.

**Key Words :** ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>, CuO, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, sintering temperature

#### 1. 서 론

최근 듀플렉스필터, 대역통과필터, VCO, 유전체 공진기, 위성안테나등과 같은 위성통신과 이동통신의 빠른 진보로 인해 적층형 마이크로파 소자에 대한 요구가 급속히 증가하고 있다. 이 기술을 사용하기 위해서는 유전체 재료가 내부회로를 구성하는 도체 금속의 용점보다 낮은 온도에서 소결되어야 한다. 특히 마이크로파 대역에서는 적층소자의 내부 도체 금속의 저항에 의한 손실이 소자의 성능에 큰 영향을 주기 때문에 Ag나 Cu같은 높은 전기전도도를 갖고 용점이 낮은 금속을 사용하는 것이 바람직하다.[1]

복합 페로브스카이트 구조를 가진 조성의 하부성분인 ANb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>(A= Mg, Ni, Ca, Mn, Zn)는 콜럼바이트(columbite) 구조를 가지고 있으며 특히 ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> 세라믹스는 우수한 마이크로파 유전특성( $\epsilon_r = 25$   $Q \times f = 83,700$   $\tau_f = -56.1$ ppm/°C)을 가지는 것으로 보고되고 있으며 액상형성 물질 없이도 1150°C에서 소결가능하기 때문에 LTCC재료로 적합하다.[2]

따라서 본 연구에서는 ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>를 주물질로 선택하였고 3wt%CuO와 B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(1,3,5wt%)를 첨가하여 이에 따른 마이크로파 유전특성을 고찰하였다.

#### 2. 실험

#### 2.1 시편의 제조

본 연구에서는 출발원료로 ZnO(99.9%), Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>(99%)를 사용하였다. ZnO, Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>를 조성식에 따라 평량하고 에틸 알콜을 분산매로 사용해 지르코니아 볼로 24시간 동안 혼합분쇄하였다. 혼합 분쇄한 분말을 100°C 전기오븐에서 24시간 동안 건조한 후 알루미늄 도가니에 넣어 1000°C에서 2시간 동안 하소하였다. 하소 시 전기로의 승온 속도는 5°C/min로 하였고 600°C에서 1시간을 유지하였다. 하소한 분말에 3wt% CuO와 B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(1~5wt%)를 첨가하여 에틸 알콜을 분산매로 사용하고 지르코니아 볼로 12시간동안 재분쇄하였다. 그 후 원통형 금형( $\psi = 12.8$  mm)에 넣어 1000kg/cm<sup>2</sup>의 압력을 가해 일축가압 성형하였다. 성형한 시료는 1000°C~1050°C의 온도범위에서 3시간 동안 소결하였다.

#### 3. 결과 및 고찰

그림 1은 소결온도에 따른 3wt% CuO와 B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(1,3,5wt%)를 첨가한 ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> 세라믹스의 X-선 회절 모양이다. 주상으로 사방정(orthorhombic) ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>상과 이차상으로 삼사정(triclinic) Cu<sub>3</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>8</sub>상이 함께 나타났다. 이는 저용점 이차상의 존재로 인해 ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> 세라믹스의 소결온도보다 낮은 온도에서 ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>상이 형성되는 것을 의미한다.

그림 2는 1050°C에서 소결하고 B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량에 따른 3wt% CuO를 첨가한 ZnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub> 세라믹스의 미세구조이다. B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량이 증가함에 따라 기공은 감소했고 결정립 성장

나타났다. 이는  $B_2O_3$ 의 첨가량이 증가함에 따라 액상의 양이 증가하여 액상을 통한 원소간의 이동이 용이해지기 때문인 것으로 생각된다.

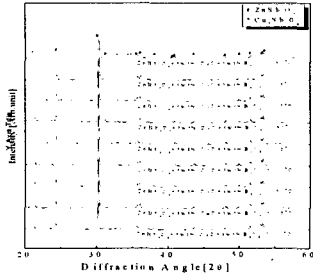


그림 1. 소결온도에 따른  $ZnNb_2O_6+3wt\%CuO+xwt\%B_2O_3$  세라믹스의 X-선 회절모양( $x=1,3,5$ )

