

고주파 기관용 PTFE 복합체 형성 압력에 따른 유전 특성

최흥제^{1,2}, 전명표^{1,a}, 조용수², 조학래³

¹ 한국세라믹기술원 나노IT소재팀

² 연세대학교 신소재공학과

³ 이너트론 주식회사

Dielectric Characteristics of Polytetrafluoroethylene-based Composites for Microwave Substrates with Formation Pressure

Hong Je Choi^{1,2}, Myung Pyo Chun^{1,a}, Yong Soo Cho², and Hak Rae Cho³

¹ Korea Institute of Ceramic Engineering & Technology, Seoul 153-801, Korea

² Material Science and Engineering, Yonsei University, Seoul 120-749, Korea

³ Innertron, Inc., Incheon 405-310, Korea

(Received March 8, 2013; Revised April 26, 2013; Accepted May 6, 2013)

Abstract: PTFE composites for use of microwave substrate were fabricated by impregnation and heat treatment fabrication with glass fabric. This study shows dielectric properties such as dielectric constant and loss can be controlled by thickness of PTFE composite with change of pressure condition in heating press process. The dielectric constant of the PTFE composites has decreasing tendency as given higher pressure condition. The dielectric loss has similar result too. Especially, the case of the dielectric loss was affected by the condition of pressure at heating press and had the best performance under 3 MPa. In order to see the reason why thickness conditions make different, their microstructures were also observed.

Keywords: PTFE composite, Glass fabric, Microwave substrate, Dielectric constant, Dielectric loss

1. 서 론

또 다른 무형의 자원이라고 할 수 있는 주파수 자원을 최대한 활용해야 하는 문제가 대두되고 있는 현실에서 시간이 갈수록 기존에 사용 중인 저주파 대역보다 고주파 대역을 사용하는 전자기기에 대한 수요

가 증가하고 있는 추세를 보이고 있다 [1,2]. 이는 고주파가 가지고 있는 고유 특성을 활용하고자 하는 목적이 강한테 현재 상용화된 에폭시 소재의 범용 기관으로는 고주파를 주로 송수신하는 전자기기 및 통신 장비들에서 요구되는 주파수 간섭 및 손실, 열에 의한 기관의 변형, 우수한 내열성 등 고주파 대역에서 특히 요구되는 고유 특성 및 조건들을 만족시킬 수 없다 [3].

PTFE (polytetrafluoroethylene)는 탄소와 불소로 이루어진 고분자로서 높은 기계적 강도와 열적안정성 및 낮은 유전상수를 가지며 절연 특성이 뛰어나고, 뛰어난 내화학성 특성을 갖는 안정한 물질이므로 다

a. Corresponding author; myoungpyo@kicet.re.kr

양한 분야에서 이에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다 [4,5]. 특히 낮은 유전 상수는 기판의 높은 신호 전달 속도를, 낮은 손실은 rise-time degradation의 절감 등 전기적 특성의 개선을 기대할 수 있다 [6]. PTFE 물질만으로는 실제 기판으로 사용하기 위한 물리적 강도 등의 특성을 갖기 힘든 관계로 유리 섬유를 활용한 복합체 형태로 우수한 유전적 특성과 함께 뛰어난 물리적 특성까지도 갖는 기판의 제조가 필요하게 되었다.

PTFE 복합체의 제조공정에는 일반적으로 PTFE 분말을 이용하는 방법과 PTFE 분산액을 이용하는 방법이 알려져 있다. 이 중에서 PTFE 분말을 사용하는 경우 압축성형을 거쳐야 하고 고체 상태의 입자를 이용하므로 복합체의 두께를 조절하는 과정의 제어가 힘든 문제점이 있다. 이에 비해 PTFE 분산액에 유리 섬유를 함침시키는 방법은 공정 시간이 오래 걸리고 여러 단계를 거치지만 좀 더 균일한 표면을 갖는 수지침투 가공제 (prepreg)를 제조할 수 있으며 작은 크기의 PTFE 분자가 유리섬유의 내부 구조에 잘 침투하여 우수한 성능의 복합체를 얻을 수 있다. 본 연구에서는 PTFE 분산액에 유리섬유를 함침시키는 방법을 이용하여 수지침투 가공제를 중간열처리 과정을 거친 후에 적층시켜 hot press를 통해 열과 압력을 가하는 방법으로 PTFE 복합체를 제작하여 유전 특성을 측정하였다. 또한, hot press 공정에서 중요한 요소 중 하나인 압력 조건의 변화를 통해 PTFE 복합체의 두께를 조절하여 이에 따른 유전특성의 영향을 규명하였다 [7].

