

Titania-fused Silica의 유전특성 분석

*김한준, *이래덕, **시대노프, ***한상옥
 *한국표준과학연구원 전자기표준부 전기그룹, **러시아 VNIIM, ***충남대학교 전기공학과

Permittivity Properties of Titania-fused Silica

*Kim Han Jun, *Lee Rae Duk, **Yu.P.Semenov, ***Han Sang Ok
 *Korea Research Institute of Standards and Science, **VNIIM, ***ChungNam National University.

Abstract - The thermal expansion coefficient of the titania-fused silica glass(TiO_2-SiO_2) called KLR-1.1 is known to 0 ± 0.03 ppm/K, while that of normal fused-silica glasses is about $+0.5$ ppm/K at room temperature. To analysis the dielectric properties of the KLR-1.1, the sample with diameter of 30 mm and thickness of 1 mm is covered with gold film. Its relative permittivity and dissipation factor of KLR-1.1 is evaluated to $4.011 \pm 0.012(1\sigma)$ and $(4.86 \pm 0.02) \times 10^{-4}(1\sigma)$ at 1 kHz respectively. The measurement techniques used and results are more discussed in this paper.

이고 있다.

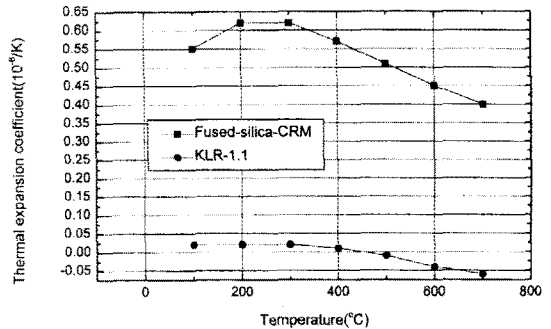


그림 1. KLR-1.1의 열 팽창 계수.

1. 서 론

일반적인 fused silica의 열팽창 계수는 실온에서 약 0.5 ppm/K이다. Quartz glass 제조 시에 SiO_2/TiO_2 의 첨가 비율을 약 92.5/7.5 %로 조절을 하면 5 °C ~ 35 °C에서의 열팽창 계수가 0 ± 0.03 ppm/K로 되는 quartz glass가 만들어진다. 이 재질의 구조 및 annealing 과정에서 파라미터에 따른 재료의 열 팽창 특성에 대한 연구는 이미 미국과 러시아에서 수행되어 있다.⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾ 특히 SiO_2/TiO_2 의 함유비 및 구조에 따른 quartz glass의 특성에 대한 정보는 비교적 잘 연구되어 있다.⁽⁴⁾ KLR-1.1의 사용가능 온도는 800 °C 까지 제한이 되며 최고 annealing 온도는 980 °C이다. 변형되기 시작하는 온도는 1,135 °C, 연화되기 시작하는 온도는 1,400 °C이다. 용융 상태에서 실온으로 조절 없이 냉각할 때 일반적인 quartz glass는 온도차에 의한 스트레스로 인해 파괴되지만 이 물질은 크기의 변화가 극히 적다. 이 물질은 reflective optics, 우주망원경 또는 잠수함 등의 군사적 목적으로 주로 안정된 지지 물로써 이용이 되었으나 실제적으로 이 재질의 전기적 특성을 이용할 수 있는 가능성을 검토하고자 본 논문에서는 KLR-1.1의 열 팽창계수와 유전특성을 RF frequency에서 정밀측정 하였으며, 뛰어난 열 팽창 특성과 분석된 유전 특성을 이용하여 전기재료로서의 사용 용도에 관해서 논의한다.

2.2 유전을 측정용 시료 제작

유전을 측정을 위하여 KLR-1.1 시료는 그림 2 모양과 같이 얇은 disk 형태로 만들어 졌으며 시료 disk의 축 방향을 KLR-1.1의 성장 방향이 되도록 하였다.

