

Sr(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> - Ba(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> 고용체의 유전성  
Dielectric Properties of Sr(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> - Ba(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> Solid Solution

윤기현, 정범준, 김용수\*

연세대학교 요업공학과

Ki Hyun Yoon,  
Bum Jun Jung, and  
Eung Soo Kim\*

Department of  
Ceramic Engineering,  
Yonsei University

ABSTRACT

The dielectric properties of complex perovskite compound Sr(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> (SMN) - Ba(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> (BMN) system were investigated as a function of composition and sintering time. In the case of the specimens sintered at 1650 °C for same time, dielectric constant and dielectric loss were increased with increasing the mole ratio of BMN. The maximum temperature coefficient of resonant frequency was found in composition Ba(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>. In the case of the specimens with same composition, dielectric constant and dielectric loss were slightly increased with increasing the sintering time. As the sintering time was increased, the temperature coefficient of resonant frequency for SMN was slightly increased, however, that of BMN and (Sr<sub>1/2</sub>Ba<sub>1/2</sub>)(Mg<sub>1/3</sub>Ta<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> was largely depended on sintering time.

I. 서 론

최근 통신정보량이 증대되고 광역통신이 요구됨에 따라 마이크로파대의 통신시스템이 현저하게 발달되고있으며 그역한 시스템에 사용되는 기기의 소형화, 가격의 저렴화가 요구되어 유전체재료들이 용한 공진기의 응용이 증가되고 있다. 유전체공진기의 기본원리는 1939년 Richtmyer<sup>1)</sup>에 의해 제안되었으며 그후 Okaya, Cohn 등이 TiO<sub>2</sub>, SrTiO<sub>3</sub> 를 이용하여 소형이면서 높은 Q 값을 갖는 유전체공진기를 제작하여 그 가능성이 제시되었으나 공명주파수의 온도계수가 너무커서 실제응용에는 곤란하였다. 유전체공진기의 요구조건을 만족하는 물질로 복합페롭스카이트 화합물이 최근 보고되어 복합페롭스카이트 화합물과 그 고용체에 관한 연구가 활발히 진행되고 있으나 유전체공진기의 요구조건과 조성, 소결조건, 미세구조등과의 상관관계에 대한 자세한 연구가 요구된다. 본 연구에서는 Sr(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> (SMN) - Ba(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> (BMN) 계의 조성변화와 소결조건변화에 대한 유전특성을 고찰하고자 한다.

II. 실험

본 실험에서는 특급시약 BaCO<sub>3</sub>, MgO, Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>,

SrCO<sub>3</sub> 를 사용하여 Table 1 에 나타낸 조성으로 평방하여 24시간 혼합하여 건조한후 1100°C 에서 15시간 하소하였다. 하소한 시료는 재분쇄하여 건조한 후 1500 kg/cm<sup>2</sup> 의 압력으로 동압성형하여 성형된 시편을 1650°C 에서 1시간 부터 12시간 까지 소결시간을 변화하며 소결하였다.

소결시편의 결정구조는 x-선 분석으로 조사하였고 최소자승법으로 격자상수를 결정하였다. 소결밀도는 ASTM C373-72 에 따라 측정하였고 미세구조는 1100°C-1200°C 에서 5-10분 thermal etching 하여 금속현미경으로 관찰하였으며 선팅장계수는 thermomechanical analyzer 을 이용하여 측정하였다. 소결시편의 유전특성은 Impedance analyzer 을 이용하여 100 kHz에서 25°C 부터 120°C 의 온도범위에서 capacitance를 측정하여 유전상수와 capacitance의 온도계수(TCC)를 계산하였고 TCC, 유전상수의 온도계수(TCK), 선팅장계수(TEC)와 공명주파수의 온도계수(TCF)는 TCC = TCK + TEC ; TCF = -(TEC + 1/2TCK)와 같은 관계를<sup>2),3)</sup> 갖고 있으므로 TCC 와 TEC 를 이용하여 TCF 를 구하였다.

