

УДК 621.315.5/.061:029.64

К. т. н. В. И. ЧАСНЫК¹, д. т. н. И. П. ФЕСЕНКОУкраина, г. Киев, ¹НИИ «Орион»; ИСМ НАНУ

E-mail: ndiorion@tsua.net

ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ВЫСОКОТЕПЛОПРОВОДНОЙ AlN-КЕРАМИКИ В ДИАПАЗОНЕ ЧАСТОТ 3–93 ГГц

Представлены результаты экспериментальных исследований. Показано, что поведение диэлектрической проницаемости и тангенса угла диэлектрических потерь в исследованном частотном диапазоне обусловлено отсутствием в керамике релаксационных процессов, связанных с ориентационной поляризацией, и слабым влиянием на них ионной и электронной поляризации.

Ключевые слова: керамика, нитрид алюминия, диэлектрическая проницаемость, тангенс угла диэлектрических потерь, релаксационный процесс, поляризация, термостабильность.

В настоящее время преобладающее большинство электронной аппаратуры различного применения — от радиорелейных линий связи для передачи телевизионных программ и телефонных переговоров до бортовой аппаратуры авиационной и ракетной техники — работает в сантиметровом диапазоне (частота от 3 до 30 ГГц) и длинноволновой части миллиметрового (30–100 ГГц) диапазона сверхвысоких частот. Это связано с огромными объемами информации, которые необходимо передавать в масштабе реального времени, т. е. без задержки передачи и обработки ВЧ-сигнала. Именно такую возможность и обеспечивает радиоэлектронная аппаратура СВЧ, работающая в широкой полосе частот — от 3 до 100 ГГц.

Совершенствование и разработка приборов СВЧ-техники, таких как клистроны, магнетроны и лампы бегущей волны, постоянно требует применения все новых материалов, а также металлов и их сплавов, полупроводников и диэлектриков с улучшенными параметрами и характеристиками. Одним из таких диэлектриков с высокой теплопроводностью и термостойкостью, невысокими значениями диэлектрической проницаемости ϵ и диэлектрических потерь $\operatorname{tg}\delta$ является керамика из нитрида алюминия. Исследованиями этого материала, который в настоящее время

применяется в различной аппаратуре радиотехники и СВЧ-приборах, посвящено довольно большое число работ. Зависимости диэлектрических характеристик нитрида алюминия от частоты исследовались в [1–7] в диапазоне 10–10⁸ Гц. Для сантиметрового диапазона СВЧ-волн сведения об ϵ и $\operatorname{tg}\delta$, которые являются важнейшими параметрами, характеризующими потери в диэлектрике, носят отрывочный характер, и их значения указываются зачастую на одной или на двух частотах в диапазоне 1–10 ГГц [1, 2, 4].

Целью настоящей работы являлось экспериментальное исследование диэлектрических характеристик высокотеплопроводной керамики из AlN в диапазоне частот от 3 до 93 ГГц, обобщение результатов и физическое объяснение поведения полученных зависимостей ϵ и $\operatorname{tg}\delta$.

Экспериментальная часть

Образцы высокотеплопроводной керамики из AlN были получены методом свободного спекания в сверхчистом азоте при атмосферном давлении, температуре 1850–1900 °С с выдержкой 1 ч. Химический состав исходных порошков AlN, полученных печным синтезом (ПС) — порошок Донецкого завода химреактивов — и плазмохимическим синтезом (ПХС), приведен в **табл. 1**. Плазмохимический порошок смеси нитрида алюминия и иттрия (AlN+Y)ПХС производства

Таблица 1
Химический состав и размер частиц исходных порошков AlN

Вид исходного порошка	Химический состав, % по массе						Размер частиц, мкм
	N	Al _{общий}	O	Al _{своб}	C	Fe	
ПС	33,3	65,1	0,5	1–3	0,73	0,02	3–20
(AlN+Y)ПХС	32,0	65,3	1,5	1–3	0,25	0,005	0,08