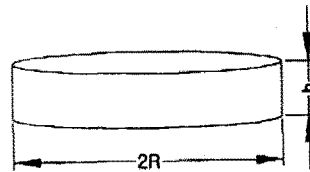


그림 2. Sample disk 모습(2R=30 mm, h=1 mm)

2. 본 론

2.1 KLR-1.1의 열팽창계수 측정

열 팽창계수 측정을 위하여 KLR-1.1의 시료는 6 mm(가로)×6 mm(세로)×57 mm(높이)의 크기로 제작하였으며 현재 한국표준과학연구원에서 열 팽창 계수 CRM으로 사용하고 있는 fused silica와 직접 비교하는 방법으로 측정이 되었다. 시료와 비교된 CRM의 열 팽창 계수는 5×10^{-7} 이었다. 그림에서 알 수 있듯이 fused silica CRM의 열 팽창 계수는 온도에 따라 $0.4 \sim 0.62 \times 10^{-6}/K$ 이지만 KLR-1.1은 $-0.06 \sim +0.02 \times 10^{-6}/K$ 로 측정이 되어 매우 우수한 열 팽창특성을 보

시료 disk의 크기는 직경이 30 mm, 두께가 1 mm로 하였으며 양면 및 측면은 polishing을 하였다. 시료 가공시 cutting 및 polishing 등으로 발생할 수 있는 스트레스를 풀어주기 위하여 아래와 같은 방법으로 annealing을 하였다.

- (1) 20 K/h의 속도로 990 °C까지 가열한다.
- (2) 10 시간동안 990 °C를 유지한다.
- (3) 990 °C에서 850 °C까지 3 K/h속도로 냉각시킨다.
- (4) 850 °C에서 100 °C까지 25 K/h의 속도로 냉각시킨다.
- (5) 실온까지 전기로 내에서 자연냉각 시킨다.

한편 가공된 KLR-1.1의 시료 disk는 전극형성을 위하여 측면을 제외한 양면에 liquid bright gold를 균일하게 painting 한 후 전기로에서 그림 3과 같은 절차에 따라 열처리를 하였다. polishing 된 표면에 한번의 gold painting에 의해서 형성되는 gold film의 두께는 약 0.15 μm로 측정이 되었다. 한편 gold 면에는 lead wire의 납땀이 불가능하기 때문에 lead wire를 연결할 부분에 액체백금을 같은 방법으로 입힘으로서 lead

wire의 welding 문제를 해결하였다.

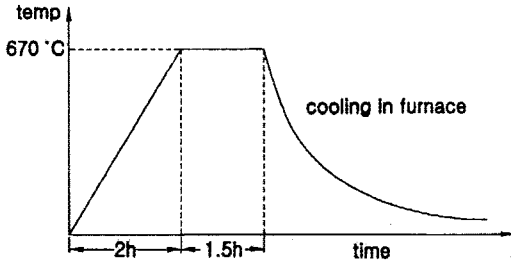


그림 3. 액체 gold의 열처리 profile.

전극이 만들어진 시료를 다른 guard 전극의 처리 없이 그대로 측정 할 경우 disk의 edge 부분에서 전계의 왜곡현상이 나타나서 측정된 값이 실제의 유전율 값보다 작게 나타난다. 따라서 이러한 edge에서의 왜곡현상을 줄이기 위하여 그림 4에서처럼 전극이 입혀진 시료 disk에 lead wire를 납땀한 후 얇은 teflon tape를 이용하여 한 층을 감은 후 얇은 copper tape를 사용하여 그 주위를 그림처럼 밀착이 되도록 감았다. 그림에서는 teflon tape의 두께가 상당히 있는 것으로 그려졌지만 실제로는 약 25 μm 이하로 측정이 되었다. 이 두께로 인한 오차는 계산과정에서 보상이 되어진다.

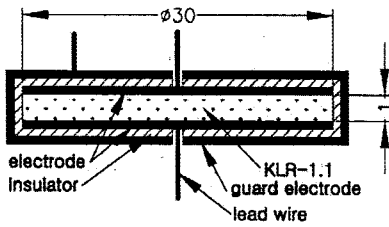


그림 4. 전극 처리한 sample disk 모습.

위와 같이 시료에 전극처리를 하였을 때 그 구조는 그림 2의 disk에서 양면은 H와 L전극이 입혀진 것으로 되고 측면은 guard 전극이 입혀진 모양으로 되어 고체 유전체를 사용한 얇은 원통형의 capacitor 구조가 된다. 이런 구조의 capacitor에서 나타나는 전기용량은

$$C = 4\pi\epsilon_0\epsilon_r R \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{x_{on} \sinh\left(\frac{x_{on}h}{R}\right)} \quad (1)$$

으로 된다. 여기서

x_{on} : n-th positive root of the Bessel function

$$J_0(x) = 0,$$

$J_0(x)$: Bessel function of the zero order.

이다.

