

低损耗高耐压 Al_2O_3 基低温共烧陶瓷王 飞^{1,2,3}, 宋小强³, 尹长志^{1,2,3}, 雷 文^{1,2,3}, 吕文中^{1,2,3}

(1. 华中科技大学, 电子信息功能材料教育部重点实验室(B类), 武汉 430074;

2. 华中科技大学光学与电子信息学院, 武汉 430074; 3. 华中科技大学温州先进制造技术研究院, 浙江 温州 325035)

摘 要: 为获得低介电损耗、高耐压强度的 Al_2O_3 基低温共烧陶瓷(LTCC)材料, 采用固相法制备了 $x(6\text{La}_2\text{O}_3 \cdot 24\text{CaO} \cdot 50\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 20\text{SiO}_2)(\text{LCBS}) + (1-x)\text{Al}_2\text{O}_3$ 玻璃/陶瓷。通过 X 射线衍射仪、扫描电子显微镜、矢量网络分析仪、高压击穿试验仪、高温介电温谱仪对烧结样品的结构和性能进行了表征。结果表明: 添加适量的 LCBS 玻璃粉有助于提升材料的致密性、降低介电损耗、提高击穿场强。同时, 复阻抗谱分析表明, LCBS 玻璃的加入可以显著提高玻璃/陶瓷的电阻率和活化能。当玻璃含量(摩尔分数)为 44% 时, 850 °C 烧结 0.5 h, 可获得性能优异的 LTCC 陶瓷材料 G44: $\epsilon_r=7.14$, $Q \times f=5\,769\text{ GHz}$ ($f=13\text{ GHz}$), $E_b=57.44\text{ kV/mm}$ 。

关键词: 玻璃/陶瓷; 低温烧结; 介电性能; 击穿场强

中图分类号: TQ174.75 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2023)04-0882-07

网络出版时间: 2023-03-14

Low Dielectric Loss and High Dielectric Breakdown Strength in Al_2O_3 -Based Low-Temperature Co-Fired Ceramic MaterialsWANG Fei^{1,2,3}, SONG Xiaoqiang³, YIN Changzhi^{1,2,3}, LEI Wen^{1,2,3}, LYU Wenzhong^{1,2,3}

(1. Key lab of Functional Materials for Electronic Information (B) of MOE, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China; 2. School of Optical and Electronic Information, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China; 3. Wenzhou Advanced Manufacturing Institute of Huazhong University of Science and Technology, Wenzhou 325035, Zhejiang, China)

Abstract: To obtain Al_2O_3 -based low-temperature co-fired ceramic (LTCC) materials with low dielectric loss and high breakdown strength, glass/ceramics of $x(\text{La}_2\text{O}_3\text{-CaO-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2)(\text{LCBS}) + (1-x)\text{Al}_2\text{O}_3$ were synthesized by a solid-state method. The structure and properties of the sintered samples were characterized by X-ray diffractometer, scanning electron microscope, vector network analyzer, high voltage breakdown instrument, and high-temperature dielectric spectrometer. The results show that adding an appropriate amount of LCBS glass powder can increase the density, reduce the dielectric loss and improve the breakdown strength of the composites. Moreover, based on the complex impedance spectrum analysis, the addition of LCBS can significantly increase the resistivity and activation energy of glass/ceramics. When Al_2O_3 ceramic with 44 % (mole fraction) LCBS glass (abbreviated G44) is sintered at 850 °C for 0.5 h, a LTCC ceramic material with the superior properties (i.e., $\epsilon_r=7.14$, $Q \times f=5\,769\text{ GHz}$ at $f=13\text{ GHz}$, and $E_b=57.44\text{ kV/mm}$) can be obtained.

Keywords: glass/ceramics; low-temperature sintering; microwave dielectric properties; breakdown strength

随着 5G/6G 移动通讯技术的快速发展, 通讯频率从低频段的微波拓宽到高频段的毫米波范围, 通讯频率的增加不仅有效缓解了频段资源紧张的局面, 而且促使组成整个通讯系统的电子元器件朝着

高频化、小型化、高集成和高可靠性方向发展^[1]。低温共烧陶瓷(LTCC)技术以其低成本、高效率、高稳定的技术特点, 已成为目前无源电子器件小型化、高密度三维集成的主流技术。该技术要求^[2-3]:

收稿日期: 2022-08-01。 修订日期: 2022-10-24。

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(No.51772107、No.U21B2068、No.52072133)。

第一作者: 王 飞(1990—), 女, 博士研究生。

通信作者: 吕文中(1966—), 男, 博士, 教授。

Received date: 2022-08-01. Revised date: 2022-10-24.

First author: WANG Fei (1990—), female, Doctoral candidate.

