

## LTCC 내장 캐패시터용 BaTiO<sub>3</sub>계 세라믹스의 저온소결 및 유전특성

박정현\*\*\* · 최영진\*\*\* · 고원준\*\*\* · 박재환\* · 남 산\*\* · 박재관\*†

\*한국과학기술연구원 복합기능세라믹스연구센터

\*\*고려대학교 재료공학과

(2004년 8월 13일 접수; 2004년 10월 25일 승인)

## Low-Temperature Sintering and Dielectric Properties of BaTiO<sub>3</sub>-Based Ceramics for Embedded Capacitor of LTCC Module

Jeong-Hyun Park,\*\*\* Young-Jin Choi,\*\*\* Won-Jun Ko,\*\*\* Jae-Hwan Park,\*  
Sahn Nahm,\*\* and Jae-Gwan Park\*†

\*Multifunctional Ceramics Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791, Korea

\*\*Department of Materials Science and Engineering, Korea University, Seoul 136-701, Korea

(Received August 13, 2004; Accepted October 25, 2004)

### 초 록

BaTiO<sub>3</sub>계 유전체 모재료에 대하여 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>와 CaO 조성이 소량 포함된 lithium-borosilicate계 유리 프릿을 5~15 wt% 적용함으로써 LTCC용 내장 캐패시터로 적용 가능한 조성을 개발하였다. 이를 위하여 먼저, 화학적으로 안정하고 저온소성효과가 탁월한 유리 프릿 조성물을 설계하고 이를 유전체 모재료에 적용하여 저온소성특성 및 유전특성을 평가하였다. BaTiO<sub>3</sub> 세라믹스를 모재료로 하는 경우 유리 프릿을 5 wt% 첨가하였을 때 925°C에서 95% 정도의 상대밀도 값을 나타내었으며, 이 경우 유전율 990, 유전손실 3.1%의 유전특성을 나타내었다. (Ba,Ca)(Ti,Zr)O<sub>3</sub> 세라믹스를 모재료로 하여 유리 프릿을 10 wt% 첨가한 경우는 875°C의 소결온도에서 상대밀도가 95% 이상이며 기공율 0.5% 이하인 소결특성을 나타내었고, 700 이상의 유전율 및 2% 내외의 유전손실 값을 가지는 것으로 측정되었다.

### ABSTRACT

The compositions for LTCC embedded capacitors based on BaTiO<sub>3</sub> ceramics with 5~15 wt% of lithium-borosilicate glass frits were studied. After the glass frits, which is chemically stable and has acceptable ability of low-temperature sintering, were added to the host dielectric materials, the sintering behavior and dielectric properties were evaluated. As for BaTiO<sub>3</sub>, relative density of >95%, permittivity 990, and dielectric loss 3.1% were obtained when sintered at 925°C with 5 wt% of glass frits. As for (Ba,Ca)(Ti,Zr)O<sub>3</sub> ceramics, relative density of >95%, open porosity <0.5%, permittivity 700, and dielectric loss 2% were obtained when sintered at 875°C with 10 wt% of glass frits.

**Key words :** LTCC, Glass frits, BaTiO<sub>3</sub>, (Ba<sub>0.95</sub>Ca<sub>0.05</sub>)(Ti<sub>0.88</sub>Zr<sub>0.12</sub>)O<sub>3</sub>

### 1. 서 론

최근 정보통신 산업의 발전방향은 고속화, 다기능화, 무선화로 요약할 수 있으며, 이러한 경향에 대응하기 위하여 관련 정보통신 부품들도 고기능화 및 집적화의 필요성이 점점 더 부각되고 있다. 이런 관점에서, 저온동시소성세라믹(Low Temperature Co-fired Ceramic: LTCC) 기술은 가격이 저렴하고 전기적 특성이 우수한 Ag/Cu 전극 및 이와 동시소성이 가능한 유전체 세라믹스 후막을 다

층으로 적층하여 900°C 이하의 온도에서 동시에 소성하는 기술로서 전자 부품의 소형화, 저가격화, 고기능화를 구현하기 위해 주목받고 있는 기술이다.<sup>1-3)</sup> 현재까지의 LTCC는 L/C/R 수동소자를 내장하지 않는 단순한 3차원 배선기판의 형태로 활용되어 왔으므로 신호전달 지연이 작도록 하기 위해 유전율(k)이 낮은 기판에 대한 연구가 주로 이루어져 왔다. 그러나, 최근 공진기 (resonator) 개념을 이용하는 능동 소자를 LTCC 구조 안에 구현하기 위해서 중유전율 유전체를 LTCC 내부에 구현하여야 할 필요성이 대두되었다. 유전율이 20~100 정도로서 기존의 배선기판(k=5~9)보다 다소 높으면서도 900°C 이하의 온도에서 소성이 가능한 소재 시스템을 개발하기 위하여 다양한 시도가 이루어져 왔다.<sup>4-6)</sup> 기본적으로 고유전율 및

†Corresponding author : Jae-Gwan Park

E-mail : jgpark@kist.re.kr

Tel : +82-2-958-5503 Fax : +82-2-958-5489

저손실의 특성을 갖는 마이크로파 유전체에 저용점 유리를 첨가하여 액상 소결을 유도하는 방법이 주로 연구되었으며, (Zr,Sn)TiO<sub>4</sub>계<sup>7)</sup> 및 BaO-TiO<sub>2</sub>-WO<sub>3</sub>계<sup>8)</sup> 등 다양한 마이크로파 유전체에 대한 유리 프리트 첨가에 의한 저온소결 거동이 연구되고 있다.