2. 실험 방법

입자크기가 0.05 ~ 0.5 μm 인 PTFE powder가 60 wt%로 분산되어 있는 수용액(PTFE TE-3893, DuPont, U.S.A.)에 4 cm × 4 cm의 크기로 절단한 유리섬유를 10분 간 상온에서 함침하고, 120°C의 오븐에서 40분 동안 건조하여 수분을 제거하는 과정을 통해 수지침투 가공제를 제조하였다. 건조 과정에서 수분이 잔존하는 경우 투여된 PTFE 양의 차이로 인해 불균일한 표면을 갖게 될 수 있으므로 충분한 건조 시간을 갖는 것이 필요하다. 이러한 함침 및 건조 과정을 4회 반복하여 PTFE 입자들이 유리 섬유(E-glass fabric, No.7628)에 충분히 침투될 수 있도록 한다. 제조된 수지침투 가공제에서 PTFE 수용액

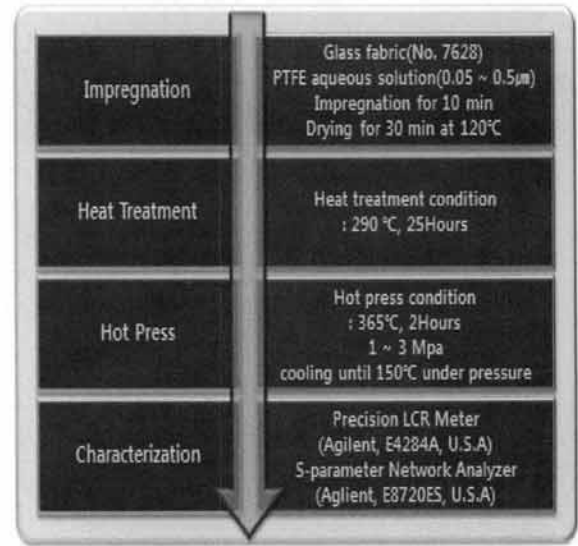


Fig. 1. Flow chart of the overall PTFE composite fabrication.

Table 1. Summary of hot press condition for PTFE composites.

Target temperature	365°C
Heating time	2 hour
Holding time	2 hour
Pressure	1 MPa, 2 MPa, 3 MPa

에 함유되어 있는 wetting agent를 제거하기 위하여 280°C에서 30분 동안 중간 열처리 작업을 한다. 이후 0.056 mm 두께의 2장의 동박을 위, 아래에 두고 수지침투 가공제들을 4장 씩 적층하여 hot press를 이용하여 복합체를 만든다. 본 실험에서 설정한 PTFE 복합체 제조를 위한 hot press 조건을 표 1에 나타내었으며 전극과 유전체층으로 이루어진 PTFE 복합체의 구조는 그림 2와 같다. PTFE의 녹는점 (327°C) 이상의 365°C의 온도에서 2시간 동안 유지하는 조건으로 동일하게 하고 추가적으로 압력 조건을 1 MPa, 2 MPa, 3 MPa로 다양하게 하여 복합체의 두께를 조절하는 방법을 이용하였다. 목표온도에서 일정 시간 동안 유지 후에는 150°C까지 서서히 냉각을 시키는 과정까지 압력을 계속 유지시켜준 후 냉각수를 이용하여 최종 냉각시켰다. 이러한 압력의 유지는 복합체 내부의 구조와 표면의 균일함을 최대한 유지시켜 주기 위함

다. 또한 온도유지 시간 이후에도 상당시간 동안 일정 수준 이상의 고온 상태가 지속되므로 이 과정에서의 복합체 내부 구조에서 발생할 수 있는 변형 등의 요인을 최대한 줄이고자 하는데 원인이 있다.