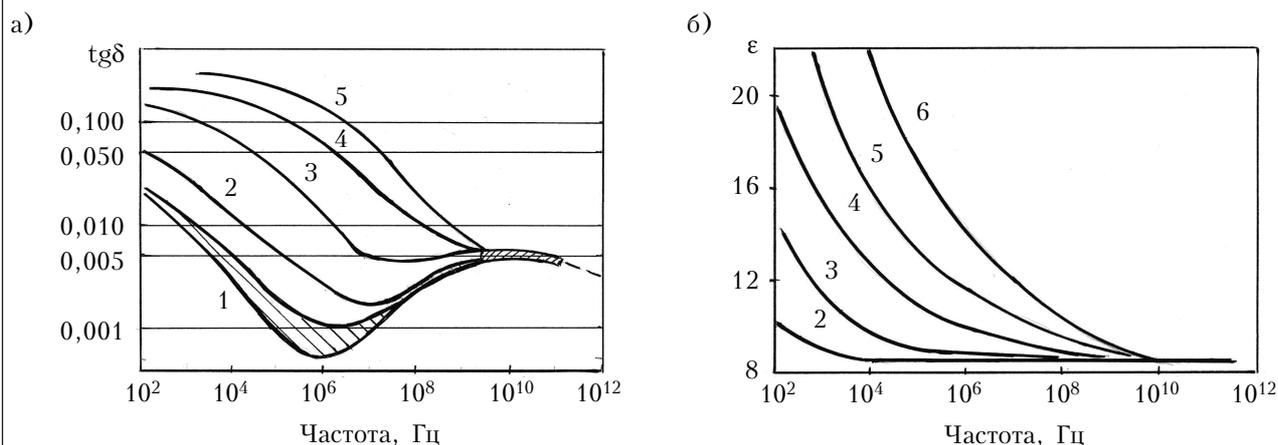


Рис. 1. Зависимость диэлектрических характеристик $\text{tg}\delta$ (а) и ϵ (б) от частоты в AlN-керамике при разной температуре (в °С):
1 – 20–50; 2 – 100; 3 – 200; 4 – 300; 5 – 400; 6 – 500

Института неорганической химии (Латвия, г. Рига) был получен синтезом в низкотемпературной плазме, обеспечивающей ионизацию алюминия в зоне электродуги и получение в ходе синтеза ультрадисперсного порошка с размером частиц менее 0,1 мкм. В качестве активирующей добавки (5% от массы) при спекании порошка ПС использовался оксид иттрия Y_2O_3 (ИТО-И-ОСТ 48-208-81).

В табл. 1 для порошка ПХС указана минимальная концентрация кислорода, т. к. для получения образцов керамики из AlN с высокой теплопроводностью ($\lambda > 90$ Вт/(м·К)) отбирались порошки с самым низким его содержанием. Известно, что на теплопроводность керамики из нитрида алюминия сильнее всего влияют примеси кислорода, которые в спеченном композите рассеивают фононы значительно сильнее, чем другие дефекты структуры и примеси [1, 2, 4, 8]. Основными дефектами, рассеивающими фононы в AlN, являются комплексы $\text{Al}_{0,67}\text{O}$. Так, например, при температуре 100°C коэффициент теплопроводности для керамики AlN, полученной из порошка ПХС с содержанием кислорода 1,5–2,0 мас.%, составляет 90 Вт/(м·К), для керамики, полученной из порошка ПС при 0,2–0,6 мас.% кислорода $\lambda = 120–140$ Вт/(м·К), а при его содержании менее чем 0,1 мас.% $\lambda = 180–200$ Вт/(м·К) [1].

Содержание свободного алюминия $\text{Al}_{\text{своб}}$ в порошках ПС и ПХС почти одинаково и составляет от 1 до 3%. По примесям углерода и железа оба вида порошков близки друг к другу, но для спекания образцов AlN-керамики отбирались порошки ПХС, содержание углерода и железа в которых в 3–4 раза меньше, чем в порошке ПС.

В [2] приведены зависимости ϵ и $\text{tg}\delta$ керамики из AlN от температуры в пределах от 0 до 500°C для ряда фиксированных частот диапазона от 10^2 до 10^7 Гц и для частоты $8,5 \cdot 10^9$ Гц в интервале от 0 до 700°C. На основании этих данных, а также [3, 4, 9] и собственных измерений

в диапазоне частот от 3 до 37 ГГц, на рис. 1 приведены частотные зависимости ϵ и $\text{tg}\delta$ для керамики AlN в диапазоне от 10^2 до 10^{11} Гц. Здесь видно, что при частотах более 10^9 Гц $\text{tg}\delta$ и ϵ приближаются к значениям $\text{tg}\delta = 0,0045–0,005$ и $\epsilon = 8,5$.

Для пояснения поведения ϵ и $\text{tg}\delta$ в исследуемой области частот (10^8 до 10^{11} Гц) необходимо обратиться к теории, объясняющей существующие механизмы поляризуемости диэлектриков в зависимости от частоты [10, 11]. Схема поляризуемости диэлектрика с указанием частот, соответствующих разным механизмам поляризации, из монографии У. Д. Кингери [11] воспроизведена на рис. 2.