차세대 LTCC 복합모듈에서는 이러한 중유전율 기관을 이용한 공진기 외에도 고용량 캐패시터, 인덕터, 레지스터 등의 수동부품들도 LTCC 패키지 안에 내장하여 동시소성할 필요성이 대두되고 있으며 일부 관련 연구가 이루어지고 있다. 특히 캐패시터는 거의 모든 전자, 전기제품에 필수적으로 사용되는 부품으로서 그 종류는 매우 다양하고 대단히 수요가 많은 부품 중의 하나이다. LTCC 다층모듈에서 고유전율 내장 캐패시터를 구현함으로써 디커플링 캐패시터 등 기존에 표면실장형태로 윗부분에 실장되던 MLCC 형태의 캐패시터를 LTCC 다층 패키지 내부에 동시소성 과정을 통해 구현할 수 있어서 비용적으로 저렴하며, 집적도와 복합도를 향상시킬 수 있으며, 신뢰성을 제고할 수 있는 장점이 있다. 이와 같은 고유전율 내장 캐패시터를 LTCC 패키지에 적용하기 위해서는 소성온도가 900°C 미만이며 전기적 특성이 우수한 유전체 재료를 개발하여야 한다. 벌크형 세라믹 캐패시터의 경우는 BaTiO<sub>3</sub>를 중심으로 하여 폭 넓게 연구가 진행되어 왔으며 온도특성이 좋고 첨가제를 통하여 여러 가지 다양한 특성을 갖도록 제어할 수 있다는 장점을 가지고 있다.<sup>8-12)</sup> 따라서 이러한 BaTiO<sub>3</sub>를 중심으로 하여 저온소성용 유리 프리트를 적용하면 LTCC용 고유전율 조성을 개발할 수 있을 것으로 기대된다.

본 연구에서는 BaTiO<sub>3</sub> 및 BaTiO<sub>3</sub>의 일부를 CaO와 ZrO<sub>2</sub>로 치환한 조성인 (Ba,Ca)(Ti,Zr)O<sub>3</sub> 세라믹스를 모재료로 채택하여 LTCC 적정 소성온도인 850~950°C 범위에서 500 이상의 고유전율을 가지는 소재 시스템을 개발하고자 하였다. 이를 위하여 먼저, 화학적으로 안정하고 저온소성효과가 탁월한 유리 프리트를 설계하고 이를 유전체 모재료에 적용하여 저온소성특성 및 유전특성을 평가하였다.

## 2. 실험 방법

먼저 저온소결을 위하여 BaTiO<sub>3</sub>계 세라믹스에 적용하기 위한 유리 프리트를 설계하였다. 유리 조성 시뮬레이터인 SciGlass(V3.5, Scivision, USA)를 이용하여 유리의 전

기적 특성을 예측하고 실제 제조된 유리의 전기적 특성을 비교분석하는 과정을 통해 유전손실 값이 낮은 유리 조성으로 접근하고자 하였다. 설계의 기준은 가능한 높은 유전율과 낮은 유전손실 값을 가지는 조성을 탐색하였으며, 모재료의 저온소결을 위해 적은 양으로도 충분한 저온소결 특성을 나타낼 수 있도록 유리 전이점(Transition point: T<sub>g</sub>)이 450°C 이하인 유리 조성을 탐색하였다. 유리 조성은 Li<sub>2</sub>O가 무게비로 35% 이상, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 23~43% 범위, SiO<sub>2</sub>는 5~35% 범위, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>와 CaO의 무게비는 4~13% 범위로 구성되었다. 설계된 조성은 실제 유리를 제조하여 전기적 특성 및 저온소결특성을 평가하여 설계치와 비교하면서 조성을 탐색하였다.