전극 역할을 해줄 동박과 수지침투 가공제들의 계면 접착 상태는 측정 단계에서 필수적으로 알아야 할 정전용량의 크기에 절대적인 영향을 주는데 여기에서는 기관의 정확한 특성 평가를 하기 위하여 이러한 변수가 될 요인을 최대한 배제시키고자 완성된 복합체를 질산수용액에 10분 간 처리한 후에 상온전극을 이용하여 전극을 부착하는 방법을 도입하였다. 제조한 PTFE 복합체의 유전상수 및 유전손실 특성을 측정하고 평가해 보기 위하여 Precision LCR meter (Agilent, E4284A, U.S.A)를 사용하였다. 이와 같은 전체적인 공정 과정 및 각 과정별 실험 조건을 간략히 표시하여 그림 1을 통해 나타내었다.

3. 결과 및 고찰

표 2는 압력조건에 따른 PTFE 복합체들의 두께의 평균값을 나타낸 것인데 압력 조건을 증가시키면 PTFE 복합체의 두께가 감소하게 되는 것을 알 수 있다. 이는 녹는점 이상의 온도 조건을 조성하여 복합체 내부의 PTFE 층이 반응을 하기에 충분한 상태에서 일정 수준의 압력을 가해주어 PTFE 층이 유리섬유 내부로 침투하는 양이 많아지게 되기 때문이다. 이로 인해 PTFE 층과 유리섬유 층간의 간격이 좁아지고 PTFE 층 자체의 두께도 얇아지게 되는 것을 알 수 있다. 1 MPa의 압력을 주었을 때의 복합체의 두께가 2 mm, 2 MPa의 압력을 받은 경우 1.61 mm, 3 MPa를 가했던 복합체의 두께는 1.18 mm의 결과를 보이는 것으로 보아 1 MPa 만큼의 압력을 증가시킬 때마다 대략적으로 0.4 mm 만큼의 PTFE 복합체의 두께 감소 효과가 있다는 것을 알 수 있다. 추가적으로 실험을 해본 결과 3 MPa를 초과하는 압력을 가해주었을 때 복합체 두께의 감소폭이 크게 줄어들었는데, 이는 기본적으로 제한된 유리섬유가 갖고 있는 두께 내에 이미 PTFE 입자들이 충분히 침투가 이루어졌기 때문인 것으로 생각된다.

그림 3의 결과를 확인해보면 복합체의 두께가 얇아질수록 유전상수 값의 미세한 감소를 확인할 수 있다. 유전상수가 2.1인 PTFE와 6.6 (1 MHz 기준)인 유리섬유로 이루어진 수지침투 가공제의 유전상수는

Table 2. Change of thickness of PTFE composite for applied pressure condition.

Pressure	Thickness
1 MPa	2 mm
2 MPa	1.61 mm
3 MPa	1.18 mm

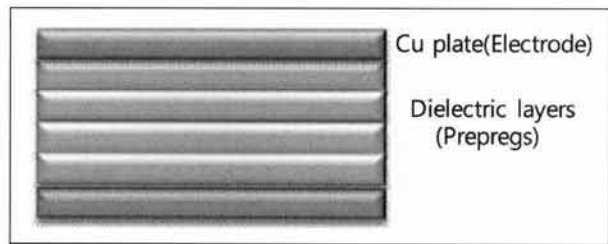


Fig. 2. Structure of PTFE Composite consisting of Cu plate electrode and 4 pieces of prepregs.

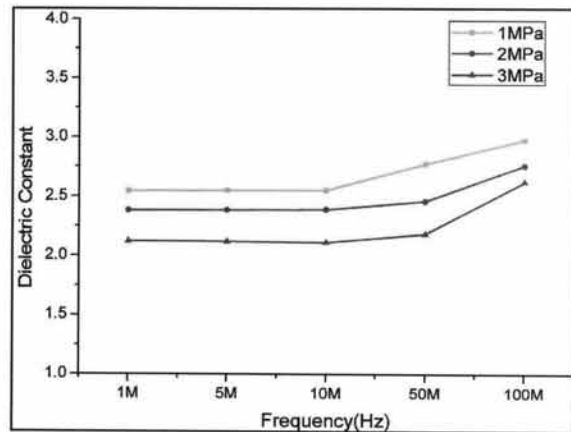


Fig. 3. Frequency dependence of dielectric constant of PTFE composites fabricated at different pressures from 1 MHz to 100 MHz.