2.3 유전율 및 손실율 측정

2.3.1 1 kHz에서의 유전율 및 손실율 측정

위와 같이 제작된 시료를 외부로부터 완전히 정전 차폐된 금속 상자에 넣고서 외부로 BNC 단자를 통하여 연결하였다. 측정에 사용된 측정장비는 1 kHz에서 전기용량 전용 측정기인 AH2500 ultra-precision capacitance measurement bridge (미국 Andeen-Hagerling사 제작)를 사용하였으며 측정 단자 방식은 2-terminal pair 방식을 사용하여 15 V에서 측정하였다. 측정 브리지의 정확도는 3 ppm이하이기 때문에 브리지로부터 오는 불확도는 무시된다. KLR-1.1의 1 kHz에서의 유전율은 4.011 ± 0.012 로 측정이 되었으며

이때의 불확도의 요인은 표 1과 같다.

표 1. 1 kHz에서의 유전율 측정 불확도 분석

항목	불확도(1 σ)
A type	무시(0.000 029)
B type	
1) guard 전극과 시료의 측면사이 gap에 의한 영향	0.003 1
2) 시료 직경의 불균일 및 측정 불확도에 의한 영향	0.001 6
3) 시료 두께의 불균일 및 측정 불확도에 의한 영향	0.011 5
4) 브리지의 측정불확도	무시
RSS	0.012

위에서 분석한 불확도 항목 중에서 1)항 guard 전극과 시료의 측면사이 gap에 의한 영향은 guard 전극과 시료사이의 gap의 불균일성 10 μm 가 시료의 유전율에 미치는 값을 불확도로 계산한 것이며 2)항 시료 직경의 불균일 및 측정 불확도에 의한 영향은 측정에 사용한 마이크로미터의 0점 보상을 제외한 불확도 2 μm 와 제작된 시료 직경의 불 균일성 3 μm 가 시료의 유전율에 미치는 값을 불확도로 계산한 것이다. 또한 3)항은 측정에 사용한 마이크로미터의 0점 보상을 제외한 불확도 2 μm 와 제작된 시료 두께의 불 균일성 3 μm 가 시료의 유전율에 미치는 불확도를 계산한 것이다. 한편 1 kHz에서의 손실계수는 $D = (4.86 \pm 0.02) \times 10^{-4}$ 으로 측정이 되었다.

2.3.2 주파수에 따른 유전율의 변화

주파수에 따른 시료의 유전율의 변화를 측정하기 위하여 HP4275A Multi-frequency LCR meter를 사용하였으며 한국표준과학연구원서 표준유지중인 전기용량표준기를 이용하여 치환법으로 측정함으로써 측정브리지에서의 오차를 가능한 한 줄이도록 하였다.

표 2. 주파수 변화에 따른 유전율의 변화.

주파수(kHz)	유전율
1	4.010 6
10	4.010 1
20	4.009 6
40	4.009 4
100	4.009 1
200	4.008 3
400	4.008 2
1 000	4.008 1
2 000	4.001 5
4 000	3.975 2
10 000	3.739 3

측정은 10 kHz에서 10 MHz까지 하였으며, 주파수 변화에 따라 측정된 유전율의 값은 표 2에 보였다. 표 2의 데이터에서 소수 네 번째 자리는 유효숫자는 아니지만 data 참고를 위하여 기록하였다. 그림 5에는 주파수에 따른 유전율의 변화를 그래프로 표시한 것이다. 그래프를 2차 함수로 least square fitting 한 결과 주파수 변화에 따른 유전율의 변화 $\epsilon(f)$ 는

$$\epsilon(f) = -3.010 \times 10^{-9}f^2 + 3.155 \times 10^{-6}f + 4.009 \quad (2)$$

로 계산이 되었다. Fitting 곡선과 측정데이터 사이의

상관계수(correlation coefficient)는 0.999 77로 계산이 되어 측정값과 fitting값이 잘 일치하고 있음을 보여준다.

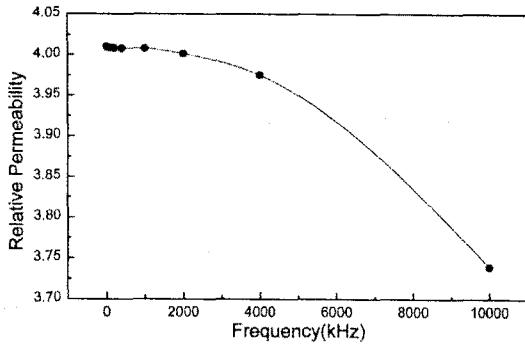


그림 5. 측정 주파수의 변화에 따른 유전율의 변화.

