

$(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) 陶瓷微波介电性能研究

宋开新, 应智花, 邵李焕, 郑梁, 徐军明, 秦会斌

(杭州电子科技大学 电子信息学院 电子材料与器件实验室, 杭州 310018)

摘要: 采用固相反应法制备 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) 微波介质陶瓷, 研究 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷在 $0 \leq x \leq 1$ 范围内的相演变、微结构与其微波介电性能间相互关系. XRD 测试结果表明: 橄榄石结构的 Mg_2SiO_4 与硅矽矿结构的 Zn_2SiO_4 在晶体结构上存在很大差别, $(\text{Mg}, \text{Zn})_2\text{SiO}_4$ 在 $0 \leq x \leq 1$ 范围内只能部分地实现有限固溶. 背散射电子扫描显微镜 (BESEM) 测试结果显示: 随着 x 的增加, MgSiO_3 第二相得到抑制; 陶瓷出现液相烧结, 促进晶粒生长与玻璃相在晶界处沉积. 微波介电性能测试结果表明: 由于 Zn^{2+} 离子极化能力大于 Mg^{2+} 离子, $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) 陶瓷介电常数随 x 值增加而增大; $0 \leq x \leq 1$ 范围内, Mg_2SiO_4 陶瓷微波性能由于第二相、气孔率增加与晶粒增大而降低, Zn_2SiO_4 陶瓷由于微结构得到改善, 陶瓷微波性能得到优化. 当 $x = 0.6$ 时, 得到较好的 $(\text{Mg}_{0.4}\text{Zn}_{0.6})_2\text{SiO}_4$ 陶瓷微波性能为: $\varepsilon_r = 6.6$, $Qf = 95650\text{GHz}$, $\tau_f = -60 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$.

关键词: $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$; 陶瓷; 微波性能

中图分类号: TM221

文献标识码: A

Investigation of Microwave Dielectric Properties of $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) Ceramics

SONG Kai-Xin, YING Zhi-Hua, SHAO Li-Huan, ZHENG Liang,

XU Jun-Ming, QIN Hui-Bin

(College of Electronic Information and Engineering, Hangzhou Dianzi University, Hangzhou 310018, China)

Abstract: The phase evolutions, microstructures, and microwave dielectric properties of $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) ceramics were investigated. The XRD results show that Mg_2SiO_4 and Zn_2SiO_4 are partly limited solid solution in the systems of $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ceramics, due to the large differences between their crystal structures. BESEM images show that with the increases of x , the second phase of MgSiO_3 will be suppressed, and the occurrence of liquid phase sintering accelerates the growth of crystal grain and aggradations of glass phase in the boundary of grain. The dielectric constants of $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ceramics gradually increase because of the polarization of Zn^{2+} ion is larger than that of Mg^{2+} ion. The microwave properties of $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ceramics change with the variant of x value, together with external factors of the secondary phase, porosity and grain size of $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ceramics. When x is equal to 0.6, the optimum microwave dielectric properties of $(\text{Mg}_{0.4}\text{Zn}_{0.6})_2\text{SiO}_4$ ceramics is obtained: $\varepsilon_r = 6.6$, $Qf = 95650\text{GHz}$, $\tau_f = -60 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$.

Key words: $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$; ceramics; microwave properties

随着现代通讯与雷达技术的利用波段向厘米与毫米波段扩展, 作为信号发生、响应与传导的介质谐振器、滤波器、微波导线与微波基板等元器件要求具有快速的信号响应速度、优良的选择性与工作环境温度稳定性, 这就要求作为元器件的介质材料具有低的介电常数, 高的品质因素和近零的谐振频率

温度稳定性^[1-2]. 目前, 国内外研究较多的用在微波与毫米波段介电常数在 6 ~ 10 之间的介质陶瓷主要有: Al_2O_3 ^[3]、 MgAl_2O_4 ^[4]、 ZnAl_2O_4 ^[5]、 Mg_2SiO_4 ^[6] 与 Zn_2SiO_4 ^[7] 等含铝化合物和硅酸盐化合物. Mg_2SiO_4 属于正交晶系的橄榄石结构, 文献[8]报道致密纯相 Mg_2SiO_4 介质陶瓷微波介电性能为: $\varepsilon_r = 6 \sim 7$, $Qf =$