복합체 두께가 얇아지면서 주파수 범위 전반에 걸쳐 서서히 감소하는 것을 볼 수 있다. 구체적으로 1 MPa의 압력을 준 경우 대략 2.54 정도의 유전상수 값을 갖고 2 MPa의 압력을 가한 경우는 2.38 정도이다. 그리고 3 MPa의 경우에는 2.12 정도의 유전상수 값을 보이는데 일반적으로 시료의 두께가 얇아지면 정전용량이 커지므로 유전상수 또한 커지지만 그림 3의 결과에 보이듯이 PTFE 복합체에서는 복합체 내부로

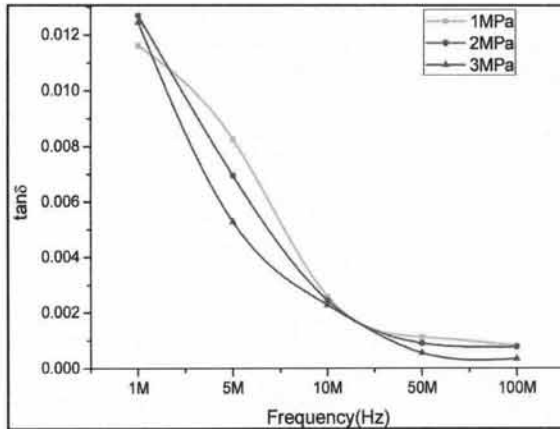


Fig. 4. Frequency dependence of dielectric loss of PTFE composites fabricated at different pressures from 1 MHz to 100 MHz.

상대적으로 유전상수 값이 작은 PTFE 입자들이 보다 많이 침투하여 구성하고 있기 때문에, 복합체 두께의 감소에 따른 유전상수의 미세한 감소 현상이 발생한 것이라고 사료된다 [8,9].

그림 4는 주파수에 따른 여러 압력에서 시편의 유전손실 ($\tan\delta$)을 보여준다. 일반적으로 유전손실은 다음 식에 의해 주어진다.

$$\tan\delta(\omega) = \tan\delta_d(\omega) + \frac{\sigma}{\omega\epsilon_0\epsilon_r}$$

여기서 $\tan\delta_d(\omega)$ 는 전자 분극 (electronic polarization) 또는 이온 분극 (ionic polarization)과 관련이 있는데 이러한 분극현상들은 상대적으로 높은 주파수에서 발생하게 된다. 이 주파수에 이르기 전까지는 주파수가 증가할수록 유전손실은 주파수에 반비례하여 감소함을 보여준다. 이러한 경향은 PTFE 기판에서 일반적으로 관찰되며, 주파수를 더욱 증가시키게 되면 쌍극자 분극 (dipole polarization)에 의하여 유전손실은 다시 증가하는 경향을 보여주는 것으로 보고되고 있다 [10,11]. 복합체 시편의 두께가 얇아질수록 유전손실 값은 미세한 감소 현상을 나타낸다. 압력을 1 MPa 만큼 가해준 복합체는 1 MHz의 주파수에서 0.01162, 10 MHz에서 0.00259 그리고 100 MHz에서는 0.00082의 값을 가진다. 이밖에도 2 MPa의 압력을 준 경우 1 MHz에서 0.01270, 10 MHz에서 0.00245, 100 MHz의 주파수에서는 0.00077의 유전손

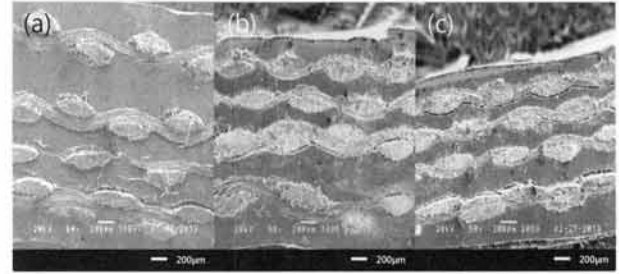


Fig. 5. SEM images of PTFE composites fabricated at different pressure, (a) 1 MPa, (b) 2 MPa, and (c) 3 MPa