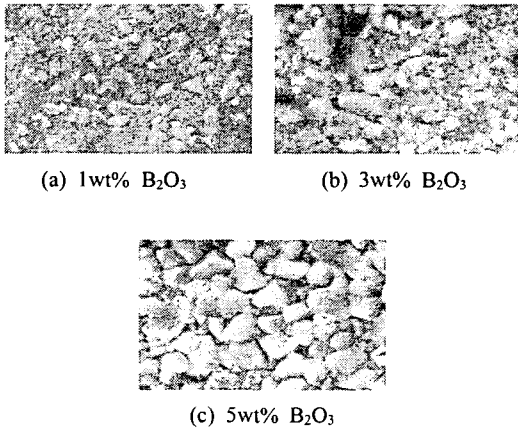


그림 2.  $B_2O_3$  첨가량에 따른  $ZnNb_2O_6+3wt\%CuO$  세라믹스의 미세구조( $1050^\circ C$ )

그림 3은 소결온도에 따른 3wt% CuO와  $B_2O_3$ (1,3,5wt%)를 첨가한  $ZnNb_2O_6$  세라믹스의 밀도이다. 소결온도가 증가함에 따라 밀도는 증가하였는데 이는 결정립 성장에 의한 기공의 감소 때문인 것으로 생각된다.

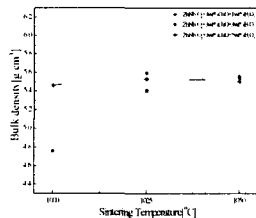
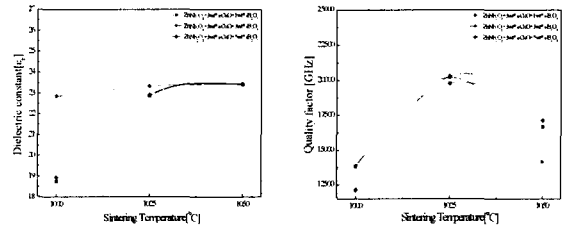


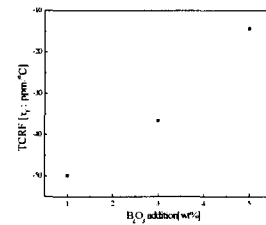
그림 3. 소결온도에 따른  $ZnNb_2O_6+3wt\%CuO+xwt\%B_2O_3$  세라믹스의 밀도( $x=1,3,5$ )

그림 4는 소결온도에 따른 3wt% CuO와  $B_2O_3$ (1,3,5wt%)를 첨가한  $ZnNb_2O_6$  세라믹스의 마이크로파 유전특성을 나타낸 것이다. 유전율은 결정립 성장으로 인한 기공의 감소로 소결온도에 따라 증가했다. 품질계수는 소결온도가 증가함에 따라 특정온도에서 최고값을 나타내고 그 이상의 온도에서는 감소하였는데 이는 특정온도 이상의 온도

에서 결정이 일치하지 않아 품질계수가 감소하는 것으로 생각된다. 공진주파수의 온도계수는 일반적으로 재료의 이차상과 조성에 관련되어 있다고 보고되고 있다. 본 실험에서도  $B_2O_3$ 첨가량에 의존했고 CuO 첨가량과 소결온도에는 큰 영향을 받지 않았다.



(a) 유전율 (b) 품질계수



(c) 공진주파수의 온도계수

그림 4. 소결온도에 따른  $ZnNb_2O_6+5wt\%CuO+xwt\%B_2O_3$  세라믹스의 마이크로파 유전특성( $x=1,3,5$ )

#### 4. 결론

본 연구에서는 소결온도에 따른 3wt% CuO와  $B_2O_3$ (1,3,5wt%)를 첨가한  $ZnNb_2O_6$  세라믹스의 마이크로파 유전특성을 조사하였다. 결정립 성장에 따른 기공의 감소로 인해 소결온도가 증가함에 따라 밀도와 유전율이 증가하였다. 그러나 품질계수는 특정온도에서 최고값을 나타내고 그 이상의 온도에서는 감소하였으며 공진주파수의 온도계수는 소결온도에 거의 영향을 받지 않았고  $B_2O_3$  첨가량에 의존했다.  $1025^\circ C$ 에서 소결하고 3wt% CuO와 5wt%  $B_2O_3$ 를 첨가한  $ZnNb_2O_6$  세라믹스의 유전율, 품질계수, 공진주파수의 온도계수는 22.92, 20,271GHz,  $-14.27ppm/^\circ C$ 이었다.

#### 감사의 글

본 연구는 서울시의 과학 장학생 장학금 지원에 의한 것입니다.

#### 참고 문헌

- [1] H. Kagata, T. Inoue, J. Kato, I. Kameyama, Jpn. J. Appl. Phys., 31 part 1(93), 3152-31 55, (1992)
- [2] H. J. Lee, K. S. Hong, S. J. Kim Mater. Res. Bull., Vol 32, No. 7, pp.847-855. (1997)