Correspondent author: LYU Wenzhong (1966—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: lwz@mail.hust.edu.cn

1) 低的烧结温度(800~900 °C), 方便与 Ag 电极共烧; 2) 低的介电常数($\epsilon_r < 10$), 提升信号传输速率, 减少时延; 3) 低的介电损耗, 减少信号传输过程中的能量损失; 4) 高的击穿场强, 提高系统可靠性。

微波/毫米波通讯中的超大规模集成电路、高功率脉冲系统, 通常选择 LTCC 材料作为封装基板材料^[4]。随着器件集成度的提升, 单位面积上承载的功率密度越来越大, 对基板的损耗、击穿特性提出更高的要求。为保证器件使用寿命和通讯系统稳定性, 研究低损耗、高介电击穿场强的 LTCC 陶瓷材料至关重要。Mcpherson 等^[5]通过对高介电常数(3.9~200.0)电介质理论击穿场强的研究, 推导出材料的击穿强度(E_b)与(ϵ_r)^{1/2} 成反比; 此外, Ohsato 等^[6]研究发现, 材料的介电常数 ϵ_r 与品质因数 $Q \times f$ 成反比。因此, 理论上可以获得一种低介电常数、高 $Q \times f$ (低损耗)、高击穿场强的 LTCC 陶瓷材料。

Al_2O_3 陶瓷介电性能优异, 常用作高压绝缘子、封装基板、滤波器、电容器等元器件^[7-8], 但其烧结温度高(>1 500 °C), 击穿强度低(约 20 kV/mm), 限制了其在 LTCC 领域的应用。本工作采用固相法, 将 Al_2O_3 陶瓷粉与玻璃粉按照不同的比例混合烧结, 制备得到满足 LTCC 技术要求的低损耗、高击穿场强的低温烧结陶瓷材料。并对样品的烧结性能、微观结构、介电性能、耐压性能进行了表征分析。

1 实验

1.1 样品制备

采用传统的固相烧结法制备 Al_2O_3 基玻璃/陶瓷, 根据文献[9]描述的熔融水淬法, 制备得到配比为 $6\text{La}_2\text{O}_3 \cdot 24\text{CaO} \cdot 50\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 20\text{SiO}_2$ (LCBS)的玻璃粉, 粉体的平均粒径为 $D_{50} = 2.03 \mu\text{m}$ 。按照 $x\text{LCBS} + (1-x)\text{Al}_2\text{O}_3$ 的比例称取 Al_2O_3 陶瓷粉(99.9%, 质量分数)与 LCBS 玻璃粉。其中, x (摩尔分数)取值 40%、42%、44%、46%, 为方便后续的分析讨论, 4 种玻璃/陶瓷分别记为 G40、G42、G44、G46。将混合粉料和球磨介质放入尼龙球磨罐中, 在行星式球磨机上以 365 r/min 的转速, 连续转动 6 h, 其中球磨介质为去离子水和 ZrO_2 球, $w(\text{料}):w(\text{球}):w(\text{水})=1:3:2$ (质量比)。浆料放入烘箱 100 °C 干燥 12 h, 加入浓度(质量分数)为 5%的自制 PVA 溶液进行手工造粒, 加入量为粉体质量的 6%~8%。将混合均匀的粉料在

压机上压制成直径 12 mm, 高度 6~8 mm 的圆柱厚片和高度为 1.0~1.5 mm 的圆柱薄片。成形后的素坯放入马弗炉中以 5 °C/min 的升温速率升温至 550 °C, 保温 2 h 排胶。排胶后的样品以相同的升温速率升温至 850~900 °C, 保温 30 min, 得到最终的陶瓷材料。圆柱薄片上下表面磨平抛光, 涂敷 Ag 电极, 进行性能测试。

1.2 性能表征

依据 Archimedes 排水法原理测试陶瓷样品的体积密度和气孔率^[10]。采用日本 Shimadzu 生产的 XRD-7000 型 X 射线衍射仪(XRD)对陶瓷样品进行物相组成分析。运用韩国 COXEM 生产的 EM-30 型台式桌面扫描电子显微镜观察陶瓷样品表面形貌, 并使用英国 Oxford 生产的 X-ACT 型能谱仪对样品微观元素组成进行分析。根据 Hakki-Coleman 提出的平行板开式腔谐振法^[11-12], 利用美国 Aglient 公司生产的 E8362B 型矢量网络分析仪对陶瓷样品的介电性能进行测试。采用武汉佰力博科技有限公司生产的 DMS-1000 型高温介电温谱测量系统, 对陶瓷样品的交流阻抗谱进行测量。样品厚度 0.900~1.000 mm, 电极尺寸 $\phi \sim 9 \text{ mm}$, 测试频率 100 Hz~1 MHz, 测试温度 675~775 °C。采用吉林省华洋仪器公司生产的 HJC-60kV 型直流电压击穿试验仪, 对陶瓷样品的击穿性能进行表征。由于仪器的量程为 60 kV, 将样品打磨抛光至 $(0.500 \pm 0.004) \text{ mm}$ 的厚度, 测试的升压速度为 0.5 kV/s, 每组试样至少测试 10 个样品。根据公式 $E_b = U_b/d$ (kV/mm), 计算得到样品的介电击穿场强。其中: E_b 为击穿强度, 单位 kV/mm; U_b 为击穿电压, 单位 kV; d 为样品厚度, 单位 mm。