유리의 제조는 일반적인 용융 급냉법(water quenching method)로 제조되었다. 각 원료분말을 조성비로 칭량하여 건식 혼합한 후 백금도가니에 넣고 1100°C의 온도에서 2시간 유지한 후 급냉하여 유리를 제조하였다. 유리의 물리적/전기적 특성분석을 위하여 육면체 시편을 제작하였으며, 나머지 유리 용융액은 유리 분말을 제조하기 위해 수냉조에서 급냉하였다. 수냉조에서 급냉시켜 만들어진 유리는 mortar에서 조분쇄한 후 체질을 통한 분급과정을 거쳐 약 50 μm 크기의 분말을 얻었다. 얻어진 분말을 지르코니아 볼 및 이소프로필 알코올을 사용하여 24시간 불밀링하여 1차 미분쇄, 2차적으로 어트리션 밀링을 통해 24시간 미분쇄한 평균 입경이 2~3 μm 범위인 저온소결 조제인 유리 프리트를 준비하고 마지막으로 체가름(sieving, 100 mesh)을 통해 조립화하였다.

한편 유전체 모재료로서는 2종의 분말을 사용하였다. 기본적인 BaTiO<sub>3</sub>계 조성은 상용분말(#291, Ferro, U.S.A)을 사용하였으며, 유전특성 및 온도특성을 개선하기 위해 일부 첨가제 (CaO, ZrO<sub>2</sub>) 원료분말을 추가하고 혼합 및 하소하여 (Ba<sub>0.95</sub>Ca<sub>0.05</sub>)(Ti<sub>0.88</sub>Zr<sub>0.12</sub>)O<sub>3</sub> 조성을 제조하였다. 이러한 모재료의 저온소성을 위해 자체개발한 lithium-borosilicate 계 유리 프리트를 5~15 wt% 첨가하였다. 에탄올을 분산매로 하여 24시간 불밀링을 실시하였고 오븐에서 80°C 온도로 유지하여 건조하였다. 성형성을 부여하기 위하여 3 wt% PVA (Poly-Vinyl Alcohol) 수용액을 결합제로 첨가하여 분말과 혼합한 뒤 체가름을 통해 조립화하였다. 10 mm 지름의 원통형 몰드에 1000 kg/cm<sup>2</sup>의 힘으로 일축 가압하여 성형하였으며 850~950°C 온도 범위에서 2시간 동안 소결하였다. 아르키메데스 법을 사용하여 시편의 상

**Table 1.** Physical and Electrical Properties of BaTiO<sub>3</sub> and (Ba,Ca)(Ti,Zr)O<sub>3</sub> Ceramics

Sample code	Composition	Optimum sintering temperature [°C]	Relative density [%]	Dielectric constant [1 MHz]	Dielectric loss (%) [1 MHz]
BT	BaTiO <sub>3</sub>	1350	99.8	>2000	1.9
BCTZ	(Ba <sub>0.95</sub> Ca <sub>0.05</sub> )(Ti <sub>0.88</sub> Zr <sub>0.12</sub> )O <sub>3</sub>	1260	99.7	>3000	2.5

대밀도, 기공률, 흡수율 등 소결 특성을 측정하였으며 주사 전자 현미경 (field emission scanning electron microscopy: S-4100, Hitachi) 사진을 통해 시편의 미세구조 및 치밀화 정도를 살펴보았다. 저주파 유전특성은 시편을 chamber (9023, Delta Design)에 장착시키고 1 kHz에서 -50~150°C의 온도범위로 LCR meter(4263B, Hewlett Packard)와 Multimeter(2000, Keithley)를 이용하여 측정하였으며, 1 MHz의 고주파에서는 K<sup>2</sup>법을 사용하는 LCR meter(4284A, Hewlett Packard, USA)를 이용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 유리 프리트 특성

일반적으로 20 wt% 미만의 유리 프리트가 첨가되는 LTCC 중-고유전율 세라믹스는 유전특성을 어느 정도 유지하면서 모재로 자체의 유전특성을 보전하는 것이 중요하다. 또한, 모재로 자체의 저온소결능을 향상시키기 위해서는 낮은 유리 전이점과 연화점을 가져야 저온부에서 모재로의 액상소결을 촉진시킬 수 있다. 이러한 조건에 입각하여 설계된 lithium-borosilicate계 유리 프리트 조성인 HA-시리즈의 물리적 전기적 특성을 Table 2에 나타내었다. 대부분의 조성들은 유리 전이점 (Transition point: T<sub>g</sub>) 및 연화점 (Softening point: T<sub>s</sub>)이 450°C 미만으로서 소량의 첨가로도 950°C 미만에서 BaTiO<sub>3</sub>계 세라믹스를 95% 이상의 상대밀도로 치밀화시킬 수 있는 것으로 평가되었다. 유리 전이점(T<sub>g</sub>)은 380~450°C의 범위, 연화점(T<sub>s</sub>)은 400~480°C의 범위를 가지며 열팽창계수는 12~16×10<sup>-6</sup>/°C이었다. 유리의 전기적 특성을 살펴보면 유전율은 7.0~8.6의 범위, 유전손실은 0.5~0.8의 범위를 나타내었다.

