



ESTUDO COMPARATIVO DAS PROPRIEDADES DIELÉTRICAS DE [SrBi₂Nb₂O₉ + 15% (La₂O₃ OU Bi₂O₃)] E SUAS APLICAÇÕES COMO ANTENA RESSOADORA DIELÉTRICA

R.F. Abreu^{1,2}, Silva, F. R⁴, S.O. Saturno^{1,2}, D. da M. Colares^{1,2}, T. O. Abreu³, J.P.C do Nascimento⁴, E.O. Sancho⁵, J.C.Sales⁶, D.X. Gouveia³, A.S.B. Sombra^{1,2,7}.

¹ Telecommunication Engineering Department, Federal University of Ceará (UFC), Fortaleza, Ceará, 60755-640, Brazil. ² Physics Department - Federal University of Ceará (UFC), LOCEM-Telecommunication and Materials Science and Engineering of Laboratory (LOCEM), Campus PICI, P.O. Box 6030, Fortaleza, Ceará, 60455-760, Brazil. roterdan.fernandes@gmail.com, samuel.saturno@alu.ufc.br, diegodamotacolares@gmail.com

³ Department of Organic and Inorganic Chemistry, Science Center, Federal University of Ceará (UFC), Brazil. tallisabreu@gmail.com

⁴ Federal Institute of Education, Science and Technology of Ceará, PPGET, Fortaleza, Ceará, Brazil. feliperodrigues199@hotmail.com, jquimico3@gmail.com, dxgouveia@gmail.com

⁵ Departamento de Engenharia Mecânica, Universidade de Fortaleza - UNIFOR, Fortaleza, Ceará 60811-905, Brazil. emmanuellesancho@hotmail.com

⁶ State University of Vale do Acaraú, Center for Exact Sciences and Technology, Department of Civil Engineering. juscelinochaves@hotmail.com

⁷ Laboratory of Communication and Security Networks (LARCES), State University of Ceará, Itaperi Campus, Fortaleza, Ceará, Brazil. asbsombra@gmail.com

Resumo - Este trabalho apresenta as propriedades dielétricas da matriz cerâmica SrBi₂Nb₂O₉ (SBN) e adições de 15% [Bi₂O₃ ou La₂O₃], e tem como objetivo comparar os resultados obtidos indicando o melhor material para aplicações em microondas. As amostras foram sintetizadas por reação de estado sólido, e o método de difração de raios - X (DRX) foi utilizado para a caracterização estrutural. A estabilidade térmica das amostras foi medida experimentalmente através do estudo do coeficiente de temperatura de frequência ressonante (τ_f), os resultados confirmam que as adições de 15% de Bi₂O₃ ou La₂O₃ melhoraram a termoestabilidade dos compósitos variando -345.62 até -116.51 ppm/°C. O método de Hakki-Coleman foi usado para obter as propriedades dielétricas na faixa de microondas. Foi possível observar que, as permissividades dielétricas dos compósitos aumentaram em relação a amostra pura, enquanto suas tangentes de perdas diminuíram. A simulação numérica demonstrou o funcionamento do material como uma antena ressoadora dielétrica (DRA), com coeficiente de reflexão abaixo de -10 dB em todas as amostras.

Palavras-chave: SrBi₂Nb₂O₉; Microondas; Bi₂O₃/La₂O₃; DRA

INTRODUÇÃO

As cerâmicas dielétricas possuem importância significativa para o sistema global de comunicações devido às aplicações que vão desde a telefonia celular até sistemas de posicionamento global (GPS). Suas altas permissividades e baixas perdas propiciam a miniaturização e aplicação em componentes eletrônicos (filtros, osciladores, amplificadores, sintonizadores) [1-6]. Diante do exposto, este trabalho compara a influência das adições de 15% em massa de (La₂O₃ ou Bi₂O₃) sobre matriz cerâmica SrBi₂Nb₂O₉ (SBN) mostrando a variação de suas propriedades dielétricas e aplicações em dispositivos de microondas (MW). Vale ressaltar que a matriz cerâmica SBN têm sido amplamente investigada graças ao seu potencial para fabricação de memórias de acesso aleatório (aplicações FeRAMs) [7-12].