### III. 결과 및 고찰

Galasso등<sup>4)</sup>이 보고 한바에 따르면 육방정의 페롭스카이트형인 SMN, BMN에서 Mg 와 Nb 는 1 : 2 규칙배열을 하여 격자상수의 비  $a/a$  는  $\sqrt{3/2}$  (=1.2247) 보다 큰 값을 갖게된다. Fig.1에서 알수있듯이 소결시간이 동일한 경우에는 Sr 과 Ba 의 이온반경 차이 때문에 Ba의 첨가량이 증가할수록 격자상수가 증가하여 격자상수의 비  $a/a$  는 증가하고 있으며 조성이 동일한 경우에는 소결시간이 증가함에 따라 격자상수의 비  $a/a$  는 다소증가하여 BMN 의 물비가 증가하고, 소결시간이 증가됨에 따라 보다 더 규칙적인 구조를 나타냄을 알수있다.

Fig.2 는 소결시간변화에 대한 각조성의 밀도변화를 나타낸 것으로 SMN 보다 이온밀도가 큰 BMN 의 물비가 증가됨에 따라 밀도는 증가하였고 동일조성의 경우 소결시간이 증가됨에 따라 밀도가 증가되었는데 이는 Fig.3 의 미세구조 사진에서도 확인할 수 있듯이 소결시간이 증가됨에 따라 결정립이 성장하였기 때문이다. 소결시간 변화에 따른 미세구조 변화는 Fig.3 와 같으며 SMN의 물비가 증가됨에

따라, 소결시간이 증가함에 따라 결정립의 크기는 증가되었다. Fig.4 는 1650°C 에서 소결한 시편의 상은, 100kHz에서의 유전상수와 유전손실변화를 나타낸 것이다. 동일한 소결시간에서는 SMN 보다 유전상수가 큰 BMN 의 물비가 증가함에 따라 유전상수와 유전손실은 증가하였고 동일조성의 경우에는 소결시간이 증가함에 따라 Fig.2의 밀도가 증가하므로 유전상수는 증가하였다. 1650°C 에서 1시간과 12시간 소결한 시편의 capacitance 의 온도의존성은 Fig.5 와 같다. 각시편에 대한 capacitance의 온도계수는 직선의 기울기이며, SMN 은 양의 TCC 를 갖지만 BMN 은 음의 TCC 를 갖는다. 소결시간이 증가함에 따라 양의 TCC 를 갖는 SMN 은 온도의존성이 작아진 반면 음의 TCC 를 갖는 BMN 은 온도의존성이 크게 나타났다. Fig.6은 1650°C 에서 소결시간 변화에 대한 각조성의 TCC, TEC, TCF 변화를 나타낸 것이다. SMN 의 경우 TCC 와 TEC 는 다소 감소하여 TCF 의 변화는 작은 반면 BMN 과 A-2 의 경우 TCF 는 크게 변화되었는데 이는 Fig.5 에서 알 수 있듯이 BMN 과 A-2 의 TCF 가 소결조건에 크게 의존하기 때문이다.

### IV. 결 론

- (1) 1650°C 의 모든 소결시간에서 Ba(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> 의 물비가 증가함에 따라 유전상수와 유전손실은 증가하였고 공명주파수의 온도계수는 Ba(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> 에서 최대가 되었다.
- (2) Sr(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-Ba(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> 계 각 조성은 1650°C 에서 소결시간이 증가함에 따라 유전상수, 유전손실과 결정립의 크기는 증가하였으며 Ba(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> 와 (Sr<sub>1/2</sub>Ba<sub>1/2</sub>)(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub> 의 공명주파수의 온도계수는 소결시간에 크게 의존한다.

### REFERENCE

1. R.D.Richtmyer, J.Appl.Phys., 10, 391 (1939)
2. H.M.O'Bryan, J.Thomson, and J.K. Plourde, J.Am.Ceram.Soc., 57,450 (1974)
3. M.Onoda, J.Kuwata, K.Kaneta, K.Toyama and S.Nomura, Jap.J.Appl.Phys.