Напомним, что существуют четыре механизма поляризуемости диэлектрика: поляризуемость за счет пространственного заряда (или межплоскостная поляризация), отмечена на рис. 2 как $P_{\text{п}}$; ориентационная поляризация – $P_{\text{о}}$ (иногда ее называют дипольной); ионная (или атомная) – $P_{\text{и}}$, электронная – $P_{\text{эл}}$. При частотах больше 10^4 Гц перестает работать механизм поляризуемости за счет пространственного заряда, а в интервале частот от 10^8 до 10^{10} Гц уменьшается и

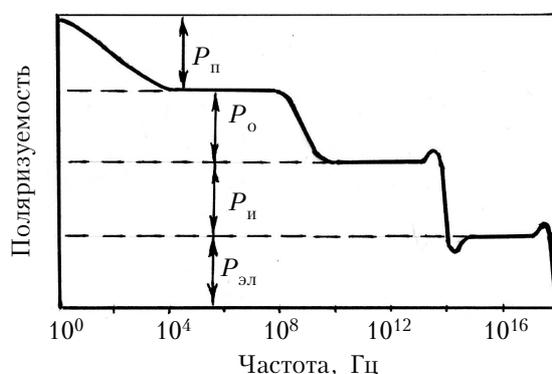


Рис. 2. Схематическая зависимость поляризуемости диэлектрика от частоты за счет разных механизмов поляризации

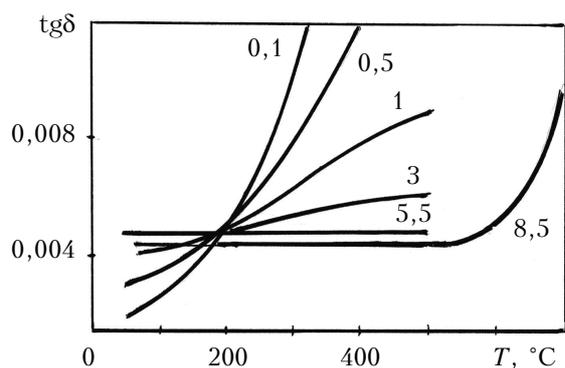


Рис. 3. Зависимость тангенса угла диэлектрических потерь в AlN-керамике от температуры при разных частотах (указаны возле кривых в ГГц)

исчезает механизм ориентационной поляризуемости диэлектрика. Для уточнения значений частоты, при которых перестает работать механизм ориентационной поляризации, на **рис. 3** приведены зависимости $\text{tg}\delta$ от температуры при разных частотах, построенные на основе рис. 1, а и данных из [1, 2].

Из рисунка видно, что с повышением частоты от 10^8 до $3 \cdot 10^9$ Гц диэлектрические потери уменьшаются в несколько раз, а при частотах более $3 \cdot 10^9$ Гц они приближаются к значению $\text{tg}\delta = 0,005$, затем не изменяются в интервале температур от 0 до 500°C и только при $T > 600^\circ\text{C}$ начинается постепенный рост $\text{tg}\delta$ (см. кривую для частоты $8,5 \cdot 10^9$ Гц). Зависимость ϵ от температуры в том же интервале частот ведет себя аналогично, что следует из анализа хода кривых на рис. 1, б.

В **табл. 2** приведены данные по ϵ и $\text{tg}\delta$ в диапазоне частот от 3 до 92,7 ГГц для керамики AlN, изготовленной в основном из порошка ПС. На основании этих данных на **рис. 4** приведены зависимости ϵ и $\text{tg}\delta$ от частоты.

Как видно из рис. 4, в интервале частот от 1 до 37 ГГц значения ϵ и $\text{tg}\delta$ остаются практически постоянными — $\epsilon = 8-8,5$ и $\text{tg}\delta = 0,0045-0,005$. Несколько меньшие значения $\epsilon = 6,7-6,9$ на частотах выше 63,6 ГГц связаны, скорее всего, с неточностью их экспериментального определения в [4]. Для AlN-керамики, спеченной из нанодисперсного порошка ПХС, диэлектрическая проницаемость составляет 7,2–7,3 на