3.2. BaTiO<sub>3</sub>계 세라믹스의 저온소결

유전율 2000 이상의 특성을 갖는 강유전체 조성인 BaTiO<sub>3</sub>를 주조성으로 하고 저온 소결 조제로서 HA-시리즈 유리 프리트를 첨가하여 LTCC에 적용 가능한 고유전율 내장 캐패시터 조성을 탐색하였다. HA-시리즈의 유리 프리트에서 그 조성 비율을 다양하게 변화시키면서 유전체 모재료와

의 적응성을 저온소결 특성 및 전기적 특성의 관점에서 조사하였다.

Fig. 1은 BaTiO<sub>3</sub> 세라믹스의 저온 소결의 한 사례로서 HA-03 유리 프리트를 적용한 경우의 소결 특성을 나타냈다. HA-03 유리 첨가제를 5 wt% 미만으로 첨가할 경우에는 LTCC의 적정한 소성온도보다 다소 높게 나타났으나 5 wt%

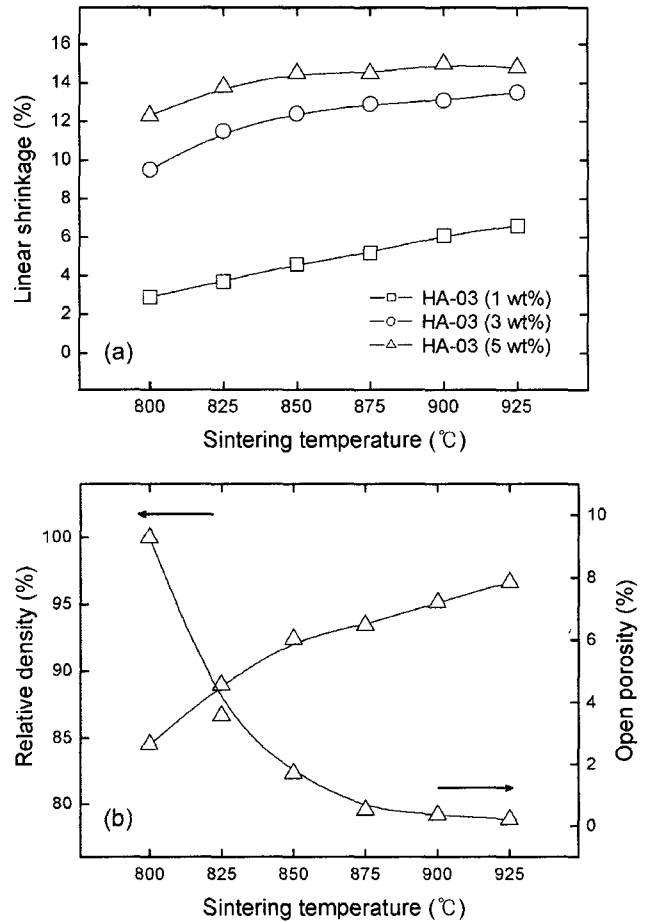


Fig. 1. Sintering properties of BaTiO<sub>3</sub> ceramics with HA-03 glass additions : (a) linear shrinkage with glass content and (b) relative density and open porosity with 5 wt% of glass frit.

Table 2. Physical and Electrical Properties of the HA-Series Glass Frits

Code	Density [g/cm <sup>3</sup> ]	k [1 MHz]	tan δ (%) [1 MHz]	TEC [×10 <sup>-6</sup> /°C]	T <sub>g</sub> [°C]	T <sub>s</sub> [°C]	
HA series	01	2.37	7.5	0.58	15	430	460
	02	2.35	7.1	0.68	14	450	480
	03	2.37	7.3	0.57	14	430	460
	04	2.34	8.2	0.65	12	420	450
	05	2.46	8.6	0.48	12	410	440
	06	2.52	8.4	0.89	12	400	450
	07	2.32	8.7	0.51	12	385	400

정도의 HA-03 유리 첨가제가 첨가된 경우 925°C에서 95% 정도의 상대밀도 값을 나타내었다. 이 경우 유전율은 990, 유전손실은 3.1%의 유전특성을 나타냈다. HA-03 유리 프릿의 첨가량이 5 wt% 이상인 경우에 소결 하한 온도는 저온부로 이동하였으나 유전율이 500 이하로 크게 낮아지는 결과가 나타났다. 따라서 소량의 유리 프릿 첨가에 의해서 유전율의 저하 없이 LTCC 적정 소결온도인 875°C 미만에서의 저온 소결이 가능하도록 유리 프릿 설계를 반복하여 유전특성이 우수하면서 연화점( $T_g$ )이 낮은 HA-07을 합성하였다. Fig. 2는 유리 연화점( $T_g$ )이 385°C, 전이점( $T_s$ ) 400°C인 HA-07 유리 프릿을 적용한 경우에 대하여 첨가량 및 소결온도 변화에 따른 선수축율과 상대밀도 변화 경향을 나타내었다. 유리 프릿의 첨가량이 증가할수록 저온부에서의 수축율이 높게 나타났다. 유리 프릿이 10 wt% 첨가되었을 때 875°C의 소성온도에서 17% 정도의 소성수축이 나타났으며, 이 경우 유전율은 590, 유전손실은 2.9%의 유전특성을 나타냈다. HA-07 유리 프릿이