收稿日期: 2009-07-08, 收到修改稿日期: 2009-09-21

基金项目: 浙江省自然科学基金(Y1090765, Y1090146); 浙江省科技计划项目(KYZ044308038); 校启动基金(KYS04560819)

作者简介: 宋开新(1977-), 男, 副教授. E-mail: kxsongzju@hotmail.com

240000GHz, $\tau_f = -67 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$; Mg_2SiO_4 陶瓷在制备过程很容易出现 MgSiO_3 第二相以及陶瓷致密化成瓷困难等问题^[8]. 文献[7]报道了单相致密 Zn_2SiO_4 陶瓷微波介电性能为: $\epsilon_r = 7 \sim 8$, $Qf = 210000\text{GHz}$, $\tau_f = -60 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$, 同时 ZnO 在高温下烧结容易挥发引起气孔率高和过烧结等问题会降低 Zn_2SiO_4 陶瓷微波性能. 由于以上问题, 实际实验室采用的固相反应法制备的 Mg_2SiO_4 和 Zn_2SiO_4 陶瓷的微波性能常低于报道数值^[9]. 而在陶瓷材料制备过程中常采用离子半径接近的 Mg^{2+} 与 Zn^{2+} 相互置换来改善陶瓷烧结制备工艺与性能. 本工作拟采用 Mg-Zn 互相置换来有效限制 Mg_2SiO_4 中第二相 MgSiO_3 出现和 Zn_2SiO_4 中 ZnO 的挥发, 研究 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) 陶瓷的相演变, 微结构与微波介电性能间相互关系.

1 试验与测试

采用固相反应工艺制备了 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($x = 0, 0.05, 0.1, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 0.9, 0.95, 1.0$) 陶瓷. 原料 MgO 、 ZnO 、 SiO_2 纯度均大于 99.95%, 并按上式化学计量式配比称量. 配料以无水乙醇和 ZnO_2 作研磨介质一起装入聚四氟乙烯罐中, 用行星磨机研磨 24h, 使其混合均匀并使颗粒细化. 研磨后的浆料经烘干后过孔径为 $120\mu\text{m}$ 的尼龙筛筛成粉料. 粉料在 1200°C 预烧 3h, 使原料初步反应. 预烧后的粉料再装入罐内经二次球磨 24h, 浆料烘干, 再过孔径为 $120\mu\text{m}$ 的尼龙筛成细粉后加入 4wt% ~ 5wt% PVA 作为粘结剂. 然后粉料在 98MPa 压力下压制成 $\phi 12.0\text{mm} \times 1.5\text{mm}$ 的圆片. 圆片在 600°C 排胶 2h, 当炉内温度升至 $1200 \sim 1450^\circ\text{C}$ 保温烧结 3h, 然后随炉子冷却.

采用 X 射线衍射仪 (Rigaku, Max-IV) 对样品进行了物相分析, 用扫描电子显微镜 (SEM, JEOL-6460) 观察陶瓷试样的背散射电子成像形貌. 采用 Anglient 8753ES 网络分析仪, 用 Hakki-Collemon 方法测试陶瓷介电常数和品质因数^[10], 谐振频率温度系数在 $25 \sim 85^\circ\text{C}$ 测定, 按以下公式计算:

$$\tau_f = \frac{f_{85} - f_{25}}{f_{25} \times 60} \times 10^{-6}$$

f_{85} 、 f_{25} 分别为 85 和 25°C 下谐振中心频率.

2 结果与讨论

图 1 显示 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷粉末 XRD 图谱. $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) 陶瓷在 $x = 0$ 端和 $x = 1$ 端分别检测到 Mg_2SiO_4 与 Zn_2SiO_4 主晶相. 在 $0 \leq x \leq 0.4$ 范围内, 主相 Mg_2SiO_4 伴随 MgSiO_3 和 Zn_2SiO_4 第二