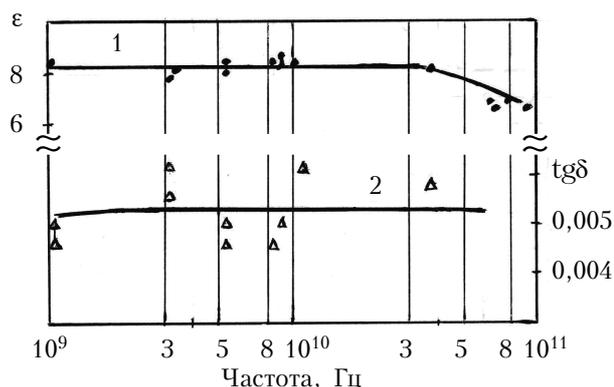


Рис. 4. Зависимость диэлектрических характеристик ϵ (1) и $\text{tg}\delta$ (2) от частоты в AlN-керамике

частоте 3,2 ГГц и 7,46 на частоте 89,6 ГГц [4], а $\text{tg}\delta = 0,0043$ на частоте 3,2 ГГц. Из различия значений ϵ и $\text{tg}\delta$ для AlN-керамики, спеченной из порошка ПС и из порошка ПХС, следует, что основным фактором, влияющим на величину диэлектрических характеристик в керамике из нитрида алюминия являются примеси углерода, железа и связанного алюминия, присутствующие в исходных порошках. Кроме того, образцы отличаются по цвету — те, что получены из нанодисперсного порошка, почти белые, а из порошка ПС — темно-серые или почти черные. Темный же цвет керамики тоже является свидетельством большого количества примесей.

Известно, что у диэлектриков в широком интервале частот значение $\text{tg}\delta$ не зависит от частоты [10], поскольку каждому диэлектрическому веществу соответствует не одно значение времени релаксации τ , а целый ряд, и проявляются они с определенной вероятностью. Это связано с возможностью многочисленных переходов полярных молекул между квантомеханическими разрешенными ориентациями.

В структурном отношении керамика из нитрида алюминия представляет собой изотропную среду, состоящую из разнопорядоченных в пространстве зерен AlN и образованных из них кристаллитов с однонаправленными в пределах этих областей зернами AlN. В небольшом количестве в AlN-керамике присутствуют примеси кислорода, железа, углерода и связанного алюминия, а также граната иттрия $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, образующего-

Таблица 2

Диэлектрические характеристики керамики из нитрида алюминия в диапазоне частот от 3 до 92,7 ГГц

Частота, ГГц	3,0—3,23	5,5	8,5	9,0	10,0	10,5	37,0	63,6	66,4	79,1	92,7
ϵ	7,9—8,1	8,0—8,5	8,5	8,2—8,6	8,5	8,5	8,1	6,86	6,72	6,83	6,7
$\text{tg}\delta$	$(5,6-6,2) \cdot 10^{-3}$	$(4,5-5,0) \cdot 10^{-3}$	0,0045	0,005	—	0,0062	0,0058	—	—	—	—
Источник	*	[1]	[2]	*	[4]	*	*			[4]	

* Данные авторов

ся во время спекания из активирующей добавки Y_2O_3 . Разновероятностные направления отдельных зерен AlN и кристаллитов из них обеспечивают широкий спектр возможных значений времени релаксации τ и соответствующих им частот. Однако в сантиметровом СВЧ-диапазоне волн, особенно при частотах, больших 3 ГГц, релаксационные процессы, связанные с ориентацией структурных образований в керамике, уже не успевают за изменениями электромагнитного поля высокой частоты. Именно поэтому значения ϵ и $\text{tg}\delta$ практически не меняются во всем интервале частот от 3 до 100 ГГц. Такая особенность поведения характеристик диэлектрика AlN в СВЧ-диапазоне сохраняется и при изменении температуры от 0 до 600°C, и поэтому переход от примесной проводимости к собственной в AlN-керамике на частотах от 3 до 100 ГГц наступает при температуре, которая на 400°C выше, чем для частот $10^6 - 10^8$ Гц [3].

Таким образом, проведенные исследования показали, что высокотеплопроводная керамика из нитрида алюминия при частотах более 3 ГГц характеризуется термостабильностью в интервале температур от 0 до 600°C, а для достижения как можно меньших диэлектрических потерь необходимо стремиться к получению порошков исходного сырья из AlN с минимальным количеством примеси углерода, железа и свободного алюминия. В этом случае область применения керамики из AlN в электронике и особенно в приборах СВЧ, работающих в диапазоне 3–100 ГГц, будет намного шире, чем в настоящее время.