실값을 보이며 가장 높은 3MPa의 압력을 주었을 때는 1 MHz에서 0.01245, 10 MHz에서 0.00227, 100 MHz의 주파수에서는 0.00035의 유전손실값을 보이는 것을 확인할 수 있었다. 복합체에 가해진 다양한 압력조건에 따른 두께의 변화에 의한 유전손실은 복합체의 두께가 감소할수록 유전손실도 작아지는 우수한 유전특성을 보이는 것을 알 수 있다. 이러한 측정 결과는 유리섬유 내부의 계면 사이 및 구조적으로 존재하는 굴곡이나 기공들이 높은 압력조건을 통해 PTFE 층으로 유리섬유로 조밀하게 채워 더욱 치밀한 구조를 갖게 되었기 때문이라고 판단된다 [12]. 유리섬유 내부의 계면사이 및 미세구조에 존재하는 기공과 굴곡에는 space charge가 존재할 가능성이 크고 미세한 양이나 존재할 수도 있는 수분 등의 요인들은 정전용량의 증가를 방해하는 방향으로 영향을 주어 유전상수도 감소하게 만드는 중요한 요인 중의 하나라고 생각된다 [13]. 그렇게 때문에 함침 및 열처리 과정에서의 충분한 건조 시간을 확보하여 수분을 제거하고 hot press 과정을 통해 균일하게 압력을 가하여 기공과 굴곡의 감소 또한 압력 조건을 이용하여 어느 정도의 조절이 가능하다고 생각된다.

다양한 압력 조건의 차이에 따른 PTFE 복합체의 두께의 변화에 대한 유전 상수 및 손실 등 유전 특성에 미치는 영향을 이해하기 위해 SEM (scanning electron microscope)을 이용하여 PTFE 복합체의 미세구조를 살펴보았다. 그림 5에서 약간의 굴곡을 그리면서 연속적으로 연결된 부분이 유리섬유이고 유리섬유층 사이를 위, 아래로 메우고 있는 상대적으로 어두운 부분이 PTFE 층이다. PTFE 층의 분포상태를 살펴보면 두께가 두꺼운 복합체 시편의 경우는 두께가 얇은 복합체 시편보다 유리섬유 간의 간격이 넓은 것을 알 수 있다. 유리섬유층 간의 간격과 전체

복합체의 두께의 차이는 hot press 공정 과정에서 가해진 압력이 높을수록 더 많은 양의 PTFE 입자가 유리섬유로 침투했음을 보여줌과 동시에 이로 인해 상대적으로 얇은 PTFE 층으로 인해 발생한 것이라는 것을 확인할 수 있었다. 특히 가장 우수한 유전상수와 유전손실의 값을 보였던 3 MPa의 압력을 준 경우는 1 MPa의 압력을 가한 가장 큰 값의 유전상수와 유전손실을 가졌던 경우에 비해 PTFE 층과 유리섬유층간의 간격이 매우 조밀하다는 것을 알 수 있다. 실제로 4장의 수지침투 가공체들을 적층시킨 결과 2 MPa, 3 MPa의 압력을 가해주었던 복합체의 경우 내부적으로 아래 2장의 수지침투 가공체들이 좁은 간격으로 인하여 거의 밀착되어 있는 것처럼 보이는 것을 알 수 있었다. 이러한 현상은 각각의 수지침투 가공체 내부의 유리섬유를 중심으로 위, 아래로 채우는 PTFE 층의 두께의 차이에 의한 요인과 hot press 과정에서 최대한 균일하게 적용되어야 하는 압력 조건에서 발생한 변수라고 생각된다. 이러한 미세구조상 드러난 차이를 살펴본 결과 PTFE 복합체에 일정 수준이상의 압력을 가해주면 PTFE 입자가 유리섬유 및 복합체 내부의 기공과 굴곡을 충분히 채워 우수한 유전상수 및 유전손실 등의 유전 특성을 나타냄을 알 수 있다.

