

**하소온도에 따른 (Mg,Sr)TiO<sub>3</sub> 세라믹의 구조적 특성****Structural Properties of (Mg,Sr)TiO<sub>3</sub> Ceramics  
with Calcining Temperature**

최의선\*, 이문기\*, 류기원\*\*, 이영희\*

( Choi Eui-Sun, Lee Moon-Kee, Ryu Ki-Won, Lee Young-Hie )

**Abstract**

The Mg<sub>(1-x)</sub>Sr<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub>(x=0.1,0.2,0.3) ceramics were prepared by the conventional mixed oxide method. The structural properties were investigated with calcining temperature and composition ratio by XRD and DT-TGA. Increasing the calcining temperature from 800°C to 1000°C, second phase was decreased and average particle size was increased. The SrTiO<sub>3</sub> ceramics of calcined at 1000°C had a structure of polycrystalline perovskite without the secondary phases. The average particle size of the Mg<sub>0.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>TiO<sub>3</sub> ceramics calcined at 1000°C were 0.67 $\mu$ m.

**Key word(중요어구) :** (Mg,Sr)TiO<sub>3</sub>, structural properties(구조적 특성), calcining temperature(하소온도)

**1. 서론**

고도정보화 사회로 급속한 발전에 따라 정보 통신량과 수요의 폭발적 증가와 함께 마이크로파를 이용한 무선통신기, 휴대전화, 개인통신시스템, 위치 추적 시스템 등 이동 및 위성통신 서비스의 발전이 전세계적으로 확산되어 이에 따른 무선시스템의 소자의 소형화 및 경량화가 요구되고 마이크로파 대역(300MHz~300GHz)에서 요구되는 특성에 맞는 다양한 재료의 개발 및 연구가 시급한 실정이다.<sup>1)</sup>

마이크로파 또는 고주파의 송수신 회로나 증폭회

\* : 광운대학교 전자재료공학과

(서울 노원구 월계동 447-1, FAX:(0)-915-8084

E-mail: yhlee@daisy.kwangwoon.ac.kr)

\*\* : 여주대 전자과

로 등은 미약한 고속신호(~120dB)를 사용하기 때문에 기본적으로 적은 손실값, 즉 높은 품질계수를 가져야 한다. 고유전율을 가진 유전체를 사용하면 부품의 소형화는 가능하지만 안테나 이득의 감소와 주파수 대역폭의 감소 등이 수반되어 GPS 안테나로의 이용은 부적절하며 10~20의 저유전율 유전체를 사용하는 것이 일반적이다.

마이크로파 유전체에 대한 연구는 BMT계를 중심으로 하는 복합 페로브스카이트 구조에 대한 많은 연구가 행하여졌다. 페로브스카이트계 화합물의 우수한 고용성에 의하여 다양한 유전율과 품질계수 특성을 갖는 재료들이 개발되었으나 저유전율(10~20)을 갖는 재료에 대한 연구는 매우 미약한 실정이다. 저유전율 재료로는 크게 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>계와 MgTiO<sub>3</sub>계로 나눌 수 있으며, MgTiO<sub>3</sub> 세라믹은 ilmenite 구조를

나타내어 기존의 페로브스카이트계를 고용하지 못하는 것으로 보고되어있다.<sup>2)</sup>

따라서 본 연구에서는 MgTiO<sub>3</sub> 세라믹에 SrTiO<sub>3</sub> 세라믹을 합성하여 하소온도에 따른 Mg<sub>(1-x)</sub>Sr<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub> (x=0.1,0.2,0.3) 세라믹의 구조적 특성을 조사하였다.

## 2. 실험

본 연구에서는 MgTiO<sub>3</sub>와 SrTiO<sub>3</sub>의 고용체를 제조하기 위하여 시편의 조성을 Mg<sub>(1-x)</sub>Sr<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub> (x=0.1, 0.2, 0.3)으로 선택한 후, 일반 소성법으로 시편을 제작하였다. 출발원료는 MgO, TiO<sub>2</sub>, SrCO<sub>3</sub> (순도 99.9% 이상)를 사용하였다. 먼저 MgO와 TiO<sub>2</sub>를 각각 질량에 따른 몰비로 1:1의 비율로 혼합하였으며, SrTiO<sub>3</sub>를 제조하기 위하여 SrCO<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub>를 등몰비로 혼합하였다. 혼합하는 과정은 각 1:1로 평량한 후, 아세톤을 분산매로하여 지르코니아볼로 24시간 동안 각각 혼합분쇄 하였다. 혼합분쇄한 MgTiO<sub>3</sub>, SrTiO<sub>3</sub>를 각각 100℃ 전기오븐에서 24시간 동안 건조하였으며, 조성식에 따라 평량한 후 각각 알루미늄 도가니에 넣어 800~1000℃에서 2시간 동안 하소 하였다. 하소시 전기로의 온도상승율은 300℃/hr로 하였다. 하소한 Mg<sub>(1-x)</sub>Sr<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub> 분말을 원통형 금형(φ=20mm)에 넣고 1000kg/cm<sup>2</sup>의 압력을 가해 성형을 하고, 성형한 시료를 1300~1600℃에서 2시간 동안 소결하였다. 이상의 제조과정은 그림 1에 나타내었다.