O efeito das adições à fase pura de SBN é investigado em relação à identificação estrutural e as suas propriedades dielétricas na faixa de microondas. Foi utilizada a difração de raios-X (DRX) para a caracterização estrutural das amostras, e a confirmação das fases foi obtida por meio do refinamento Rietveld [13-14]. As propriedades dielétricas na região de microondas foram estudadas através do método Hakki-Coleman [15-16], e através da técnica desenvolvida por Long, Maclister e Shen [17-18]. A estabilidade térmica do material foi estudada através método de Silva-Fernandes-Sombra (SFS) [19]. E por

fim, foi realizada simulação numérica para a obtenção dos parâmetros de campo distante e dessa forma avaliar o comportamento dos materiais como antena ressoadora dielétrica (DRA).

EXPERIMENTAL

As amostras foram preparadas através do método cerâmico convencional. Os óxidos precursores (SrCO₃, Bi₂O₃, Nb₂O₅) foram moídos por 8 h a 360 rpm utilizando o moinho Fritsch Pulverisette 5, e calcinados em forno resistivo (JUNG - LF0912) na temperatura de 900°C por 2h. Após este processo, foi realizada a adição de 15% em massa de Bi₂O₃ ou La₂O₃, resultando nas amostras SBNBi e SBNLa. As amostras SBN, SBNBi e SBNLa foram compactadas via pressão uniaxial de 294 MPa no formato de bulk usando 5% de glicerina como ligante. Em seguida, SBN, SBNBi e SBNLa foram sinterizadas no forno convencional controlado (JUNG - LF0912), respectivamente, a 900°C/2h, 850°C/2h e 1000°C/2h.

Através da difração Raios-X (DRX) realizou-se a análise estrutural das amostras. A identificação das fases foi feita usando o programa *X'Pert HighScore Plus* e o banco de dados *Inorganic Crystal Structure Database* (ICSD). Os parâmetros de rede e o refinamento das amostras foram obtidos através do Refinamento Rietveld.

Utilizando o método de Hakki-Coleman e o analisador de rede HP8716ET da *Hewlett - Packard* (HP) foram determinadas as propriedades dielétricas das amostras. A análise do espectro característico da

amostra determina os modos de ressonância do ressoador, que permitiu calcular a permissividade dielétrica (ϵ_r), a tangente de perda dielétrica ($\tan\delta$) e o fator de qualidade do material ($Q = 1/\tan\delta$) dos compostos analisados.

Para analisar a estabilidade térmica do material foi empregado o método de Silva-Fernandes-Sombra (SFS) que analisa o modo dominante. O τ_f pode ser calculado analiticamente usando a equação (1)

$$\tau_f = \frac{1}{f_0} \cdot \frac{\Delta f}{\Delta T} \cdot 10^6 \text{ ppm/}^\circ\text{C} \quad (1)$$

Com f_0 é a frequência de ressonância no início do processo, Δf a diferença entre as frequências final e inicial, e ΔT a diferença entre as temperaturas final e inicial.

Com o auxílio de um analisador de rede Agilent Network Analyzer N5230A e utilizando a técnica desenvolvida por Long, Mcallister e Shen foi realizada a medida do desempenho da antena ressoadora dielétrica (DRA). As amostras são excitadas sob a configuração de DRA (Fig. 1), o probe ($d = 9.6 \text{ mm}$) é ligado ao plano de terra feito de cobre ($35.5 \text{ cm} \times 30 \text{ cm} \times 2.14 \text{ mm}$) através de um conector SMA de 50Ω . O DRA cilíndrico possui um raio (a), altura (h) e (d) é a altura da sonda.

