



Araştırma Makalesi – Research Article

## Mikrodalga Uygulamaları İçin Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cam/ZrO<sub>2</sub> Seramiklerinin Yoğunlaştırılması ve Karakterizasyonu

### Densification and Characterization of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Glass/ZrO<sub>2</sub> Ceramics for Microwave Applications

Oguzhan Bilaç<sup>1\*</sup>

Geliş / Received: 21/09/2023

Revize / Revised: 24/10/2023

Kabul / Accepted: 31/10/2023

#### ÖZ

Bu çalışmada Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/cam/ZrO<sub>2</sub> kompozitlerin yoğunlaşma davranışı, faz oluşumu, sertliği ve dielektrik özellikleri karakterize edilmiştir. Alümina, CaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> bazlı ticari cam ve nano zirkonyum oksit başlangıç malzemesi olarak kullanılmıştır. ZrO<sub>2</sub>, C55 tozuna (ağırlıkça %45 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+ ağırlıkça %55 cam) farklı miktarlarda (örneğin, ağırlıkça %47 ZrO<sub>2</sub>, ağırlıkça %57 ZrO<sub>2</sub> ve ağırlıkça %68 ZrO<sub>2</sub> içeren C55) ilave edilmiştir. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cam ve Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cam/ZrO<sub>2</sub> numuneleri tek eksenli kuru presleme yöntemiyle üretilmiştir. Optimum yoğunlaştırma sıcaklığı C55 için 800 °C, C55-47Z için 1100 °C, C55-57Z için 1150 °C ve C55-68Z için 1150 °C olduğu tespit edilmiştir. ZrO<sub>2</sub> diğer fazlarla kimyasal olarak reaksiyona girmemiştir ve sıcaklıkla bozunmamıştır. ZrO<sub>2</sub> miktarının artmasıyla sertlik kademeli olarak artmıştır. C55-47Z için 824 HV, C55-57Z için 881 HV ve C55-68Z için 907 HV olduğu saptanmıştır. C55-47Z ve C55-68Z'nin 5 MHz'deki dielektrik sabiti sırasıyla 11.7 ve 16.3 olduğu bulunmuştur. Mikrodalga uygulamaları için, yüksek dielektrik sabiti (5MHz'de 16.3, 1GHz'de 14.79 ve 10GHz'de 14.43) ve düşük dielektrik kaybı (5MHz'de 0.0032, 1GHz'de 0.0045 ve 10 GHz'de 0.0051) nedeniyle C55-68Z numunesi önerilmiştir.

**Anahtar Kelimeler:** Cam/seramik, ZrO<sub>2</sub>, dielektrik özellikler, sinterleme, mikro dalga uygulamaları

#### ABSTRACT

A commercial SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CaO based commercial glass, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, and ZrO<sub>2</sub> were used as initial materials. ZrO<sub>2</sub> was added to the C55 powder (45 wt% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+ 55 wt% glass) at different amounts (e.g., C55 with 47 wt% ZrO<sub>2</sub>, 57 wt% ZrO<sub>2</sub> and 68 wt% ZrO<sub>2</sub>). Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Glass and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Glass/ZrO<sub>2</sub> samples were fabricated by uniaxial dry pressing method. These compositions were determined for specific microwave applications due to their various dielectric constants. Densification behavior, phase formation, hardness, dielectric properties of the samples were characterized in this study. The optimum densification temperature was 800 °C for the C55, 1100 °C for the C55-47Z, 1150 °C for the C55-57Z and 1150 °C for the C55-68Z. X-ray diffraction proved that ZrO<sub>2</sub> neither chemically reacted with other phases nor decomposed with temperature. Hardness slightly increased with increasing amount of ZrO<sub>2</sub>; 824 HV for the C55-47Z, 881 HV for the C55-57Z and 907 HV for C55-68Z. Dielectric constant for the C55-47Z and C55-68Z at 5 MHz were 11.7 and 16.3, respectively. For microwave applications, the C55-68Z sample as proposed due to high dielectric constant (16.3 at 5MHz, 14.79 at 1GHz, 14.43 GHz at 10GHz) and low dielectric loss (0.0032 at 5 MHz, 0.0045 at 1GHz and 0.0051 at 10 GHz).

<sup>1\*</sup>Sorumlu yazar iletişim: [obilac@aybu.edu.tr](mailto:obilac@aybu.edu.tr) (<https://orcid.org/0000-0003-3642-4262>)

Metalurji ve Malzeme Mühendisliği, Ankara Yıldırım Beyazıt Üniversitesi, Ayvalı Mah. 150.Sk Etlık-Keçiören/Keçiören

**Keywords: Glass/ceramic, ZrO<sub>2</sub>, dielectric properties, sintering, microwave application**

## I. GİRİŞ

Mikrodalga dielektrik malzemeler, yazılım radyosu, GPS ve DBS TV dahil olmak üzere karasal ve uydu iletişiminden uydular aracılığıyla çevresel izlemeye kadar geniş bir uygulama yelpazesine önemli bir rol üstlenmiştir [1]. Mevcut ve gelecekteki sistemlerin gereksinimlerini karşılamak için, yeni dielektrik malzemelere veya yeni tasarımlara dayalı geliştirilmiş yeni mikrodalga bileşenlerine ihtiyaç duyulmuştur. Mikrodalga devresinde kullanılacak dielektrik seramiklerin, tüm çevre koşullarında aynı performansta çalışabilmesi için sinyalde düşük gürültü ve düşük güç kaybını tolere etmesi gerekir ve sıcaklık kararlılığını devam ettirmesi için dielektrik kaybının düşük (veya yüksek kalite faktörü= 1/dielektrik kayıp) olması istenmektedir [2,3].