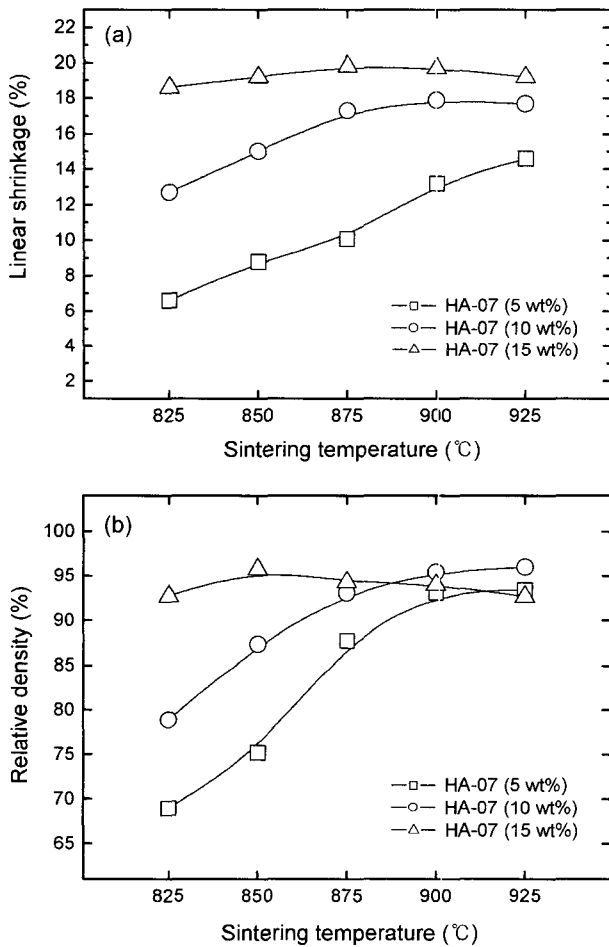


Fig. 2. Sintering properties of BaTiO<sub>3</sub> ceramics with HA-07 glass additions : (a) linear shrinkage and (b) relative density.

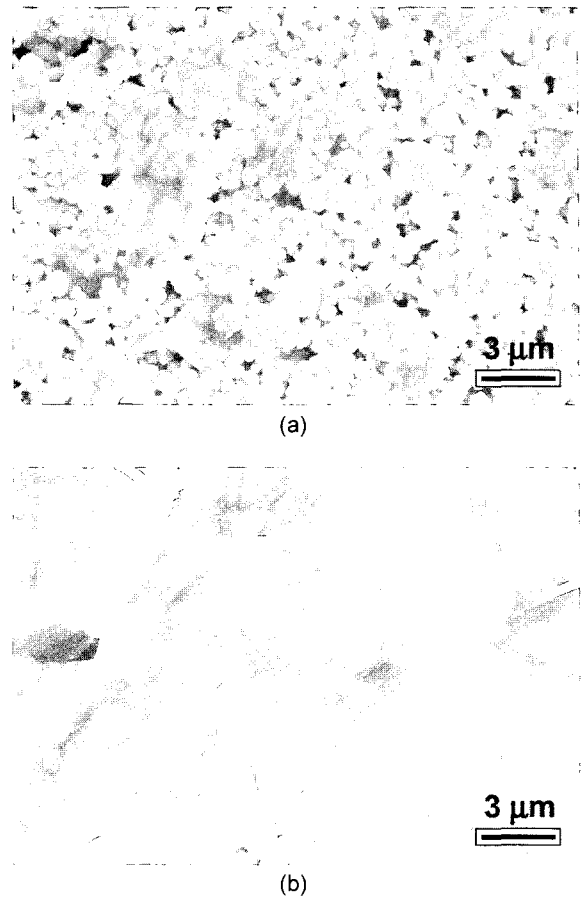


Fig. 3. SEM images of BaTiO<sub>3</sub>-based ceramics with 10 wt% of HA-07 glass frit sintered at 875°C for 2 h : (a) surface image and (b) cross section image.

15 wt% 첨가되었을 때는 850~950°C의 넓은 소결 온도에서 90% 이상의 상대밀도를 나타내었으나, 이 경우 유전율이 낮은 유리 프릿의 첨가로 인해 유전율이 300 이하로 저하되었다.

Fig. 3은 HA-07 유리 프릿이 10 wt% 첨가되었을 때 875°C의 온도에서 소결한 미세구조 사진이다. 기공이 없이 상당히 치밀화된 미세구조를 보여주고 있다. Table 3에는 이상의 과정을 통해 개발된 BaTiO<sub>3</sub> 고유전율 내장 캐패시터 조성의 소결특성 및 전기적 특성을 정리하여 나타내었다.