혼합분쇄된 시료의 가열과정 중에서 발생하는 물리, 화학적 변화는 시차열분석(DTA) 및 열중량분석(TGA)을 통해 관찰하였다. 또한, 하소조건 및 조성 변화에 따른 결정구조의 변화 및 고용체 형성과정 등을 관찰하기 위하여 X-선 회절분석을 하였으며, 스텝폭과 주사속도는 각각 0.05deg., 10deg/min.로 하였다.

## 3. 결과 및 고찰

MgTiO<sub>3</sub>와 SrTiO<sub>3</sub>의 분말의 온도에 따른 물리, 화학적 변화 및 고용체 형성과정을 관찰하고자 25~1400[℃]의 범위에서 시차 열분석 및 열중량 분석을 하였으며, 그 결과를 그림 2와 3에 나타내었다. MgTiO<sub>3</sub>의 경우 322.85℃에서 흡열피크가 나타났으며 이는 휘발성 불순물 및 불밀과정에서 혼합

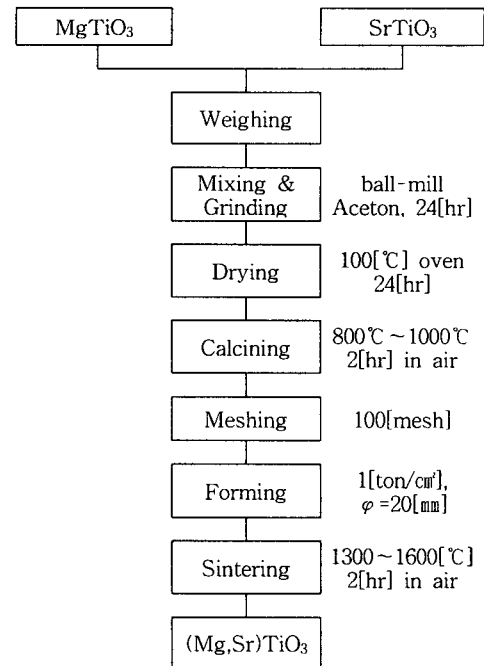


그림 1. (Mg,Sr)TiO<sub>3</sub> 세라믹스의 제조과정

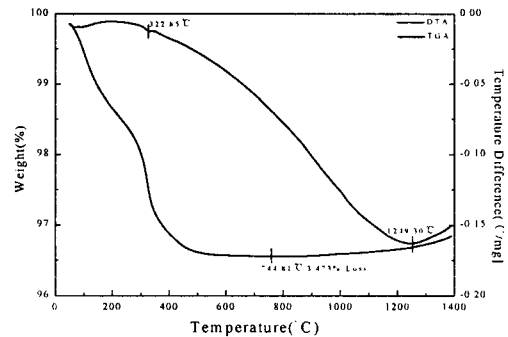


그림 2. MgTiO<sub>3</sub> 분말의 시차열분석 및 열중량분석

된 유기물의 연소에 의하여 발생한 것으로 사료된다. 전 온도 범위에 걸쳐 중량의 큰 변화는 발생하지 않았으며, 744.81℃까지 3.473%의 중량감소가 발생하였다. 1249.30℃ 이상의 온도에서 발열반응이 관찰되어 재결정화 및 결정립의 성장이 일어나는 것으로 생각된다. SrTiO<sub>3</sub>의 경우 800~1000℃의 온도범위에서 급격한 중량감소가 발생하였으며, 이와 같은 결과는 시료자체에 포함된 CO<sub>2</sub>의 휘발에 의한 것으로 사료되며, 1005.74℃까지 20.77%의 중량감소가 발생하였다. 따라서 SrTiO<sub>3</sub> 세라믹의 하소 온도는 잔존 유기물과 CO<sub>2</sub>의 휘발이 완료되는 1000℃로

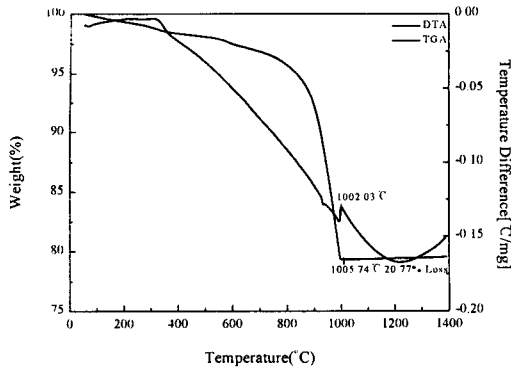


그림 3. SrTiO<sub>3</sub> 분말의 시차열분석 및 열중량 분석

사료된다. 1200°C 이후에서 발열반응이 나타나 이후에 SrTiO<sub>3</sub>상의 형성 및 결정화가 진행되는 것으로 사료된다.