Malzemelerin dielektrik sabiti malzemenin uygulanacağı alanı belirler ve genel olarak dielektrik seramik malzemeler üç sınıfa ayrılır; dielektrik sabiti 25'ten küçük olan seramikler (anten devre elamanlarında kullanılır), dielektrik sabiti 25 ile 50 arasında olan seramikler (uydu iletişiminde ve cep telefonu baz istasyonlarında kullanılır) ve dielektrik sabiti 50'nin üzerinde olan seramikler (cep telefonu gibi minyatürleşme gerektiren cihazlarda kullanılır) [4]. Sistem performansı malzeme özellikleriyle yakından ilişkilidir, çünkü tane boyutu, tane sınırları, kristal yapı ve nokta kusurları seramiğin fiziksel özelliklerini etkilemektedir [5]. Bununla birlikte daha büyük dielektrik sabiti (örneğin 20'ye yakın veya büyük) mikrodalga bileşenlerinin daha küçük üretilmesi için önemli bir faktördür. Minimum dielektrik kaybıyla birlikte yüksek dielektrik sabiti ve kalite faktörü elde etmek için yüzde yüze yakın bir yoğunlaştırma şarttır [6].

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> düşük dielektrik sabatine (10-40 GHz'de 9.6[7]), yüksek kalite faktörü (Q, veya düşük dielektrik kayıp, Q=100000-380000 GHz [8]) ve -60 ppm/°C [8] negatif rezonans frekansına sahip olduğundan mikrodalga uygulamalarında kullanılmaktadır. Aynı zamanda mikrodalga uygulamalarında düşük dielektrik sabatine sahip (9.9 GHz'te 4.1) ve yüksek kalite faktörü (9.9 GHz'te 2600) CaO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> bazlı cam sistemleri [9] veya 7.4 dielektrik sabatine sahip, 12000 GHz kalite faktörüne ve -130 ppm/°C negatif rezonans frekansına sahip ZnO:B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:SiO<sub>2</sub> bazlı cam sistemlerinde kullanılmaktadır [10]. Mikrodalga özelliklerini optimize etmek için ağırlıkça %40 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>'e ağırlıkça %60 SiO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bazlı cam [11], ağırlıkça %50 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>'e ağırlıkça %50 SiO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bazlı cam [11] veya ağırlıkça %50 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>'e ağırlıkça %50 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [12] gibi seramik/cam veya 0.89Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0.11TiO<sub>2</sub>'ye ağırlıkça % 0.5 ZnO eklenerek [13] çeşitli seramik sistemleri çalışılmıştır. Choi ve ark. [11] SiO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bazlı cam/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sistemlerini çalışmış, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>'e ağırlıkça %40-50 arasında cam eklemiş ve dielektrik özellikleri belirlemiştir. Ağırlıkça %40 cam içeren numune 5.4 dielektrik sabatine, 8000 GHz kalite faktörüne ve -50 ppm/°C rezonans frekansına sahip olduğu ifade edilmiştir. Ağırlıkça %50 cam içeren sistem 6.2 dielektrik sabatine, 11400 GHz kalite faktörüne ve -35 ppm/°C rezonans frekansına sahip olmuştur. Seo ve ark. [12] ağırlıkça %50 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sistemine ağırlıkça %50Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> eklemiş ve 17.7 GHz'te 6.7 dielektrik sabatine, 2800 GHz kalite faktörüne sahip olduğunu bulmuşlardır. Mandai ve ark. [14] CaO-ZrO<sub>2</sub>-cam sistemini araştırmışlar ve dielektrik sabitini 25, kalite faktörünü 3500 GHz olarak bulmuşlardır. Anortit (CaAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>) bazlı cam sistemi 7.4 dielektrik sabatine ve 12400 GHz kalite faktörüne sahiptir [15]. Gao ve ark. [16] mikrodalga uygulamaları için ZrO<sub>2</sub> miktarının ZnO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> cam/seramik sistemlerin üzerine etkisini incelemiştir. %0,25 mol ZrO<sub>2</sub> içeren ZnO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> cam seramiği, 6.18 dielektrik sabatine, 23670 GHz kalite faktörüne ve -65 ppm/°C rezonans frekansına sahip olduğu bulunmuştur. Mao ve ark [17]. BaO-MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> (BMAS) bazlı cam/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sistemlerini mikrodalga uygulamaları için incelemiştir. Ağırlıkça %50 BMAS camı içeren cam/seramik sistemi 5.40 dielektrik sabatine, 5235 GHz kalite faktörüne sahip olduğu bulunmuştur.

Genel olarak, mikrodalga dielektrik malzemeler için yüzde yüze yakın yoğunlaşma yüksek dielektrik sabit ve yüksek kalite faktörü (veya düşük dielektrik kayıp) çok kritiktir. Bu sebepten dolayı bu çalışmada özellikle viskoz sinterleme yoluyla Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cam/ZrO<sub>2</sub> seramiklerinin yüksek sinterleme sıcaklığını düşürmek için düşük ergime sıcaklığına sahip anortit bazlı cam bileşimi kullanılması amaçlanmıştır ve aynı zamanda dielektrik sabitini ve kalite faktörünü arttırmak için ZrO<sub>2</sub> eklenmiştir. Yaş numuneler kuru presleme ile istenilen boyutlarda hazırlanarak yoğunlaşma, faz oluşumu, dielektrik ve mikrodalga özellikleri incelenmiştir. Literatür araştırmaları neticesinde Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/CaO-SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bazlı cam/nano ZrO<sub>2</sub> kompozitleri ile ilgili bir çalışmaya rastlanılmamıştır ve elde edilen sonuçlar literatürle karşılaştırılarak tartışılmıştır.