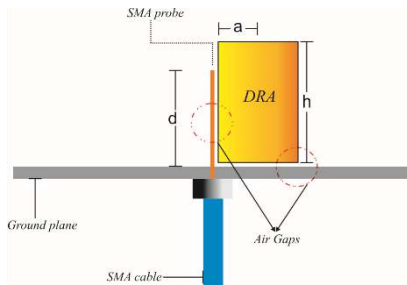


Figura 1 – Configuração de DRA.

Segundo a literatura [20-21], o fator de qualidade Q e a frequência ressonante podem ser calculados com precisão de acordo com as seguintes equações,

$$Q_{(HE_{11\delta})} = 0.01007(\epsilon_r^{1.3}) \cdot \frac{a}{h} \left[1 + 100e^{-2.05\left(\frac{a}{2h} - 0.0125\left(\frac{a}{h}\right)^2\right)} \right] \quad (2)$$

$$e, \quad f_{(HE_{11\delta})} = \frac{6.324c}{2\pi a \sqrt{\epsilon_r + 2}} \left[0.27 + 0.36 \left(\frac{a}{2h}\right) + 0.02 \left(\frac{a}{2h}\right)^2 \right] \quad (3)$$

Os gaps indicados na Fig. 1 tem influência direta na largura de banda (BW) e na correspondência de impedâncias [22-23]. Desta forma, é necessário ratificar o modelo experimental através de um dispositivo de teste confiável [24-25]. Tendo em vista esse cenário, a simulação numérica foi utilizada com o intuito de validar o processo experimental e obter parâmetros de campo distantes. Utilizando o software Ansoft HFSS® (*High Frequency Structure Simulator*) foi possível obter os parâmetros: diretividade, ganho, eficiência da antena e diagrama de radiação e etc [26].

Assim, tanto o coeficiente de reflexão (S_{11}) quanto a Carta de Smith foram medidos usando o analisador de rede N5230A e comparados com a simulação numérica.

RESULTADOS E DISCUSSÕES

A formação das fases SBN, SBNBi e SBNLa, foram confirmadas através da difração de raios-X. O difratograma da amostra SBNBi apresentou uma segunda fase (Sr_{0.6}Bi_{0.305})₂Bi₂O₇ (Fig. 3a), identificado com o JCPDS 73-923. Enquanto a amostra SBNLa apresentou pequenas quantidades de uma segunda fase LaNbO₄ (Fig. 3b), que foi identificado com o JCPDS n°. 81-618. Quando as amostras adicionadas são comparadas à amostra do SBN sem adição, nenhum deslocamento significativo nas posições dos picos foi observado. Assim, conclui-se que a estrutura cristalina não foi afetada pelas adições realizadas.

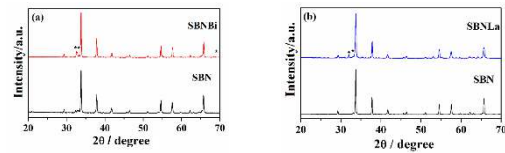


Figura 2 – Difração de Raios X das amostras de SBN, (a) SBNBi e ♦Bi₃NbO₇, (b) SBNLa, *LaNbO₄.

Na Fig. 3 são exibidos os resultados obtidos pelo refinamento de Rietveld das amostras. Os baixos valores residuais entre os padrões de difração observados e os calculados indicam que o refinamento realizado é confiável.

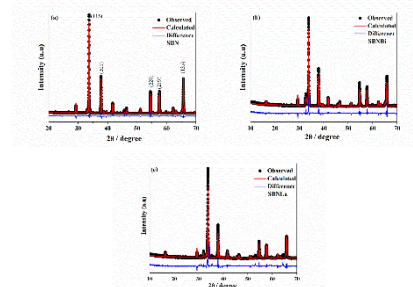


Figura 3 – Refinamento de Rietveld das amostras de (a) SBN sem adição calcinada a 900°C, (b) SBNBi calcinada a 850°C, (c) SBNLa calcinada a 1000°C.