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ИСТОЧНИКИ

1. Аветиков В.Г., Бершадская М.Д., Неделько Э. Е. и др. Нитрид алюминия — новый высокотеплопроводный диэлектрик // Электронная техника. Сер. Материалы. — 1984. — Вып. 6 (191). — С. 54–57. [Avetnikov V. G., Bershadskaya M. D., Nedel'ko E. E. i dr. // Elektronnaya tekhnika. Ser. Materialy. 1984. Iss. 6 (191). P. 54]
2. Косолапова Т.Я., Андреева Т.В., Бартницкая Т.С. Неметаллические тугоплавкие соединения. — Москва: Металлургия, 1985. [Kosolapova T.YA., Andreeva T.V., Bartnitskaya T.S. Nemetallicheskie tugoplavkie soedineniya. Moskva: Metallurgiya, 1985]
3. Кабышев А.В., Лопатин В.В. О проводимости алюмонитридной керамики // Известия ВУЗов. Сер. Физика. — 1992. — №7. — С. 122–124. [Kabyshev A.V., Lopatin V.V. // Izvestiya VUZov. Ser. Fizika. 1992. N 7. P. 122]
4. Фесенко И.П. Диэлектрическая керамика с высокой теплопроводностью на основе AlN // Сверхтвердые материалы. — 2001. — №2. — С. 15–20. [Fesenko I.P. // Sverkhтвердые materialy. 2001. N 2. P. 15]
5. Thorp J.S., Evans D., Al-Naief M., Akhtaruzzaman M. The dielectric properties of aluminium nitride substrates for microelectronics packaging // Journal of Materials Science. — 1990. — Vol. 25. — P. 4965–4971.

6. Zulfeqar M., Kumar A. Dielectric Behavior of Hot-Pressed AlN Ceramic: Effect of CaO Additive // J. Electrochem. Soc. — 1989. — Vol. 136, N 4. — P. 1099–1102.

7. Hazelton C., Rice J., Snead L.L., Zinkle S.J. Effect of neutron radiation on the dielectric, mechanical and thermal properties of ceramics for RF transmission windows // Journal of Nuclear Materials. — 1998. — Vol. 253. — P. 190–195.

8. Гнесин Г.Г. Бескислородные керамические материалы. — Киев: Техника, 1987. [Gnesin G.G. Bezkslorodnye keramicheskie materialy. Kiev: Tekhnika, 1987]

9. Кабышев А.В., Лопатин В.В. Влияние активирующих добавок на диэлектрические свойства алюмонитридной керамики // Изв. АН СССР. Сер. Неорганические материалы. — 1990. — Т. 26, №2. — С. 418–422. [Kabyshev A.V., Lopatin V.V. // Izv. AN SSSR. Ser. Neorganicheskie materialy. 1990. Vol. 26, N 2. P. 418]

10. Мирдель Г. Электрофизика. — Москва: Мир, 1972. [Mirdel' G. Elektrofizika. Moskva: Mir, 1972]

11. Кингери У.Д. Введение в керамику. — Москва: Стройиздат, 1967. [Kingeri U.D. Vvedenie v keramiku. Moskva: Stroizdat, 1967]

*Дата поступления рукописи
в редакцию 16.10 2012 г.*

Chasnyk V. I., Fesenko I. P. **Dielectric characteristics of the high heat-conducting AlN-ceramics in the frequency range of 3–93 GHz.**

Keywords: ceramic, aluminum nitride, dielectric constant, dielectric loss tangent, relaxation process, polarization, thermal stability.

The article presents the results of experimental measurements. It is shown that the behavior of the dielectric constant and dielectric loss tangent in the investigated frequency range is due to the lack of relaxation processes in ceramics associated with the orientation polarization and to weak influence of ion and electron polarization.

Ukraine, Kiev, RSI "Orion", IMS of NASU.

Часник В. І., Фесенко І. П. **Діелектричні характеристики високотеплопровідної AlN-кераміки в діапазоні частот 3–93 ГГц.**

Ключові слова: кераміка, нітрид алюмінію, діелектрична проникність, тангенс кута діелектричних втрат, релаксаційний процес, поляризація, термостабільність.

Представлено результати експериментальних досліджень. Показано, що поведінку діелектричної проникності та тангенса кута діелектричних втрат в досліджену частотному діапазоні обумовлено відсутністю в кераміці релаксаційних процесів, пов'язаних з орієнтаційною поляризацією, та слабким впливом на них іонної та електронної поляризації.

Україна, м. Київ, НДІ «Оріон»; ІСМ НАНУ.