## II. DENEYSEL ÇALIŞMALAR

Alümina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, saflık %99.78, d<sub>50</sub>= 0.5 µm Almatiss, CT 3000 SG), ticari cam (CaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> bazlı; Akkim, Türkiye) ve nano ZrO<sub>2</sub> (tane boyutu= 90nm, yüzey alanı=10 m<sup>2</sup>/g, ZrO<sub>2</sub>, Tosoh, Zpex 4) başlangıç malzemesi olarak kullanılmıştır. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tozuna 600°C'de 30 dakika bağlayıcı giderme işlemi (ticari tozun kendisinde bulunan su bazlı mı etil alkol bazlı mı olduğu bilinmeyen bağlayıcıyı gidermek için) uygulanmıştır. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve cam tozları etanol kullanılarak ayrı ayrı karıştırılmış, bilyalı değirmen yardımıyla öğütme işlemi uygulanmıştır. Daha sonra ağırlıkça %45 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve ağırlıkça %55 cam karışımından oluşan bileşime, ağırlıkça %

47, %57 ve %68 nano- ZrO<sub>2</sub> eklenip etanol içinde bilyalı değirmende 24 saat boyunca karıştırılmıştır. Numunelerin kodları ve oranları Tablo 1'de gösterilmiştir.

Tablo 1. Numune kodları ve numunelerin % ağırlıkça içerikleri ve oranları

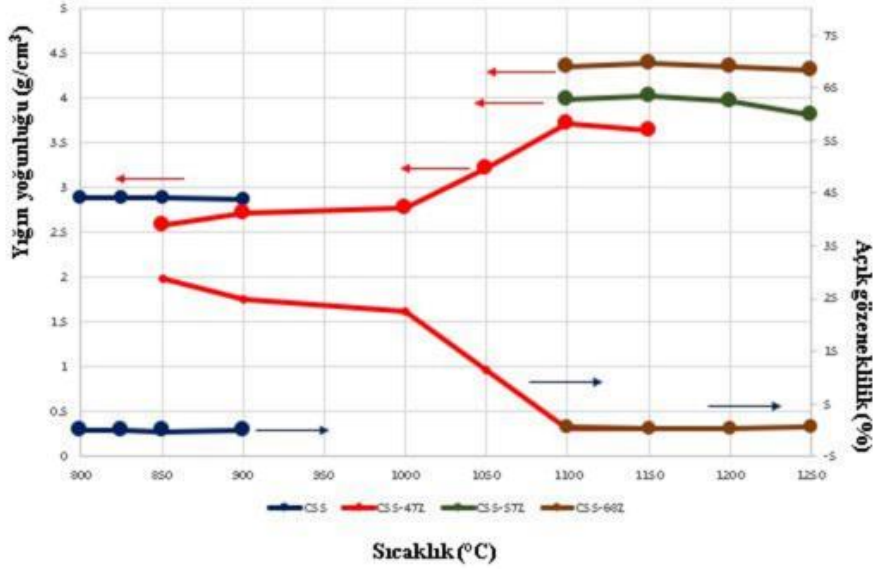
Numune kodu	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (ağ %)	Cam (ağ %)	ZrO <sub>2</sub> (ağ%)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Cam oranı
C55	45	55	0	1.222
C55-47Z	23.85	29.15	47	1.222
C55-57Z	19.35	23.65	57	1.222
C55-68Z	14.4	17.6	68	1.222

Numuneler tek eksenli bir pres kullanılarak, 100 MPa basınç uygulanarak 10 mm çapa sahip bir kalıp ile preslenmiştir. Daha sonra numuneler, 800-1250 °C aralığındaki çeşitli sıcaklıklarda, hava ortamında 1 saat bekleme süresinde, 5°C/dakika ısıtma ve soğutma hızıyla sinterlenmiştir. Yığın yoğunlukları ölçmek için Arşimet yöntemi kullanılmıştır. Faz oluşumu bir X-ışını kırınımı (XRD, Rigaku, Miniflex 600) ile kontrol edilmiştir. Yığın yoğunluğu ve dielektrik özellikleri tahmin etmek için paralel ( $E = \sum Ei \cdot Vi$ ), seri ( $1/E = \sum Vi/Ei$ ) ve logaritmik ( $\log E = \sum Vi \cdot \log Ei$ ) karışım modelleri kullanılmıştır [18]. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve cam tozlarının tane boyutu, lazer kırınımlı tane boyutu analiz cihazı (Malvern, Mastersizer 3000) ile ölçülmüştür. Tozların yüzey alanını belirlemek için Brunauer-Emmett-Teller (BET) yöntemi (Quantachrome ASiQwin) kullanılmıştır. Sinterlenmiş kompozitlerin Vickers sertliği, mikro sertlik test cihazı (Shimadzu HMV-G) ile 10 saniye boyunca 20 N yük uygulanarak belirlenmiştir. Dielektrik özellikler, bir endüktans-kapasitans-direnç ölçer (Hioki, IM3570) kullanılarak 5 MHz'de ölçülmüştür. Yansıyan bir sinyalin (yansıma katsayısı, S11) dalga kılavuzundan geçmesi prensibine dayanan tek portlu bir ölçüm kullanarak 1 ila 10 GHz arasındaki dielektrik özellikleri hesaplamak için bir ağ analizörü (Rohde&Schwarz ZNB40) kullanılmıştır.