O método Hakki – Colemann propiciou a obtenção das propriedades dielétricas ϵ_r , $\tan\delta$ e ($Q_d \times f_r$) das amostras, e os resultados são mostrados na Tabela 1. Comparando as amostras adicionadas com o SBN puro, foi possível notar que adições de (Bi₂O₃ ou La₂O₃) diminuíram a tangente de perdas ($\tan\delta$), e causaram um aumento da permissividade elétrica (ϵ_r) e do fator de qualidade Q_d . Nota-se que a maior permissividade ($\epsilon_r = 104.82$) e menor tangente de perdas ($\tan\delta = 0.0186$) foi encontrada na amostra SBNBi.

A fase pura SBN apresentou um $\tau_f = -345.62 \text{ ppm/}^\circ\text{C}$, este fato foi a motivação inicial para a adição de óxidos (Bi₂O₃ ou La₂O₃), devido a possibilidade de estabelecer novos compósitos com maior estabilidade térmica e melhores propriedades dielétricas. A amostra SBNBi obteve o valor da estabilidade $\tau_f = -235.02 \text{ ppm/}^\circ\text{C}$, enquanto o SBNLa obteve o melhor valor da estabilidade $\tau_f = -116.51 \text{ ppm/}^\circ\text{C}$ o que pode ser



explicado pela formação da fase LaNbO4 de τ_f positivo [27]. De acordo com os resultados obtidos, observa-se que as adições realizadas causaram a melhoria das principais propriedades necessárias para um DRA [3].

TABELA 1. Medida em microondas de amostras através do método Hakki-Coleman*.

Amostra	ϵ_r	D (mm)	H (mm)	$\tan \delta$ (10^{-2})	$Q_d \times f_r$ (GHz)
SBN	28.6	17.78	8.96	3.24	135.37
SBNBi	104.82	15.02	7.88	1.86	142.63
SBNLa	23.54	16.94	8.40	1.87	273.44

SBN* = amostra sinterizada a 900°C/2h; SBNBi** = amostra sinterizada a 850°C/2h; SBNLa*** = amostra sinterizada a 1000°C/2h.

Os parâmetros de campo distante foram obtidos para todas as amostras através de simulação numérica utilizando o software Ansoft HFSS®, esses dados fornecem os padrões de operação dos materiais como DRA. Na simulação numérica foram comparados os resultados experimentais e simulados para perda de retorno (S_{11}), Carta de Smith, padrões de radiação.

Na Fig. 4 é possível observar o excelente ajuste entre os gráficos experimentais e simulados, que apontam para uma perda de retorno mais negativa. Esse resultado é de extrema importância para aplicação em microondas, pois significa que mais energia está sendo transmitida [28-32]. Vale destacar que o erro entre a frequência simulada e a medida é próximo de zero para todas as amostras como pode ser observado na Tabela 2.

TABELA 2. Frequência e largura de banda experimentais e simuladas para o modo ressonante $HE_{11\delta}$.

Amostra	f_r (GHz)			S_{11} (dB)		
	Exp	Sim	Erro (%)	Exp	Sim	Erro (%)
SBN	2.86	2.86	0.00	-49.97	-45.01	0.08
SBNBi	2.86	2.86	0.00	-49.67	-48.03	3.41
SBNLa	3.22	3.21	0.06	-48.58	-48.49	0.22

Os resultados obtidos demonstram que a simulação realizada foi adequada e sugerem potenciais aplicações para as fases SBNBi e SBNLa como DRA's ou outros dispositivos que operam na faixa de microondas, tais como (filtros de microondas, osciladores, detectores de radar etc.).