### 3.3. (Ba,Ca)(Ti,Zr)O<sub>3</sub>계 세라믹스의 저온소결

상기 연구를 통해 BaTiO<sub>3</sub> 세라믹스의 저온소결에 대한 가능성을 확인하였으나 저온소결 특성이 충분치 못한 점이 발견되었다. 즉, 소결하한온도를 900°C 미만으로 내릴 수 있는 정도의 유리 프릿을 첨가한 경우 유전율이 500 이하로 떨어지는 현상이 관찰되는데 이는 치밀화가 충분히 이루어지지 않은 것에 기인하는 것으로 판단된다. 따라서, BaTiO<sub>3</sub>계의 일부를 CaO와 ZrO<sub>2</sub>로 치환한 조성인

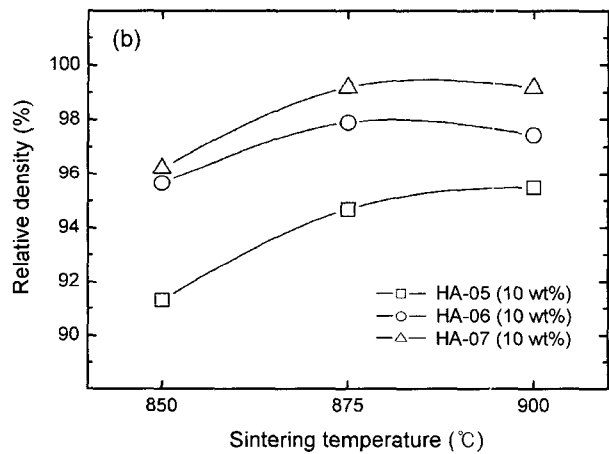
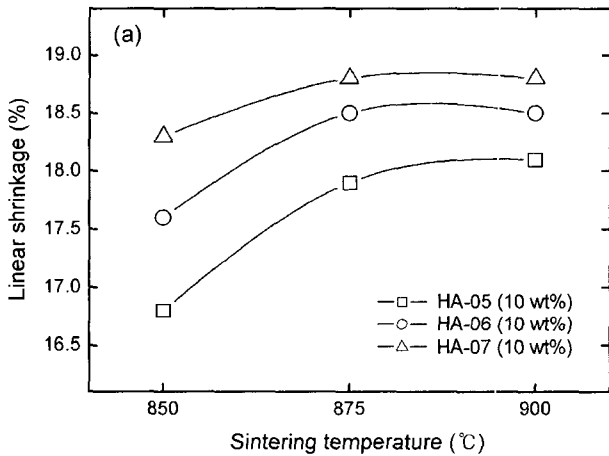
**Table 3.** Sintering and Dielectric Properties of the BaTiO<sub>3</sub> Ceramics with Glass Additions

Code	Glass		Firing temperature [°C]	Dielectric constant [1 MHz]	Dielectric loss [%] [1 MHz]
	wt [%]				
HA-01	10		925	570	2.3
HA-02	10		900	520	2.2
HA-03	5		925	990	3.1
HA-03	10		900	510	2.2
HA-07	10		875	590	2.9
HA-07	10		900	580	2.9
HA-07	15		850	270	2.9
HA-07	15		875	280	2.7

BCTZ계 조성((Ba<sub>0.95</sub>Ca<sub>0.05</sub>)(Ti<sub>0.88</sub>Zr<sub>0.12</sub>)O<sub>3</sub>)을 모재료로 선정하였다. BCTZ계 세라믹스의 경우 소결온도가 1260°C 정도로 BaTiO<sub>3</sub> 세라믹스에 비해 다소 낮고, 유전율이 BaTiO<sub>3</sub> 세라믹스에 비하여 다소 높은 3000 대역의 특성을 가지

고 있으므로 저온소결특성 및 유전특성의 개선이 기대된다.