### III. BULGULAR VE TARTIŞMA

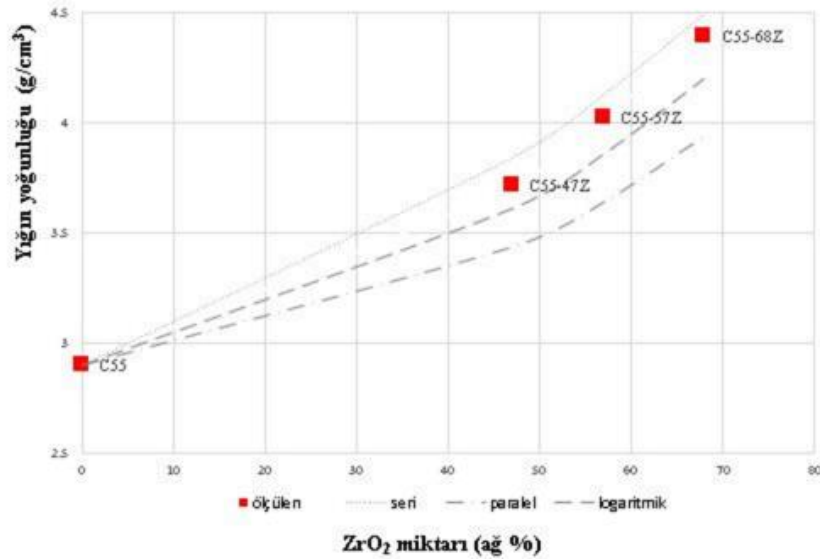
Başlangıç malzemeleri olarak ticari Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, cam firit ve nano ZrO<sub>2</sub> kullanılmıştır. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve cam tozları, tane boyutunu azaltmak için ayrı ayrı bilyalı değirmen ile öğütülmüştür. Bilyalı öğütme sonrasında cam tozunun d<sub>50</sub>= 2.13 µm ve yüzey alanı=1.89 m<sup>2</sup>/g, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tozunun d<sub>50</sub>= 0.44 µm ve yüzey alanı =6.44 m<sup>2</sup>/g olduğu tespit edilmiştir. Cam firitin sinterleme, yumuşama, küresel, yarı küresel ve erime sıcaklıkları ısıtma mikroskobu ile sırasıyla 726, 852, 958, 1088 ve 1180 °C olarak belirlenmiştir. Camın bileşimi SEM-EDS yöntemi ile ağırlıkça %65.8 SiO<sub>2</sub>, ağırlıkça %15.1 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ağırlıkça %11.7 CaO, ağırlıkça %4 Na<sub>2</sub>O ve ağırlıkça %3.4 K<sub>2</sub>O olarak belirlenmiştir [19].

Şekil 1'de, ZrO<sub>2</sub> miktarının ve sıcaklığın bir fonksiyonu olarak kuru preslenmiş Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/cam kompozitlerinin yoğunlaşma ve açık gözeneklilik (AG) değerleri gösterilmiştir. ZrO<sub>2</sub> miktarının artmasıyla daha yüksek sıcaklıklarda tam yoğunlaşma elde edildiğinden her bir kompozitin yoğunlaşma davranışları birbirlerinden farklıdır. Her bir kompozit için optimum sinterleme şartları, Arşimet yöntemiyle belirlenen yüksek yığın yoğunluğu, sıfıra yakın AG ve su emme (SE) sonuçları dikkate alınarak saptanmıştır. Her bir kompozit için optimum sinterleme sıcaklıkları C55 için 800 °C'de (2.89 g/cm<sup>3</sup>, AG= %0.13, SE= %0), C55-47Z için 1100 °C'de (3.71 g/cm<sup>3</sup>, AG= %0.23, SE= %0.06), C55-57Z için 1150 °C (4.02 g/cm<sup>3</sup>, AG= %0.25, SE= %0.06), ve C55-68Z için 1150°C (4.39 g/cm<sup>3</sup>, AG= %0.33 SE= %0.07) olarak belirlenmiştir. Genel olarak, optimum sinterleme sıcaklıklarında ZrO<sub>2</sub> miktarı arttıkça, daha yüksek ZrO<sub>2</sub> yoğunluğu (ZrO<sub>2</sub> yoğunluk= 6.07 g/cm<sup>3</sup>) nedeniyle (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> teorik yoğunluğu = 3.96 g/cm<sup>3</sup> [20] ve cam = 2.43 g/cm<sup>3</sup> [19] kompozitlerin yığın yoğunlukları artmıştır. C55 için yoğunlaştırma (yoğunlaşma sıcaklığı 800 °C), viskoz sinterleme nedeniyle cam matris fazının yumuşama sıcaklığına (yani 852°C) yakın sıcaklıklarda tamamlanmıştır. Bunların birlikte, yüksek ZrO<sub>2</sub> miktarlarında yığın yoğunluğu camın erime noktasında (örneğin, 1180 °C) keskin bir şekilde artmış ve C55-68Z için optimum sinterleme sıcaklığı, daha düşük sıvı miktarı (veya daha fazla ZrO<sub>2</sub> miktarı) nedeniyle 1150 °C'de elde edilmiştir. Literatürde benzer sonuçlar elde edilmiştir. Bilaç ve arkadaşları nano -AlN tozunu (ağ %1-10) müllit (ağ %45)/cam (ağ %55) [21,22] bileşimine ekleyip, AlN miktarının artmasıyla cam içeriğinin azaldığını, sinterleme sıcaklığının arttığını bulmuşlardır. Liu ve arkadaşları [23] CaO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> bazlı cam sistemine ağırlıkça %1-10miktarında ZrO<sub>2</sub> ekleyip, CBS/ZrO<sub>2</sub> sisteminin yoğunlaşma ve dielektrik özelliklerini incelemiştir. ZrO<sub>2</sub> miktarı ağırlıkça %0'dan %7'ye artırıldığında yığın yoğunluk yaklaşık 1.7 g/cm<sup>3</sup>'den 2.71 g/cm<sup>3</sup>'e artmıştır.