하소온도에 따른 MgTiO<sub>3</sub> 세라믹의 X-선 회절분석 결과를 그림 4에 나타내었다. 800°C 이하의 하소온도에서 미반응한 MgO 및 TiO<sub>2</sub>와 이차상의 회절피크가 관찰되었으며, 800°C 이상의 하소온도에서 MgTiO<sub>3</sub>상의 회절피크가 나타나 DT-TGA분석 결과와 일치하였다. 하소온도 증가에 따라 미반응 물질 및 이차상이 감소하였으며, MgTiO<sub>3</sub> 회절피크의 세기의 증가와 FWHM의 감소로 결정화가 진행되는 것이 관찰되었다. DT-TGA와 X-선 회절분석 결과로부터 MgTiO<sub>3</sub> 세라믹의 적정하소 온도를 1000°C로 결정하였다.

그림 5는 800~1100°C에서 하소한 SrTiO<sub>3</sub> 세라믹의 X-선 회절분석 결과이다. 900°C 이후의 하소온도에서 SrTiO<sub>3</sub>상의 형성을 확인하였으며, 1000°C에서 이차상이 없는 다결정 페로브스카이트 구조를 나타내었다. 따라서, SrTiO<sub>3</sub> 세라믹의 적정하소 온도를 1000°C로 결정하였다.

하소온도에 따른 Mg<sub>(1-x)</sub>Sr<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub> 세라믹의 입자 크기를 입도 분석기를 사용하여 조사하였으며 그 결과를 그림 6에 나타내었다. 90%이상의 입자는 0.2~1μm에 분포하였으며 하소온도의 상승에 따라 평균크기가 증가하였으며 이는 높은 온도에서의 열화학적 반응에 의해 고용체의 형성과 결합력의 증가에 따라 입자의 크기가 증가하는 것으로 사료된다. 1000°C에서 하소한 Mg<sub>(1-x)</sub>Sr<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub> 세라믹의 평균입자 크기는 0.67μm 였다.

그림 7은 Mg<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>TiO<sub>3</sub> 분말의 X-선 회절분석 결과이다. 800°C의 하소온도에서는 미반응한 SrCO<sub>3</sub>