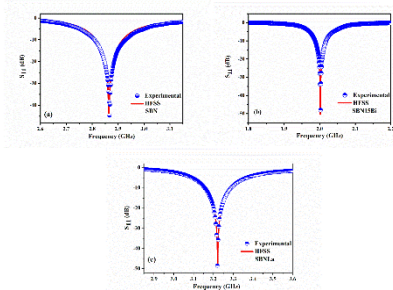


Figura 4 - Diagrama da perda de retorno de frequência das amostras (a) SBN, (b) SBNBi, (c) SBNLa.

A partir da simulação realizada, os parâmetros de campo distante das antenas foram obtidos e são mostrados na Tabela 3. A frequência ressonante dos materiais está na faixa de 2 – 4 GHz permitindo que estes atuem como dispositivos da banda S, e são candidatos potenciais para uso em radares meteorológicos e satélites de comunicação [27-34].

TABELA 3. Diretividade, ganho, potência de entrada, potência radiada, eficiência de radiação.

Amostra	Dire. (dBi)	Ganho (dBi)	P_{in} (W)	P_{rad} (W)	e (%)
SBN	6.62	5.56	0.99	0.78	78.19
SBNBi	6.90	3.11	0.99	0.41	41.85
SBNLa	6.92	5.98	0.99	0.80	80.63

A análise das propriedades dielétricas demonstrou que tanto a adição de Bi_2O_3 como La_2O_3 resultou na redução da tangente de perdas ($\tan \delta$), além de elevar o coeficiente de temperatura ressonante τ_f que saiu de -345.62 ppm/°C (SBN) para -116.51 ppm/°C (SBNLa). Vale destacar que a amostra SBNBi obteve o maior valor permissividade elétrica ($\epsilon_r = 104.82$). Estes resultados são de extrema importância para a aplicação em microondas e incentivam a fabricação de novos compósitos com maiores adições. Vale destacar que a adição de 15% de La_2O_3 demonstrou ser mais eficiente para aplicação como DRA, devido ao decréscimo de sua tangente de perdas e ao aumento do fator de qualidade, diretividade, ganho e eficiência de radiação. A simulação numérica mostrou que todas as amostras apresentaram perda de retorno abaixo de -10 dB e operavam na região da banda S (2 – 4 GHz), tornando-os candidatos potenciais para uso em satélites de comunicação e radares de acordo com a classificação dada pelo IEEE.

REFERÊNCIAS

- [1] Darko Kajfez and P. Guillon, *Dielectric Resonators*, Second Edi (Noble Publishing Corporation Atalanta, 1998).
- [2] M.T. Sebastian, *Dielectric Materials for Wireless Communication* (Elsevier Science, 2008).
- [3] A. Petosa, *Dielectric Resonator Antenna Handbook* (Artech House Publishers, 2007).
- [4] K.M. Luk and K.W. Leung, *Dielectric Resonator Antennas* (n.d.).
- [5] P.B.A. Fechine, G. Fontgalland, and A.S.B. Sombra, 2016 IEEE Antennas Propag. Soc. Int. Symp. APSURSI 2016 - Proc. 1939 (2016).
- [6] A. Moulson and J. Herbert, *Electroceramics* (Wiley, 2003). <https://doi.org/10.1002/0470867965>.
- [7] H. Jantunen, R. Rautioaho, A. Uusimaki, and S. Leppavuori, *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 20, no. 14–15, pp. 2331–6, 2000.
- [8] C. A.-P. de Araujo, J. D. Cuchiaro, L. D. McMillan, M. C. Scott, and J. F. Scott, *Nature* **374**, 627 (1995).
- [9] S. B. Majumder, P.S. Dopal, S. Bhaskar, and R.S. Katiyar, *Ferroelectrics* **241**, 287 (2000).
- [10] M.J.S. Rocha, P.M.O. Silva, K.R.B. Theophilo, E.O. Sancho, P.V.L. Paula, M.A.S. Silva, S. B. Honorato, and A. S. B. Sombra, *Phys. Scr.* (2012).
- [11] C.A. Paz de Araujo, J.D. Chchiaro, L.D. Mcmillan, M.C. Scott and J.F. Scott, *Nature* **374**, 627 (1995).
- [12] Aurivillius B 1949 *Arkiv Kemi* **1**, 463
- [13] H. M. Rietveld, *Acta Crystallogr.* (1967).
- [14] H. M. Rietveld, *J. Appl. Crystallogr.* (1969).
- [15] B.W. Hakki and P.D. Coleman, *IRE Trans. Microw. Theory Tech.* (1960).
- [16] W.E. Courtney, *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **18**, 476 (1970).
- [17] M.W. McAllister, S. A. Long, and G. L. Conway, *Electron. Lett.* **19**, 218 (1983).
- [18] S.A. Long, M.W. McAllister, L.C. Shen, "The resonant cylindrical dielectric cavity antenna", *IEEE Trans. Antennas Propag.* AP-31, no. 3, pp. 406–412, 1983.
- [19] M.A.S. Silva, T.S.M. Fernandes, and A.S.B. Sombra, *J. Appl. Phys.* (2012).
- [20] Mongia, Rajesh K.; Bhartia, Prakash. Dielectric resonator antennas—A review and general design relations for resonant frequency and bandwidth. **International**