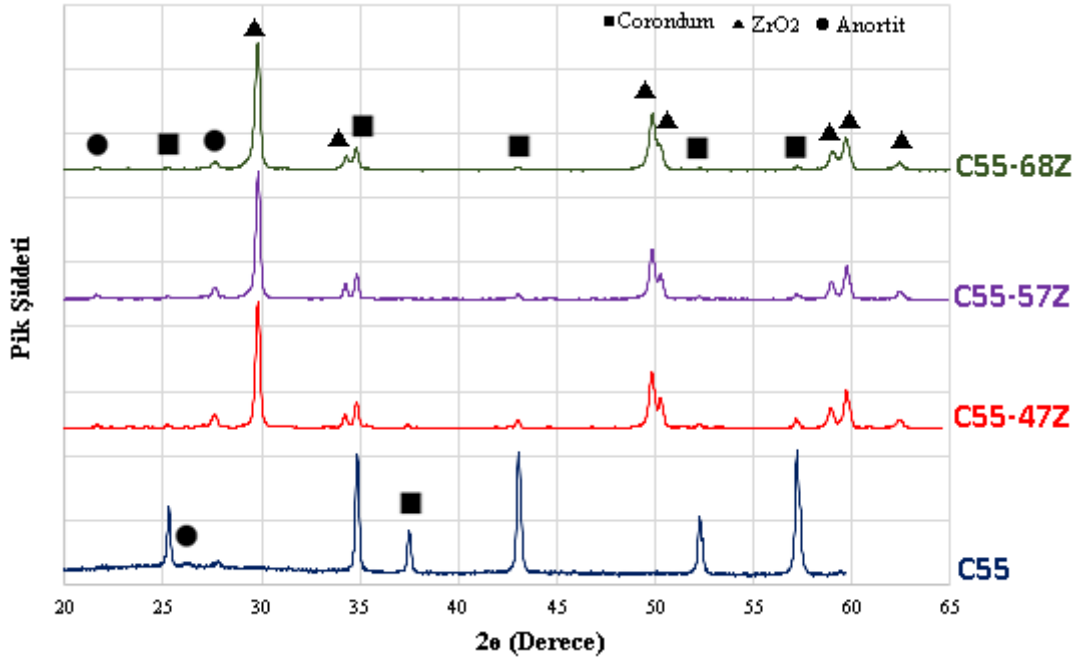
Şekil 1. ZrO<sub>2</sub> içeriği ve sıcaklığın bir fonksiyonu olarak kompozitlerin yoğunlaşma davranışları

Şekil 2’de, her bileşim için optimum sinterleme sıcaklığında Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/cam/ZrO<sub>2</sub> kompozitlerinin yığın yoğunluklarını gösterilmiştir. Yığın yoğunluklarının değişimini değerlendirmek için, paralel, seri ve logaritmik karıştırma modelleri [18] dikkate alınmıştır. Paralel, seri ve logaritmik modellerden hesaplanan değerler kesikli çizgilerle gösterilmiştir. Sistemde iki kompozit; C55 (yoğunluk=2,94 g/cm<sup>3</sup>) ve ZrO<sub>2</sub> (yoğunluk=6,07 g/cm<sup>3</sup>) değerlendirilmiştir. Dolayısıyla artan miktarda ZrO<sub>2</sub> içeriğinin daha yüksek yığın yoğunluklarına yol açtığı görülmektedir. Deneysel olarak belirlenen yığın yoğunlukları seri kurala daha yakın olduğu tespit edilmiştir.



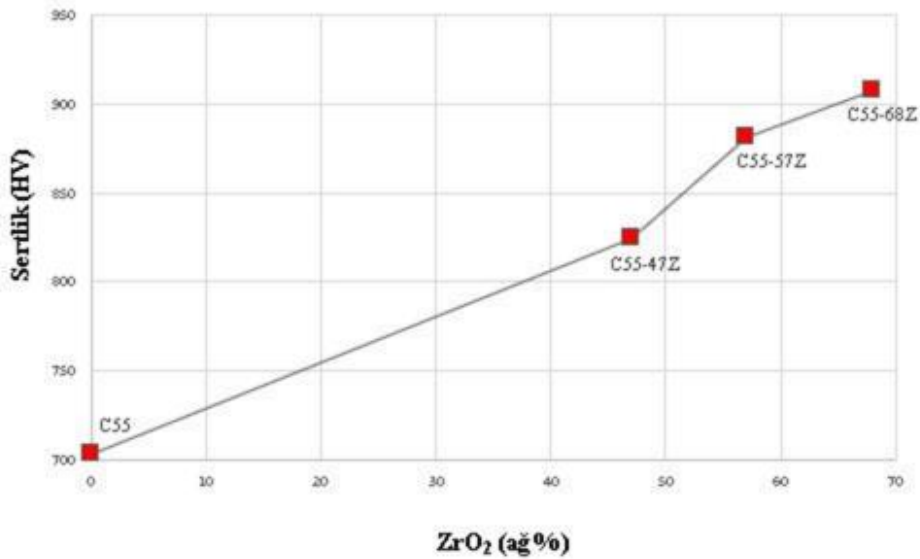
Şekil 2. Her bileşim için optimum sinterleme sıcaklığında sinterlenen Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/cam/ZrO<sub>2</sub> kompozitlerinin yığın yoğunlukları ve modellemeler

Şekil 3’de, optimum sinterleme sıcaklıklarında (C55 için 800 °C, C55-47Z için 1100 °C, C55-57Z için 1150 °C ve C55-68Z için 1150 °C) sinterlenen kompozitlerin X-ışını kırınım (XRD) grafikleri gösterilmiştir. ZrO<sub>2</sub> (Kart numarası: 00-017-0923) bütün kompozisyonlar için (C55 hariç) ana kristalin faz olarak grafiklerde görülmektedir. Anortit (Ca,Na)(Si,Al)<sub>4</sub>O<sub>8</sub> (Kart numarası: 00-041-1481) ve corondum (Kart numarası: 00-010-0173) fazları da sistemde yer alan diğer fazlardır. Anortit fazının kristalizasyonu sıcaklığa (anortit fazı 825°C’de oluşmaya başlar [21]) ve cam içeriğine bağlı olarak değişmektedir, ancak 2θ = 29.8°’deki ana ZrO<sub>2</sub> pik şiddeti C55-47’den C55-68’e yükselmiştir; bu, ZrO<sub>2</sub>’nin diğer fazlarla kimyasal olarak reaksiyona girmediğini ve sıcaklıkla ayrışmadığını (bozunmadığını) göstermektedir. ZrO<sub>2</sub>’nin kimyasal kararlılığı dielektrik ve mekanik özelliklerin değerlendirilmesinde son derece önemli olmuştur.