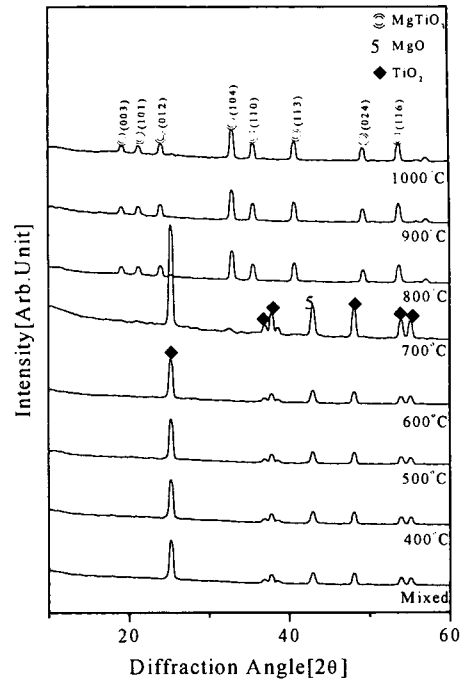


그림 4. 하소온도를 변화시킨 MgTiO<sub>3</sub> 분말의 X-선 회절모양

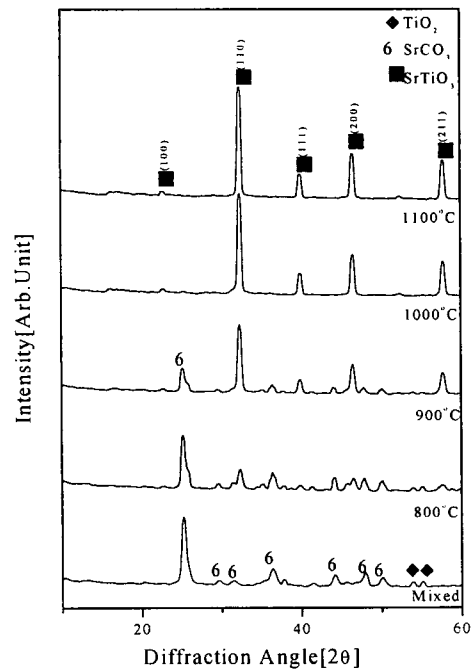


그림 5. 하소온도를 변화시킨 SrTiO<sub>3</sub> 분말의 X-선 회절모양

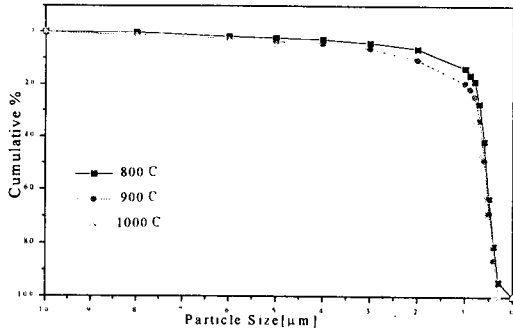


그림 6 하소온도에 따른  $Mg_{0.9}Sr_{0.1}TiO_3$  세라믹의 입도분포

와 이차상인  $MgTi_2O_5$ 가 관찰되었으며 온도 증가에 따라 미반응상 및 이차상은 감소하였다. 800°C에서 분리되어 나타난  $32.8^\circ$  부근의  $MgTiO_3$  (104)면과  $32.4^\circ$  부근의  $SrTiO_3$ (110)면은 하소온도 증가에 따라 하나의 피크로 합쳐져 구분이 불가능하였다. 그러나 a축 5.058Å(c축 5.139Å)인 육방정의  $MgTiO_3$ 와 a축이 3.908Å인 입방정의  $SrTiO_3$ 와의 고용에 의한 결과는 아니며, 두 상의 공존에 의한 것으로 사료된다.<sup>3),4)</sup>

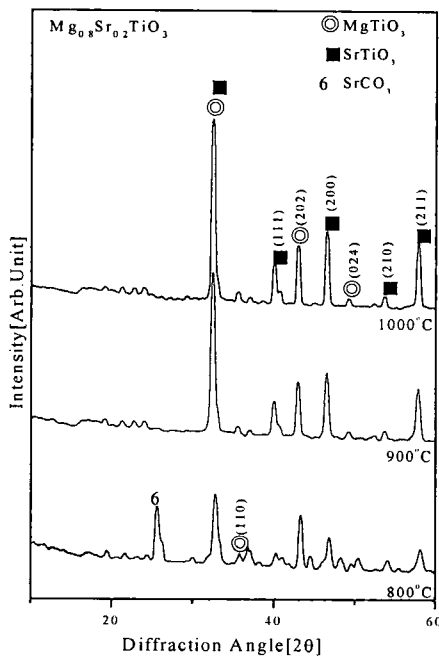


그림 7. 하소온도를 변화시킨  $Mg_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$  분말의 X-선 회절모양

#### 4. 결 론

본 연구에서는  $MgTiO_3$ 와  $SrTiO_3$  세라믹을 합성하여 하소온도에 따른  $Mg_{(1-x)}Sr_xTiO_3$ ( $x=0.1, 0.2, 0.3$ ) 세라믹의 구조적 특성을 조사하여 다음과 같은 결론을 얻었다

1. DT-TGA와 X-선 회절분석으로부터  $MgTiO_3$ 와  $SrTiO_3$ 의 적정 하소온도는 1000°C였으며,  $SrTiO_3$ 의 경우 1005.74°C에서 20.77%의 중량감소가 발생하였다.
2.  $MgTiO_3$ 는 하소온도 증가에 따라 미반응 물질 및 이차상이 감소하였으며, 육방정의 ilmenite 구조를 나타내었다.
3. 1000°C에서 하소한  $SrTiO_3$ 는 이차상이 없는 다결정 페로브스카이트 구조를 나타내었다.
4. 하소온도의 상승에 따라 입자의 평균크기는 증가하였으며, 1000°C에서 하소한  $Mg_{0.9}Sr_{0.1}TiO_3$  세라믹의 평균입자 크기는 0.67 $\mu m$ 였다.

#### 감사의 글

본 연구는 한국 학술진흥재단의 자유공모과제 연구비 지원에 의해 수행되었으며 이에 감사드립니다. (1998-001-E00553)

#### 참고 문헌

1. N.Ida, "Microwave NDT", Kluwer Academic Publishers, (1990)
2. Y.Kawada and M. Fujimoto, Jpn. J. Appl. Phys. 29, L126 (1990)
3. S.L. Cuffini, V. A. Macagno, R.E. Carbonio, A.Melo, E. Trollund, and J.L. Gautier, J. Solid State Chem. 105, 161 (1993)
4. M. Ceh, D. Kolar and L. Golie, J. Solid State Chem. 68, 68(1987)