相存在. 在 $x = 0, 0.05$ 时, 第二相为 MgSiO_3 , 没有检测到 Zn_2SiO_4 存在. 在 $x = 0.1, 0.15, 0.2, 0.4$ 时, 出现了 Zn_2SiO_4 , 并随着 x 增大, Zn_2SiO_4 逐渐增多. Zn^{2+} 置换 Mg^{2+} 有利于抑制 Mg_2SiO_4 陶瓷制备过程中出现的 MgSiO_3 第二相. 在 $0.4 \leq x \leq 1.0$ 范围内, $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷主相转变成 Zn_2SiO_4 , Mg_2SiO_4 成第二相并逐渐减少. 在 $x = 0.9$ 时, XRD 衍射没检测到 Mg_2SiO_4 第二相, 结果进一步表明 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷在 $0.9 \leq x < 1.0$ 之间 Zn 和 Mg 相互完全固溶成 $(\text{Zn}, \text{Mg})_2\text{SiO}_4$. 虽然 Mg_2SiO_4 和 Zn_2SiO_4 都是孤立的岛状硅酸盐矿物具有相似的化学式, 而且 Mg^{2+} 和 Zn^{2+} 的离子半径差小于 15%, 在陶瓷工艺中人们常用 Mg 和 Zn 相互置换形成固溶体来改善陶瓷性能. 但 Mg_2SiO_4 属于正交晶系, 空间点群为 Pmnb 的橄榄石结构, Zn_2SiO_4 属于三角晶系, 空间点群为 R-3 的硅矽矿结构, 两者在晶体结构上存在很大差别, 这引起两者不能完全有限相互固溶度, 只能有少量的完全有限相互固溶度. XRD 测试结果与 Segnit 等^[11] 研究的 MgO-ZnO-SiO_2 三元系统相图结果一致, 他指出 Zn^{2+} 和 Mg^{2+} 在 Mg_2SiO_4 - Zn_2SiO_4 两端有低的完全相溶固溶限, Mg^{2+} 在 Zn_2SiO_4 中的固溶限大于 Zn^{2+} 在 Mg_2SiO_4 中的固溶限. 图 2(a) 显示 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷在 $0 \leq x \leq 0.4$ 范围内, 主晶相 Mg_2SiO_4 晶胞体积随着 x 值增加而增大, 这主要是由于部分 Zn^{2+} ($r_{\text{Zn}^{2+}} = 0.74\text{nm}$) 取代 Mg^{2+} ($r_{\text{Mg}^{2+}} = 0.66\text{nm}$) 进入 Mg_2SiO_4 晶格引起 Mg_2SiO_4 晶胞的增大. 图 2(b) 显示 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷在 $0.6 \leq x \leq 1.0$ 范围内, 随着部分的 Mg^{2+} 取代 Zn^{2+} 形成固溶体 $(\text{Zn}, \text{Mg})_2\text{SiO}_4$, Mg^{2+} 离子半径小于 Zn^{2+} 离子半径, 引起主晶相 Zn_2SiO_4 的晶胞体积减小.

图 3 显示 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) 陶瓷背散

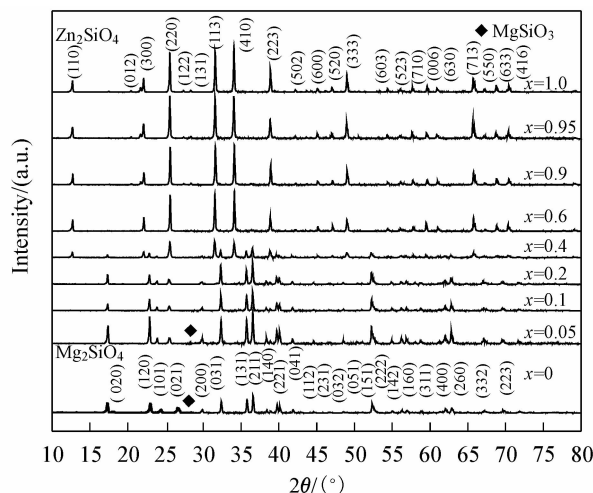


图 1 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) 陶瓷粉末 XRD 图谱
Fig. 1 XRD patterns of $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1.0$) ceramic powders