Şekil 3. Her bir bileşim için optimum sinterleme sıcaklığında sinterlenen kompozitlerin XRD pikleri

Sinterlenmiş numunelerin mekanik özellikleri, yapıdaki kristal fazlara, sinterleme sıcaklığı ile yoğunlaşma (veya açık gözeneklilik) arasındaki ilişkiye ve malzemedeki kusurlara bağlıdır [24]. Şekil 4'te,  $ZrO_2$  içeriğinin bir fonksiyonu olarak  $Al_2O_3/cam/ZrO_2$ 'nin kompozitlerinin sertlik değerleri gösterilmiştir. Tüm numuneler kuru presleme yöntemi ile optimum sinterleme sıcaklığında (C55 için 800 °C, C55-47Z için 1100 °C, C55-57Z için 1150 °C ve C55-68Z için 1150 °C) üretilmiştir. C55 ve  $ZrO_2$ 'nin sertlik değerleri sırasıyla 703 HV ve 1250 HV'dir.  $ZrO_2$  miktarının artmasıyla sertlik değerleri de artmıştır. Başka bir ifadeyle, sertlik değerleri C55 için  $703 \pm 51$  HV, C55-47Z için  $824 \pm 11$  HV, C55-57Z için  $881 \pm 7$  HV ve C55-68Z için  $907 \pm 33$  HV olarak saptanmıştır. Bunun sebebi  $ZrO_2$ 'nin yüksek sertlik değeri (bkz. Şekil 3  $ZrO_2$  faz olarak kalmış ve sıcaklık ile bozunmamıştır) ve tam yoğunlaşma olarak (bkz. Şekil 1  $AG < \% 1$ 'den küçüktür) açıklanabilir. Benzer bir davranış  $MgAl_2O_4 / ZrO_2$  kompozit sisteminde de gözlemlenmiştir; sertlik 13,5 GPa'dan (ağırlıkça %0  $ZrO_2$ ) 15,1 GPa'ya (ağırlıkça %20  $ZrO_2$ ) yükselmiştir [25].

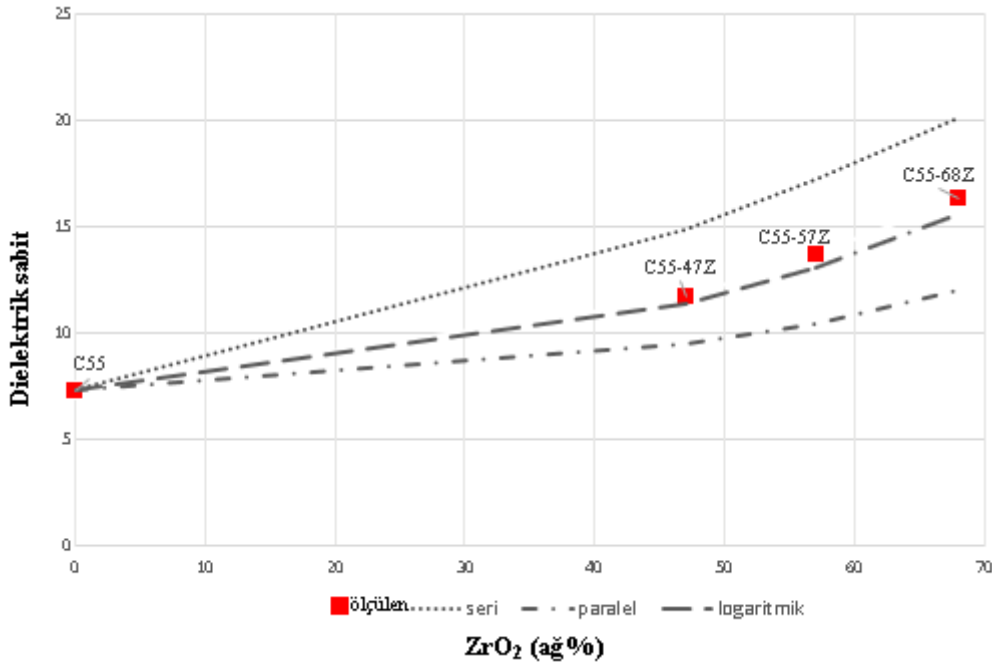


Şekil 4. Her bir bileşim için optimum sinterleme sıcaklığında sinterlenen kompozitlerin sertlik grafiği

Dielektrik özellikler, numunelerin yoğunlaşması (veya gözenekliliği), cam içeriği ve yapıda mevcut kristalin fazlar dahil olmak üzere çeşitli faktörlere bağlıdır. Şekil 5'te, seri, paralel ve logaritmik modellerle birlikte ZrO<sub>2</sub> içeriğinin bir fonksiyonu olarak optimum sinterleme sıcaklığında sinterlenen kompozitlerin dielektrik sabitleri gösterilmiştir. C55 ve ZrO<sub>2</sub> kompozitlerin kapasitans değerleri (C, Farad) 5 MHz'de ölçülmüştür ve ardından dielektrik sabiti (K) aşağıdaki denkleme göre hesaplanmıştır.