21, 1707 (1982)  
 4. F. Galasso and J. Pyle, J. Phys. Chem.,  
 67, 1561 (1963)

Table 1 The composition of the specimens.

Specimen No.	Composition
CPN	$\text{Sr}(\text{Mg}_{1/4}\text{Nb}_{3/4})\text{O}_3$
A 1	$(\text{Sr}_{0.9}\text{Ba}_{0.1})(\text{Mg}_{0.9}\text{Nb}_{0.1})\text{O}_3$
A 2	$(\text{Sr}_{0.8}\text{Ba}_{0.2})(\text{Mg}_{0.8}\text{Nb}_{0.2})\text{O}_3$
A 3	$(\text{Sr}_{0.7}\text{Ba}_{0.3})(\text{Mg}_{0.7}\text{Nb}_{0.3})\text{O}_3$
BNF	$\text{Ba}(\text{Mg}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})\text{O}_3$

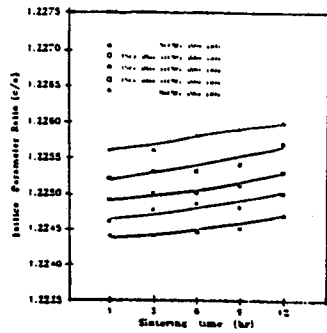


Fig. 1 Lattice parameter ratio as a function of sintering time in  $\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Mg}_{1-y}\text{Nb}_y\text{O}_3$  system.

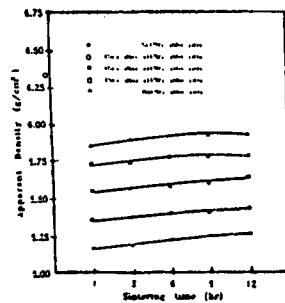


Fig. 2 Apparent density as a function of sintering time in  $\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Mg}_{1-y}\text{Nb}_y\text{O}_3$  system.

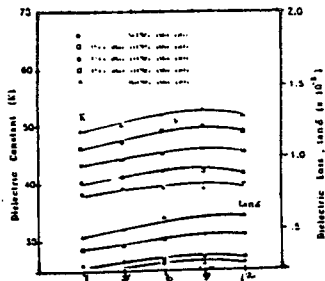


Fig. 3 Dielectric constant and loss as a function of sintering time in  $\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Mg}_{1-y}\text{Nb}_y\text{O}_3$  system ( $f = 100 \text{ kHz}$ ).

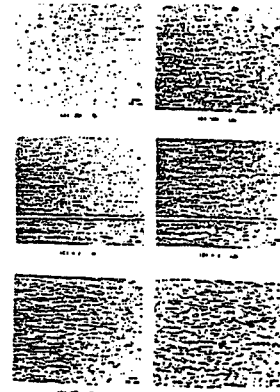


Fig. 4 Photomicrographs of the specimens sintered at 1620 °C for various times.

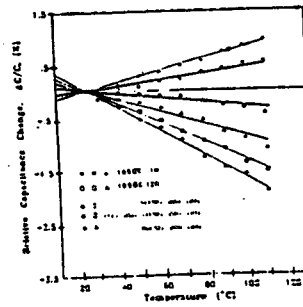


Fig. 5 Relative change in capacitance for the specimens sintered at 1620 °C (C is measured at 25 °C).

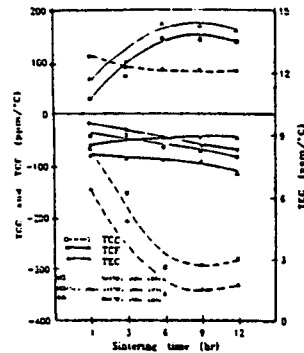


Fig. 6 Temperature coefficients of capacitance (TCC), resonant frequency (TCF) and thermal expansion coefficient (TEC) as a function of sintering time in  $\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Mg}_{1-y}\text{Nb}_y\text{O}_3$  system.