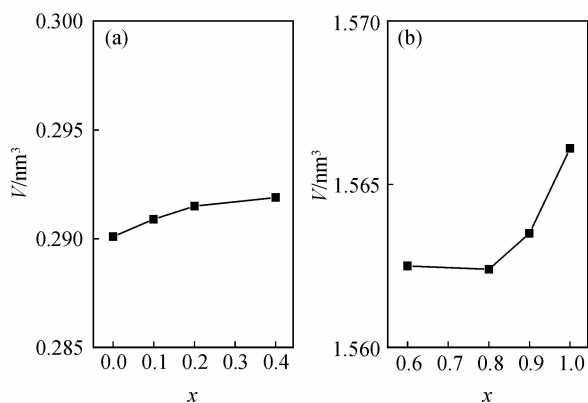


图2 (a) $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 在 $0 \leq x \leq 0.4$ 范围内主晶相 Mg_2SiO_4 晶胞体积与 x 值变化曲线; (b) $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 在 $0.6 \leq x \leq 1.0$ 范围内主晶相 Zn_2SiO_4 晶胞体积与 x 值变化曲线
Fig. 2 Variation of crystal volume of (a) main crystal phase Mg_2SiO_4 of the $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ceramics as a function of x ($0 \leq x \leq 0.4$) and (b) main crystal phase Zn_2SiO_4 of the $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ceramics, as a function of x ($0.6 \leq x \leq 1.0$)

射电子显微镜照片,可以看出 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷在 $0 \leq x \leq 0.4$ 范围内均有“白点”第二相存在;结合 XRD 测试结果可知在 $x=0$ 和 0.05 时“白点”是 MgSiO_3 第二相;在 $x=0.1$ 时是 Zn_2SiO_4 . 由于 ZnO 引

入有助于陶瓷出现液相烧结降低烧结温度,在 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷中主晶相 Mg_2SiO_4 的晶粒尺寸增大,并且使得 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷致密化程度获得提高(见图3(a)~(c)). 图3(d)显示,在 $x=0.4$ 时 Mg_2SiO_4 和 Zn_2SiO_4 两相颗粒尺寸大小均匀,微结构致密. 在 $0.6 \leq x \leq 1.0$ 范围内时, $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷主晶相 Zn_2SiO_4 晶粒尺寸较大,在 $10 \sim 20 \mu\text{m}$ 范围内,由于高温烧结条件下 ZnO 容易挥发,陶瓷块体气孔增多(见图3(e)~(h)). 在 $x=0.9 \sim 1.0$ 时,陶瓷在晶界部位形成凸起玻璃相. 在 Zn_2SiO_4 陶瓷中采用 Mg^{2+} 离子置换 Zn^{2+} 离子有助于 Zn_2SiO_4 陶瓷微结构的改善, Mg^{2+} 离子置换 Zn^{2+} 离子能起到抑制晶粒长大、降低气孔率和晶界玻璃相形成的作用. 在图3(e)~(h)中,背散射电子显微照片未显示第二相存在,结合 XRD 图谱,部分的 Mg^{2+} 离子能够进入 Zn_2SiO_4 晶格中形成 $(\text{Zn}, \text{Mg})_2\text{SiO}_4$ 完全相互固溶体.

表1数据得出 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) 陶瓷介电常数在 $0 \leq x \leq 0.2$ 范围内随 x 值增大而增加,由于 Zn^{2+} 进入 Mg_2SiO_4 晶胞中, Zn^{2+} 的离子极化率大于 Mg^{2+} 的离子极化率引起 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷介电常数增大. 在 $x=0.4$ 时, Mg_2SiO_4 和 Zn_2SiO_4 两相