$$K = \frac{C \cdot d}{\epsilon_0 \cdot A} \quad (1)$$

Bu denklemde d kalınlık (m),  $\epsilon_0$  vakumun geçirgenliği (Farad/m) ve A elektrot alanıdır (m<sup>2</sup>) [1]. C55 ve ZrO<sub>2</sub> için dielektrik sabit 5 MHz'de sırasıyla K=7.3 ve K=32.75 olarak ölçülmüştür. Dielektrik sabiti (kayıp) değerleri 5 MHz'de C55-47Z için 11.69 (0.0091), C55-57Z için 13.71 (0.0060) ve C55-68Z için 16.29 (0.0032) olarak belirlenmiştir. Deneysel olarak belirlenen dielektrik sabitleri (K) logaritmik modelle iyi bir uyum içinde olduğu bulunmuştur. ZrO<sub>2</sub> kimyasal kararlılığı (bkz. Şekil 3) ve ZrO<sub>2</sub>'nin yüksek dielektrik sabiti (5MHz'de 32.75) nedeniyle ZrO<sub>2</sub> miktarı arttıkça kompozitlerin dielektrik sabiti yükselmiştir. Bir başka deyişle, tüm numuneler neredeyse sifıra yakın AG'ye (yani %0,33'den az) ve SE'ye (yani %0,07'den az) sahip olduğundan, K'deki artış temel olarak ZrO<sub>2</sub>'nin yüksek K'sına atfedilmiştir. Malzemenin radyo frekansına veya mikrodalga radyasyonuna tepkisini gözlemleyerek dielektrik malzemelerin kendine özgü elektromanyetik özelliklerini belirlemek amacıyla, C55-68Z'nin dielektrik sabiti (olası bir mikrodalga uygulaması için) ayrıca bir ağ analizörü kullanılarak 1 GHz ve 10 GHz'de ölçülmüştür. Bu sonuçlar, dielektrik sabitinin artan frekansla birlikte sürekli olarak azaldığını göstermektedir; 5 MHz'de dielektrik sabit(kayıp) 16.29 (0.0032)'dan 1 GHz'de 14.79(0.0045)'a ve 10 GHz'de 14.43(0.0051)'e düşmüştür. Bu düşüşün sebebi esas olarak uzay yükünden ve dipolar katkılardan kaynaklanan polarizasyon eksikliğinden kaynaklanmaktadır [20]. Literatürde benzer bir eğilim CaO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> bazlı cam/ ZrO<sub>2</sub> sistemlerde gözlemlenmiştir. ZrO<sub>2</sub> miktarının artmasıyla dielektrik sabit ağırlıkça 0'dan (K=4.27) ağırlıkça %20'ye (K=4.89) artmıştır [23]. Daha yüksek dielektrik sabiti (örneğin 20'ye yakın veya daha yüksek) mikrodalga bileşenlerin minyatürleşmesi için kritiktir [6]. Tüm kompozitlerin dielektrik kayıpları 5MHz'de 0,0091'in altındadır. Genel olarak, dielektrik kayıplar frekans ve sıcaklığa göre değişir ve katkı maddesi, safsızlık atomlarından, mikroyapısal kusurlardan (örneğin tane sınırları, gözeneklilik, mikro çatlaklar, dislokasyonlar, boşluklar), düzen-düzensizlik, kristal yapı ve yönelimden kaynaklanabilir [26]. Maksimum sinyal ısı kaybını önlemek için dielektrik kayıp (kalite faktörü (Q)= (1/dielektrik kayıp) yüksek) mümkün olduğu kadar küçük olmalıdır [27].



Şekil 5. Her bileşim için optimum sinterleme sıcaklığında sinterlenen Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/cam/ZrO<sub>2</sub> kompozitlerinin dielektrik sabiti ve modellemeler

ZrO<sub>2</sub> diğer fazlar ile rekasyona girmediği ve sıcaklıkla bozunmadığı için (bkz. Şekil 3), Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/cam /ZrO<sub>2</sub> kompozitleri cam seramiklerin yığın yoğunluğunu (daha yüksek ZrO<sub>2</sub> yoğunluğu (ZrO<sub>2</sub> yoğunluk= 6.07 g/cm<sup>3</sup>) nedeniyle), sertliğini (daha yüksek ZrO<sub>2</sub> sertlik değeri (ZrO<sub>2</sub> sertlik= 1250 HV) nedeniyleve dielektrik sabitini (daha yüksek ZrO<sub>2</sub> dielektrik sabiti değeri (ZrO<sub>2</sub> K=32.75) arttırmıştır. C55-68Z en yüksek yoğunluğa (4,39 g/cm<sup>3</sup>), en yüksek sertliğe (907 HV) ve en yüksek dielektrik sabiti değerine (5 MHz'de 16.29, 1 GHz'de 14.79 ve

10 GHz'de 14.43) sahip olmuştur. C55-68Z mikrodalga uygulamaları için en umut verici kompozisyon olarak belirlenmiştir.

#### IV. GENEL SONUÇLAR

$Al_2O_3/Cam/ZrO_2$  kompozitleri mikrodalga uygulamaları için kuru presleme yöntemiyle başarıyla üretilmiştir. Maksimum yoğunluğa C55 için 800 °C'de, C55-47Z için 1100 °C'de, C55-57Z için 1150 °C'de ve C55-68Z için 1150 °C'de (tüm kompozisyonlar için;  $AG \leq \%0,33$  ve  $SE \leq \%0,07$ ) ulaşılmıştır. XRD sonuçları,  $ZrO_2$  diğer fazlarla kimyasal olarak reaksiyona girmediğini ve sıcaklıkla bozunmadığını göstermiştir. Yoğun kompozitlerin dielektrik sabiti,  $ZrO_2$  miktarının artmasıyla 5 MHz'de C55 için 7.3, C55-57Z için 13.71 ve C55-68Z için 16.29 olacak şekilde artmıştır. Sertlik değerleri artan  $ZrO_2$  içeriğiyle (yani C55 için 703 HV'den C55-68Z için 907 HV'ye) artmıştır. Özetle, cam eklenmesi kompozitlerin sinterleme sıcaklığını düşürmüş,  $ZrO_2$  eklenmesi ise kompozitlerin yığın yoğunluğunu, dielektrik sabitini ve sertliğini arttırmıştır. Bu nedenle, C55-68Z numunesi mikrodalga uygulamaları için umut verici bir adaydır.