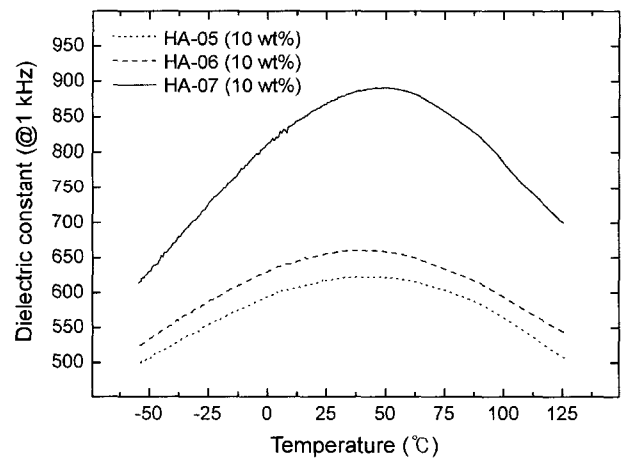
Fig. 4는 BCTZ계 세라믹스에 대하여 저온소결능이 우수한 HA-시리즈 유리 프린트를 10 wt% 일정량 첨가 혼합한 후 850~900°C의 온도에서 소결한 소결체의 수축률과 상대밀도를 나타내었다. 저온소결능이 매우 우수한 HA-07 유리 프린트를 10 wt% 첨가된 경우 875°C의 소결온도에서 수축률 18.7%, 상대밀도 99% 이상의 치밀화 정도를 얻을 수 있었다. Fig. 5는 1 KHz에서 측정된 HA-시리즈 유리 프린트와 함께 저온 소성된 BCTZ계 세라믹스의 온도에 따른 유전특성을 나타내었다. 전체적인 온도특성의 경향성은 비슷하게 나타났으나 유리 프린트의 조성 변동에 따라 유전율의 절대 값은 큰 차이를 나타내고 있다. 이러한 유전율의 차이는 대체적으로 Fig. 4와 비교하였을 때, 수축률과 소결밀도가 높을수록 유전율이 증가하는 경향성을 나타내므로, 치밀화가 유전특성에 가장 큰 영향을 미치는 것으로 판단된다. Table 4에는 BCTZ계 고유전율 내장 캐패시터 조성의 소결특성 및 전기적 특성을 정리하여 나타내었다. 대부분의 조성물들은 875°C의 소결온도에서 상대밀도 95% 이상, 기공률 0.5% 이하의 소결특성을



**Fig. 4.** Sintering properties of (Ba,Ca)(Ti,Zr)O<sub>3</sub> ceramics with 10 wt% of glass addition : (a) linear shrinkage and (b) relative density.

**Table 4.** Sintering and Dielectric Properties of the (Ba,Ca)(Ti,Zr)O<sub>3</sub> Ceramics with Glass Additions

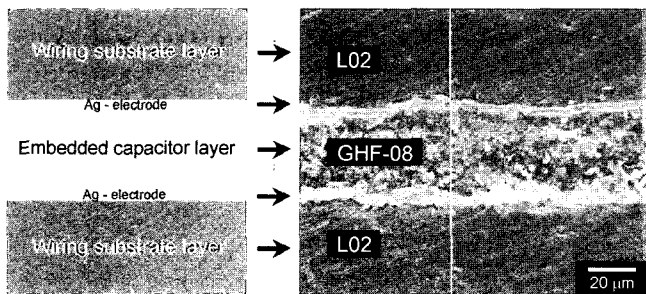
Code	Glass		Firing temperature [°C]	Dielectric constant [1 MHz]	Dielectric loss [%] [1 MHz]
	wt [%]				
HA-01	15		875	440	2.2
HA-02	10		875	660	2.1
HA-03	15		875	520	1.8
HA-07	10		875	720	2.3
HA-07	13		875	600	2.2
HA-07	15		875	490	1.9



**Fig. 5.** Temperature dependence of the dielectric constants and dielectric loss in (Ba,Ca)(Ti,Zr)O<sub>3</sub> ceramics with glass composition.

**Table 5.** Sintering and Dielectric Properties of the Sintered Laminate of (Ba,Ca)(Ti,Zr)O<sub>3</sub> Ceramics with a Glass Frits

Ceramics		Glass		Firing temp	Open porosity	Relative density	Dielectric constant	Dielectric loss (%)
Type	wt%	Code	wt%	[°C]	[%]	[%]	[1 MHz]	[1 MHz]
BT	95	HA-03	5	925	0.53	96.6	950	1.8
BT	93	HA-07	7	900	0.42	96.8	750	2.6
BCTZ	87	HA-03	10	875	0.32	95.2	490	1.9
BCTZ	90	HA-07	10	875	0.42	96.3	720	2.3

**Fig. 6.** A SEM image of the interface between the low-k layer and the embedded capacitor.

나타내고 있으며, 500 이상의 유전율, 2% 내외의 유전손실 값을 나타내는 BCTZ계 고유전율 내장 캐패시터 조성물을 다수 합성하였다.

저온 소결 및 유전특성이 우수한 BT, BCTZ계 조성물들에 대해 비히클 시스템(B73225, Ferro, USA)과 일정 비율로 혼합한 후 테이프 캐스팅하여 후막화 하였다. Table 5에는 후막 적층체의 소결 특성 및 전기적 특성을 정리하여 나타내었다. 1 MHz에서 측정된 대부분 시편들은 95% 이상의 상대밀도, 500 이상의 유전율, 3% 미만의 유전손실 값을 나타내고 있으며 LTCC 모듈의 내장 캐패시터로 적용가능함을 볼 수 있다. 이러한 조성에 대하여 비히클 시스템을 적용하여 슬러리화 한 후 자치 개발한 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>와 유리 프릿으로 구성된 저유전율 배선기판 ( $\epsilon_r$ : 6.5, DF: <0.01%) 사이에 50  $\mu$ m 이하의 두께로 프린팅하여 함께 적층하였다. Fig. 6에는 875°C의 온도에서 소결한 시편의 파단면 미세구조 사진을 나타내었다. 이종소재간 박리나 험이 없이 양호한 접합상태를 나타내고 있음을 알 수 있다. 또한, 유리 프릿이 첨가된 모재료와 Ag 전극과의 반응성이 없는 것을 판단된다.