4. 결 론

PTFE 복합체의 함침 및 hot press 과정을 통한 공정 과정에서 압력 조건의 차이를 이용해 조절할 수 있는 PTFE 복합체의 두께로 인한 PTFE 복합체의 유전 특성에 미치는 영향을 1 MHz부터 100 MHz의 주파수 영역에 걸쳐서 분석하였다. 일정 수준 이상의 온도를 유지시켜 주었을 때 높은 압력을 가해줄수록 유리섬유 사이로 많은 양의 PTFE 층이 침투하여 복합체의 두께가 얇아지는 것을 알 수 있었다. 유전 특성의 경우도 측정 주파수 전반에 걸쳐서 3 MPa의 비교적 높은 압력을 가한 경우에는 1 MPa, 2 MPa의 낮은 압력을 주었던 경우보다 계면 및 내부 구조에서의 굴곡과 기공에 의한 space charge의 감소로 인하여 좀 더 치밀한 미세구조를 갖게 되는 것을 SEM을 통하여 확인하였으며, PTFE 복합체로서 우수한 유전상수와 유전손실의 유전 특성을 가지는 것을 확인하였다. 특히 3 MPa의 압력을 주었을 경우에는 1 MHz부터 100 MHz의 측정범위 주파수에 이르기까지 서서히 감소하여 100 MHz의 높은 주파수에서도 2.12의 유전상수와 0.00035의 유전손실 값을 보여 가장 우수한 유전 특성을 보이는 것으로 나타났다.

감사의 글

본 연구는 우수제조기술연구센터사업의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

REFERENCES

- [1] J. Neal, *RF Micro Devices Extends Industry-Leading PowerStar Power Amplifier Module Portfolio*, <http://ir.rfmd.com/releasedetail.cfm?ReleaseID=401836> (2005).
- [2] M. Baine, RF Micro Devices Inc. & Atmel Corporation Trend Analysis Report, <http://www.sbwire.com/press-releases/rf-micro-devices-inc-atmel-corporation-trend-analysis-report-nasdaq-rfmd-nasdaq-atml-195418.htm>(2013).
- [3] J. C. Velasco, D. Bercovich, H. Long, Ö. K. Eriksson, M. O'Connor, P. M. Rizzi, R. Yaron, and P. Croy, *MEF*, 11 (2011).
- [4] J. W. Son, H. Q. Yun, K. Hae, S. Y. Shin, and H. M. Kim, *Hydrophobic Properties on RF-sputtered PTFE Films coated on UV-treated Glass Substrates* (2003).
- [5] D. Y. Kim, K. C. Lee, and C. Lee, *Laser-Induced Surface Modification of Silicon and PTFE: Enhancement of Copper Deposition on Silicon* (2003).
- [6] K. H. Yoon, D. H. Jung, B. D. Yang, J. H. Jang, and J. H. Kim, *Preparation and Dielectric Characteristics of PTFE(Polytetrafluoroethylene) Composites for Microwave Circuit Board* (2003).
- [7] A. J. Bur, *Dielectric Properties of Polymers at Microwave Frequencies: A review*, *Polymer Review*, 26, 963 (1985).
- [8] A. David and S. S. Gwo, "Electrical Substrate Material," U. S. Patent 5,149,590 (1992).
- [9] Wikipedia: *Polytetrafluoroethylene*, <http://en.wikipedia.org/wiki/Polytetrafluoroethylene> (2001).
- [10] J. Krupka, *IEEE*, 54, 3995 (2006).
- [11] I. Mhaidata, J. A. Mergosb, S. Hamilakisa, C. Kolliaa, Z. Loizosa, A. Tsolomitisa, and C. T. Dervos, *Mat. Lett.*, 63, 2587 (2009).
- [12] J. R. Carroll, L. W. McGinnis, T. L. Miller, and M. B. Norris, *Glass Fiber Reinforced Fluoropolymeric Circuit Laminate*, U. S. Patent 4,886,699 (1989).
- [13] A. Sawada, *J. Chem. Phys.*, 129, 064701 (2008).