#### KAYNAKLAR

- [1] Sebastian, M. T. (2008). Dielectric Materials for Wireless Communications, 1st ed. Amsterdam: Elsevier.
- [2] Ohsato, H. (2005). Research and development of microwave dielectric ceramics for wireless communications. *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 113(1323), 703–711.
- [3] Plourde, J. K., & Ren, C.-L. (1981). Application of Dielectric Resonators in Microwave Components. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 29, 754–770.
- [4] Ohsato, H., et al. (2004). Microwave-millimeterwave dielectric materials. *Key Engineering Materials*, 269, 195–198.
- [5] Freer, R., & Azough, F. (2008). Microstructural engineering of microwave dielectric ceramics. *Journal of the European Ceramic Society*, 28(7), 1433–1441.
- [6] Takata, M., & Kageyama, K. (1989). Microwave Characteristics of  $A(B_{1/2} B_{1/2})O_3$  Ceramics (A = Ba, Ca, Sr;  $B_{3+} = La, Nd, Sm, Yb$ ;  $B_{5+} = Nb, Ta$ ). *Journal of Materials Science*, 59, 1955–1959.
- [7] Cary, R. H. (1974). Avionic Radome Materials. Paris.
- [8] Alford, N. M. N., & Penn, S. J. (1996). Sintered alumina with low dielectric loss. *Journal of Applied Physics*, 80(10), 5895–5898.
- [9] Chiang, C. C., Wang, S. F., Wang, Y. R., & Wei, W. C. J. (2008). Densification and microwave dielectric properties of CaO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> system glass-ceramics. *Ceramics International*, 34(3), 599–604.
- [10] Wu, J. M., & Huang, H. L. (1999). Microwave properties of zinc, barium and lead borosilicate glasses. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 260(1–2), 116–124.
- [11] Choi, Y. J., et al. (2006). Co-firing and shrinkage matching in low- and middle-permittivity dielectric compositions for a low-temperature co-fired ceramics system. *Journal of the American Ceramic Society*, 89(2), 562–567.
- [12] Seo, Y. J., Shin, D. J., & Cho, Y. S. (2006). Phase evolution and microwave dielectric properties of lanthanum borate-based low-temperature co-fired ceramics materials. *Journal of the American Ceramic Society*, 89(7), 2352–2355.
- [13] Ohishi, Y., Miyauchi, Y., Ohsato, H., & Kakimoto, K. I. (2004). Controlled temperature coefficient of resonant frequency of  $Al_2O_3-TiO_2$  ceramics by annealing treatment. *Japanese Journal of Applied Physics, Part 2 Letters*, 43(6A), 6–9.
- [14] Mandai, H., & Okube, S. (1992). *Ceramics Transactions*, 32, 91.
- [15] Krzmanc, M. M., Valant, M., & Suvorov, D. (2005). A structural and dielectric characterization of  $NaxCa_{1-x}Al_2-xSi_2+xO_8$  (x = 0 and 1) ceramics. *Journal of the European Ceramic Society*, 25(12), 2835–2838.
- [16] Gao, W., Cao, S., Li, L., Wang, J., Liu, C., & Han, J. (2023). Network structure, crystallization behavior, and microwave dielectric properties of ZnO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> glass-ceramics with ZrO<sub>2</sub> additions. *Journal of Alloys and Compounds*, 953, 170145.
- [17] Mao, H., Wang, F., Chen, X., Liu, Z., Li, W., & Zhang, W. (2023). Preparation of BaO-MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> glass-ceramic/ceramic LTCC substrate material for microwave application. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 34(4), 1–12.
- [18] Chung-Lun, W.-H. L., Lo, J.-G., & Duh, B.-S. C. (2002). Low-Temperature Sintering and Microwave Dielectric Properties of Anorthite-Based Glass-Ceramics. *Journal of the American Ceramic Society*, 85(9), 2230–2235.

- 
- [19] Dursun, G. M., & Duran, C. (2019). Glass alumina composites for functional and structural applications. *Ceramics International*, 45(9), 12550–12557.
- [20] Kingery, W. D. (1997). Introduction to Ceramics. *Journal of the Electrochemical Society*, 124, 152C.
- [21] Bilaç, O., & Duran, C. (2023). Mechanical, thermal, and dielectric properties of glass mullite composites for low-temperature co-fired ceramic and radome applications. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 3287–329.
- [22] Bilaç, O., & Duran, C. (2023). Effect of nano aluminum nitride filler on mechanical, thermal, and dielectric properties of the glass/mullite composites for low-temperature co-fired ceramic applications. *Journal of the American Ceramic Society*, 106(8), 4902–4910.
- [23] Liu, J. Z., Yao, Z. H., Xu, N. X., Zhang, Q. L., & Yang, H. (2016). Densification behavior and dielectric properties of CaO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> system glass-ceramics containing ZrO<sub>2</sub>. *Key Engineering Materials*, 697, 253–256.
- [24] Zhang, L., Olhero, S., & Ferreira, J. M. F. (2016). Thermo-mechanical and high-temperature dielectric properties of cordierite-mullite-alumina ceramics. *Ceramics International*, 42(15), 16897–16905.
- [25] Marais, F., Sigalas, I., & Whitefield, D. (2022). The effects of the addition of tetragonal-ZrO<sub>2</sub> on the mechanical properties of MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> – ZrO<sub>2</sub> composites. *Ceramics International*, 48(1), 563–568.
- [26] Gurevich, V. L., & Tagantsev, A. K. (1991). Intrinsic dielectric loss in crystals. *Advances in Physics*, 40(6), 719–767.
- [27] Sebastian, M. T., Silva, M. A. S., & Sombra, A. S. B. (2017.). Measurement of Microwave Dielectric Properties and Factors Affecting Them. In M. T. Sebastian, H. Jantunen, & R. Uvic (Eds.), *Microwave Materials and Applications 2V Set, I & II*, First Edition.