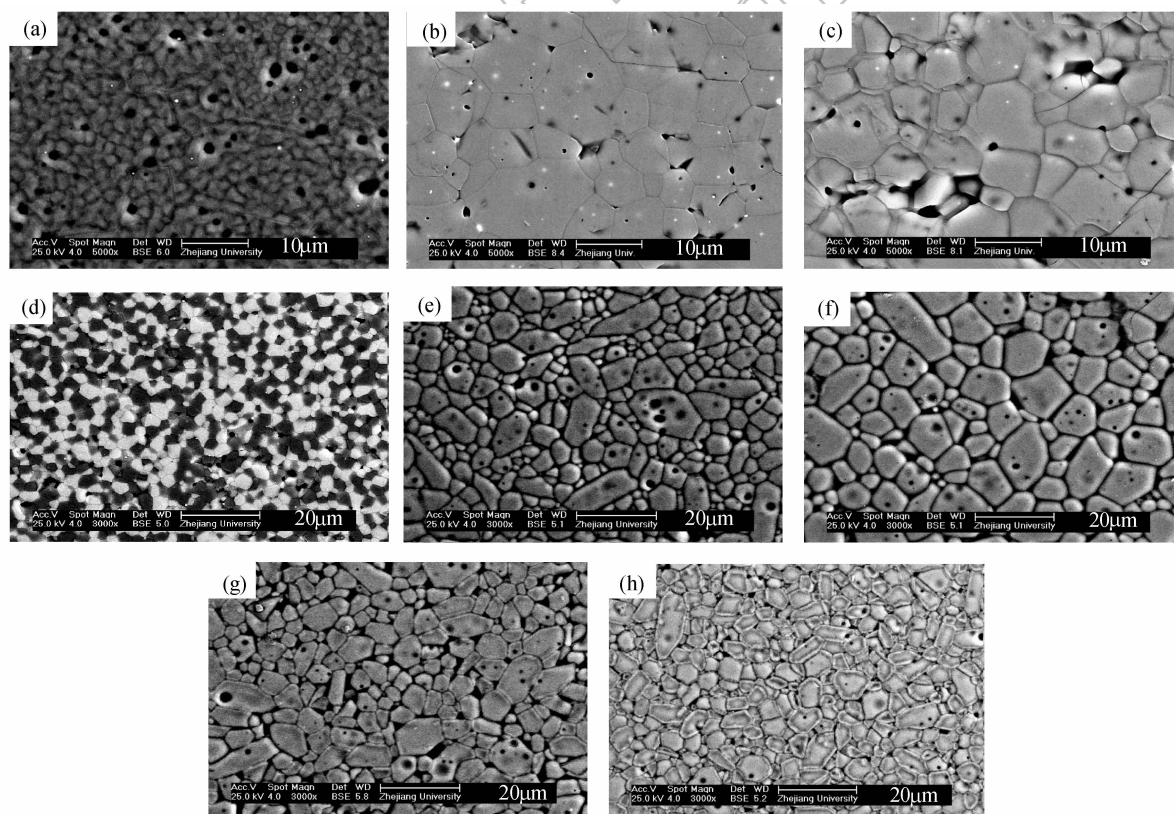


图3 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) 陶瓷的背散射扫描电镜照片

Fig. 3 Back scattering SEM micrographs of $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1.0$) ceramics

(a) $x=0$; (b) $x=0.1$; (c) $x=0.2$; (d) $x=0.4$; (e) $x=0.6$; (f) $x=0.8$; (g) $x=0.9$; (h) $x=1.0$

表1 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) 陶瓷微波介电性能
Table 1 Microwave dielectric properties of
 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1$) ceramics

x	f_0/GHz	ε_r	Qf/GHz	$\tau_f/(\times 10^{-6}, ^\circ\text{C}^{-1})$
0	10.7	7.5	112,780	-63
0.05	10.0	7.3	74,830	-67
0.10	10.1	7.5	71,210	-69
0.20	10.2	7.8	40,140	-68
0.40	10.5	7.2	53,010	-59
0.60	10.9	6.6	95,650	-60
0.80	10.8	6.8	81,320	-55
0.90	10.8	7.0	78,540	-58
0.95	10.7	7.0	21,170	-53
1.00	11.0	6.7	35,330	-58

均匀分布, Mg_2SiO_4 介电常数 $\varepsilon_r = 7$, Zn_2SiO_4 介电常数 $\varepsilon_r = 7 \sim 8$, 根据介电常数复合法则, 引起了 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($x = 0.6$) 陶瓷介电常数下降. 在 $0.6 \leq x \leq 1.0$ 范围内, $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷主晶相为 Zn_2SiO_4 , Mg^{2+} 进入 Zn_2SiO_4 晶体结构的 $\text{Zn}-\text{O}$ 四面体中形成 $(\text{Zn}, \text{Mg})_2\text{SiO}_4$ 固溶体引起 $\text{Zn}-\text{O}$ 四面体变形或压缩等, 导致 Zn_2SiO_4 晶体结构中电荷排布发生变化引起介电常数微弱增加. $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0.6 \leq x \leq 1.0$) 陶瓷介电常数由 $\varepsilon_r = 6.5$ 增大到 $\varepsilon_r = 7.0$.