#### 4. 결 론

BaTiO<sub>3</sub>를 모재료로 하는 경우 HA-03 유리 첨가제를 5 wt% 첨가하였을 때 925°C에서 95% 정도의 상대밀도 값을 나타내었으며, 이 경우 유전율은 990, 유전손실은 3.1%의 유전특성을 나타내었다. 그러나 HA-03 유리 첨가제의 첨가량이 5 wt% 이상인 경우에는 소결 하한 온도는 저온

부로 이동하였으나 유전율이 500 이하로 크게 낮아지는 결과를 보였다. 유전율이 BaTiO<sub>3</sub> 세라믹스에 비하여 다소 높은 3000 대역의 특성을 가지는 (Ba,Ca)(Ti,Zr)O<sub>3</sub>계 세라믹스를 모재료로 하여 HA-시리즈 유리 첨가제를 10 wt% 일정량 첨가 혼합한 후 850~900°C의 온도에서 소결한 결과는 대부분의 조성물들은 875°C의 소결온도에서 상대밀도 95% 이상, 기공율 0.5% 이하의 소결특성을 나타내고 있으며, HA-07 유리 프릿을 저온소결 첨가제로 사용하는 경우 700 이상의 유전율, 2% 내외의 유전손실 값을 가지는 것으로 측정되었다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 21세기 프론티어연구개발사업의 일환인 ‘차세대소재성형기술개발사업단’의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

#### REFERENCES

1. R. R. Tummala, "Ceramic and Glass-Ceramics Packaging in the 1990s," *J. Am. Ceram. Soc.*, **74** [5] 895-908 (1991).
2. S. D. Park, H. G. Kang, Y. H. Park, and J. D. Mun, "LTCC and LTCC-M Technologies for Multichip Module," *J. Microelectronic & Packaging Soc.*, **6** [3] 25-35 (1999).
3. H. T. Sawhill, "Materials Compatibility and Cofiring Aspects of Shrinkage Control in Low-Temperature Cofired-Ceramic Packages," *Ceram. Tran.*, **26** 307-19 (1987).
4. I. H. Park, K. Y. Kim, and B. H. Kim, "Effects of CaTiO<sub>3</sub> Additions on Microwave Dielectric Properties in BaWO<sub>4</sub>-Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> Ceramics," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **38** [3] 280-86 (2001).
5. D. W. Kim and J. R. Kim, "Microwave Dielectric Properties of Low-Fired Ba<sub>5</sub>Nb<sub>4</sub>O<sub>15</sub>," *J. Am. Ceram. Soc.*, **85** [11] 2759-62 (2002).
6. W. H. Jung, J. H. Sohn, Y. Inaguma, and M. Itoh, "Ba<sub>5</sub>Nb<sub>4</sub>O<sub>15</sub> Ceramics with Temperature-Stable High Dielectric Constant and Low Microwave Loss," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **2** [2] 111-13 (1996).
7. D. C. Woo and H. Y. Lee, "Effect of Dopants on the Microwave Dielectric Properties of (1-x)MgTiO<sub>3</sub>-xCaTiO<sub>3</sub> Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77** [9] 2485-88 (1994).
8. T. Takahiro, S. F. Wang, S. Yoshikawa, S. J. Jang, and R. E.

- Newnham, "Effect of Glass Additions on (Zr,Sn)TiO<sub>4</sub> for Microwave Application," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36** 6129-32 (1997).
9. G. P. Srivastava, M. Vastav, and G. S. Stagi, "Magnetic Relaxation in Mn-Doped Barium Nanotitanate : A Microwave Dielectric Resonator Material," *J. Mater. Sci.*, **14** 1397-99 (1995).
10. N. Kurata and M. Kuwabara, "Semiconducting-Insulating Transition for Highly Donor-Doped Barium Titanate Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **76** [6] 1605-08 (1993).
11. F. Batllo, E. Duverger, J. Jules, J. Niepce, B. Jannot, and M. Maglione, "Dielectric and E. P. R Studies of Mn-Doped Barium Titanate," *Ferroelectrics*, **109** 113-18 (1990).
12. G. Arlt, D. Hennings, and G. D. With, "Dielectric Properties of Fine-Grained Barium Titanate Ceramics," *J. Appl. Phys.*, **58** [4] 1619-25 (1985).