2.3.3 전압에 따른 유전율의 변화

전압에 따른 시료의 유전율의 변화를 측정하기 위하여 GR1621 precision capacitance measurement bridge system(미국 GenRad사 제작)을 사용하였으며 1 kHz, 2-terminal pair 방법으로 측정을 하였다. 이 bridge의 capacitance 측정불확도는 100 ppm이다. 측정은 5 V_{rms}부터 50 V_{rms}까지 5 V 간격으로 증가시키면서 전기용량의 변화를 측정하였다. 전압변화에 따라 측정된 유전율의 값은 표 3에 보였다. 표3의 데이터에서도 표 2에서와 같이 소수 네 번째 자리는 유효숫자는 아니지만 data 참고를 위하여 기록하였다.

표 3. 전압변화에 따른 유전율의 변화.

전압(V _{rms})	유전율
5	4.009 5
10	4.009 7
15	4.010 5
20	4.011 6
25	4.012 8
30	4.014 3
35	4.015 8
40	4.017 8
45	4.019 6
50	4.022 1

그림 6에는 전압의 변화에 따른 유전율의 변화를 그래프로 표시한 것이다. 그래프를 2차 함수로 least square fitting 한 결과 전압변화에 따른 유전율의 변화 $\epsilon(v)$ 는

$$\epsilon(v) = 4.469 \times 10^{-6} v^2 + 3.574 \times 10^{-5} v + 4.009 \quad (3)$$
 으로 계산이 되었다. Fitting 곡선과 측정데이터 사이의 상관계수는 0.999 37로 계산이 되어 측정값과 fitting 값이 잘 일치하고 있음을 보여준다.

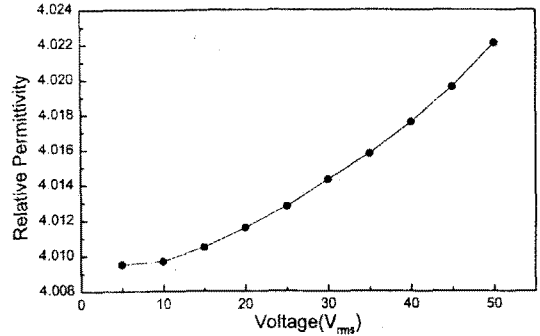


그림 6. 공급전압의 변화에 따른 유전율의 변화.

3. 결 론

SiO₂/TiO₂의 첨가 비율을 약 92.5/7.5 %로 조절 한 quartz glass KLR-1.1의 열 팽창계수는 상온에서 약 0.02 ppm/K로 측정이 되었으며, 유전율은 1 kHz 에서 4.011±0.012(1σ), 손실율은 (4.86±0.02)×10⁻⁴(1σ)으로 측정이 되었다. 한편 주파수 변화에 따른 유전율의 변화는 1 MHz까지는 그 변화가 미미하였으나 1 MHz이상에서는 비교적 급한 감소율을 보였다. 전압변화에 따른 유전율의 변화는 인가전압이 증가하면서 유전율 값이 점차로 증가하는 추세를 보였다. 이제까지는 reflective optics, 우주망원경 또는 잠수함 등의 군사적 목적으로 주로 안정된 지지물로서 이용이 되었으나, 측정된 결과를 이용하여 정밀 전기용량 표준기 제작, 유전율의 표준 기준물, 열 변화가 많은 전기전자 기기 내부에 필요로 하는 안정된 유전체로서 사용할 수 있는 등 전기전자 기기 분야의 많은 곳에서 사용이 기대되어진다.

(참 고 문 헌)

- [1] Novikova S.I., "Thermal expansion of solids. M." . Nauka, p.292, 1974.
- [2] P.C.Schultz, H.T.Smith, "Ultra-low-expansive glasses and their structure in the SiO₂-TiO₂ system, Amorphous materials", J. Wiley & Sons Ltd., p.453-461, 1972.
- [3] Pavlova G.A., "Properties and structure of glasses of SiO₂-TiO₂ system.", Phys. and Chem. of Glasses, 8, 4, p.395-405, 1982.
- [4] Schultz P.C., "Binary titania-silica glasses containing 10 to 20 wt% TiO₂", J. Amer. Ceram. Soc., 59, 5-6, p.214-219, 1976.