$(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1.0$) 陶瓷微波性能: 在 $0 \leq x \leq 0.4$ 范围内, Qf 值随着 x 值增加, MgSiO_3 第二相得到抑制, 但 ZnO 在高温下烧结容易出现液相烧结和挥发引起陶瓷气孔率增多、晶粒过分长大和 Zn_2SiO_4 第二相的出现, 从整体上降低了 Mg_2SiO_4 陶瓷 Qf 值. 在 $0.6 \leq x \leq 1.0$ 范围内, 作为主晶相 Zn_2SiO_4 的 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷随着 x 值增加, ZnO 高温挥发引起陶瓷气孔增多, 晶界处玻璃相形成, 与 Mg^{2+} 置换 Zn^{2+} 离子造成 $\text{Zn}-\text{O}$ 四面体的变形导致 Qf 值降低, 如钙钛矿结构中 A-B 位修饰改性引起晶体结构倾斜、拉伸或者压缩, 使得陶瓷 Qf 值发生变化. $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1.0$) 陶瓷谐振频率温度系数基本上保持在 $-60 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ 左右, 没有很大变化.

3 结论

$(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1.0$) 陶瓷由于 Mg_2SiO_4 - Zn_2SiO_4 在晶体结构上存在很大差异, 所以

$(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 只能实现有限的相互完全固溶形成固溶体 $(\text{Mg}, \text{Zn})_2\text{SiO}_4$. 在 $0 \leq x \leq 0.4$ 范围内 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷主晶相是 Mg_2SiO_4 , 在 $0.6 \leq x \leq 1.0$ 范围内 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷主晶相是 Zn_2SiO_4 . $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ ($0 \leq x \leq 1.0$) 陶瓷微结构中的气孔率、晶体尺寸大小和第二相等微结构因素与 $(\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x)_2\text{SiO}_4$ 陶瓷微波介电性能有着直接联系. 在 $x = 0.6$ 时, $(\text{Mg}_{0.4}\text{Zn}_{0.6})_2\text{SiO}_4$ 陶瓷获得较好的微波介电性能: $\varepsilon_r = 6.6$, $Qf = 95650\text{GHz}$, $\tau_f = -60 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$.

参考文献:

- [1] Reaney I M, Iddles D. Microwave dielectric ceramics for resonators and filters in mobile phone networks. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2006, **89**(7): 2063-2072.
- [2] Fujii T, Ando A, Sakabe Y. Characterization of dielectric properties of oxide materials in frequency range from GHz to THz. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2006, **26**(10/11): 1857-1860.
- [3] Penn S J, Alford N McN, Templeton A, et al. Effect of porosity and grain size on the microwave dielectric properties of sintered alumina. *J. Am. Ceram. Soc.*, 1997, **80**(7): 1885-1888.
- [4] Zheng C W, Wu S Y, Chen X M, et al. Modification of MgAl_2O_4 microwave dielectric ceramics by Zn-substitution. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2007, **90**(5): 1483-1486.
- [5] Lei W, Lu W Z, Zhu J H, et al. Modification of ZnAl_2O_4 -based low-permittivity microwave dielectric ceramics by adding $2\text{MO}-\text{TiO}_2$ ($\text{M} = \text{Co}, \text{Mg}$ and Mn). *J. Am. Ceram. Soc.*, 2008, **91**(6): 1958-1961.
- [6] Tsunooka T, Androu M, Higashida Y, et al. Microwave dielectric properties of forsterite based solid solutions. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2003, **23**(14): 2573-2578.
- [7] Guo Y P, Ohsato H, Kakimoto K. Characterization and dielectric behavior of willemite and TiO_2 -doped willemite ceramics at millimeter-wave frequency. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 2006, **26**(10/11): 1827-1830.
- [8] Song M E, Kim J S, Joung M R, et al. Synthesis and microwave dielectric properties of MgSiO_3 ceramics. *J. Am. Ceram. Soc.*, 2008, **91**(8): 2747-2750.
- [9] Song K X, Chen X M. Phase evolution and microwave dielectric characteristics of Ti-substituted Mg_2SiO_4 forsterite ceramics. *Mater. Lett.*, 2007, **61**(17): 3127-3131.
- [10] Hakki B W, Coleman P D. A dielectric resonant method of measuring inductive capacitance in the millimeter range. *IRE Trans. Micro. Theor. Tech.*, 1960, **8**(4): 402-410.
- [11] Segnit E R, Holland A E. The system $\text{MgO}-\text{ZnO}-\text{SiO}_2$. *J. Am. Ceram. Soc.*, 1965, **48**(8): 409-413.