Journal of Microwave and Millimeter-Wave Computer-Aided Engineering, v. 4, n. 3, p. 230-247, 1994.

- [21] G. Drossos, Z. Wu, L. E. Davis, *Microw. Optic. Tech. Lett.*, v. 13, n. 3, p. 119-123, 1996.
- [22] Junker GP, Kishk A, Glisson AW, et al. Effect of air gap on cylindrical dielectric resonator antenna operating in TM₀₁ mode. *Electron Lett.* 1994;30(2):97-98.
- [23] Junker, G. P. et al. Effect of an air gap around the coaxial probe exciting a cylindrical dielectric resonator antenna. *Electronics Letters*, v. 30, n. 3, p. 177-178, 1994.
- [24] Junker, G. P., Kishk, A. A., & Glisson, A. W. (1994). Input impedance of dielectric resonator antennas excited by a coaxial probe. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, 42(7), 960-966.
- [25] Kiang JF. *Novel technologies for microwave and millimeter wave applications*. Boston: Kluwer Academic Publisher; 2004.
- [26] HFSS: High Frequency Structure Simulator Based on finite Element Method, v.11.0.2, Ansoft Corporation, 2007.
- [27] DO NASCIMENTO, João PC et al. Visible and near-infrared luminescent properties of Pr³⁺/Yb³⁺ co-doped lanthanum ortho-niobate phosphors. **Optical Materials**, v. 97, p. 109399, 2019.
- [28] Balanis, *Antenna Theory: Analysis and Design* (New York: Wiley, 2012).
- [29] BALANIS, Constantine A. (Ed.). *Modern antenna handbook*. John Wiley & Sons, 2011.
- [30] D. M. Pozar, *Microwave Engineering*, 4th ed. (Wiley, 2011).
- [31] Poole and I. Darwazeh, *Microwave Active Circuit Analysis and Design*, 1st ed. (Academic Press, 2015).
- [32] Stutzman, W. L., & Thiele, G. A. (2012). *Antenna theory and design*. John Wiley & Sons.
- [33] ABREU, R. F. et al. Microwave Dielectric Properties Study of the La₂O₃ Additions on the SrBi₂Nb₂O₉ Matrix. *Journal of Electronic Materials*, v. 48, n. 2, p. 1196-1206, 2019.
- [34] ABREU, R. F. et al. Dielectric characterisation and numerical investigation of SrBi₂Nb₂O₉-Bi₂O₃ composites for applications in microwave range. *Journal of Electromagnetic Waves and Applications*, v. 34, n. 12, p. 1705-1718, 2020.