2 结果与讨论

2.1 烧结性能分析

图 1 为陶瓷样品的体积密度和气孔率随玻璃含量的变化曲线。由图 1 可以看出, 不同烧结温度的样品, 随着玻璃含量的增加, 变化趋势基本相同: 先增大后减小, 850 °C 烧结的 G44 样品具有最低的气孔率, 致密性最好。这是因为 LCBS 玻璃作为一种烧结助剂, 具有较低的热转变温度(649 °C)^[9], 能够在低温形成液相, 加快 Al_2O_3 颗粒传质过程, 促进样品烧结致密化。但过量的玻璃会产生过多液相, 液相挥发产生气孔, 降低样品的致密性。

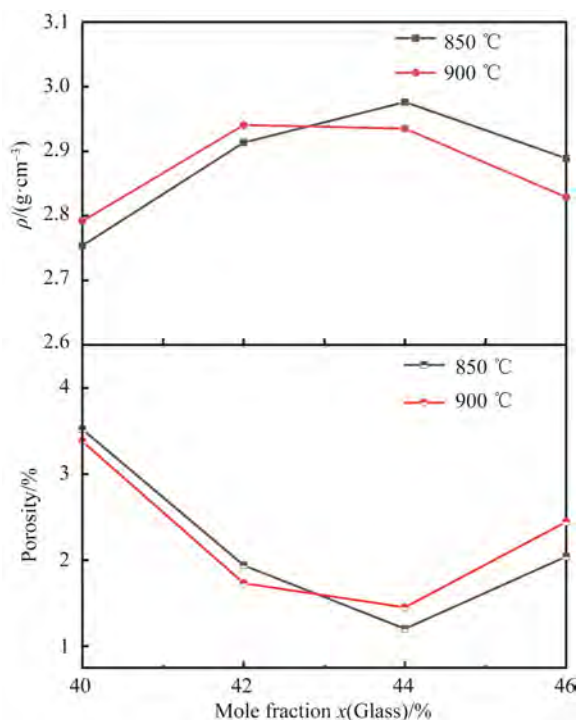


图1 样品的密度和气孔率随玻璃含量的变化曲线

Fig. 1 Bulk density and porosity of the samples vs. glass content

2.2 物相分析

图2为G40~G46玻璃/陶瓷在850~900 °C烧结30 min的XRD谱。由图2可见, 850 °C烧结的陶瓷样品, 主晶相为 Al_2O_3 相(JCPDS 46-1212)。随着玻璃含量的增加, 氧化铝的峰强有所减弱。900 °C烧结的陶瓷样品, 主晶相由 Al_2O_3 相(JCPDS 46-1212)和 $\text{LaAl}_{2.03}(\text{B}_4\text{O}_{10})\text{O}_{0.54}$ (JCPDS 87-0484)相组成。从23°~30°衍射峰的局部放大图可以发现, 随着玻璃含量的增加, $\text{LaAl}_{2.03}(\text{B}_4\text{O}_{10})\text{O}_{0.54}$ 相(101)晶面的衍射峰强不断增强。说明随着烧结温度的升高, LCBS玻璃将与基体 Al_2O_3 材料发生反应, 生成 $\text{LaAl}_{2.03}(\text{B}_4\text{O}_{10})\text{O}_{0.54}$ 结晶相, 并在烧结冷却过程中析出, 而剩余的玻璃以非晶态的形式存在于样品中。

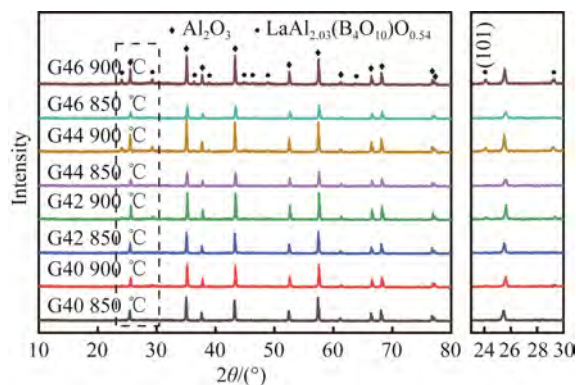


图2 不同烧结温度陶瓷样品的XRD谱

Fig. 2 XRD spectra of the sintered samples

2.3 显微结构分析

图3为陶瓷样品的微观形貌。烧结温度为850 °C时, 随着玻璃含量的增加, 样品表面的气孔不断减少, 陶瓷致密性不断增加, G44样品最为致密。表明添加适量的LCBS玻璃粉能有效促进样品的致密化。烧结温度为900 °C时, 在G44陶瓷中, 可以明显看到白色小颗粒相和片状结晶相。为了确定其组成, 对其进行EDS分析, 结果如图3所示。片状结晶相由元素La、Al、B、O 4种元素组成, 结合图2的XRD结果, 可以确定片状结晶相为 $\text{LaAl}_{2.03}(\text{B}_4\text{O}_{10})\text{O}_{0.54}$ 相。随着玻璃含量的增加, 条状形貌结晶相的量增多, 与图2的XRD谱结果互为印证。白色小颗粒由Al和O 2种元素组成, 通过计算, O:Al原子比接近1.5, 可以确定其为 Al_2O_3 结晶相。900 °C烧结的G46样品出现大量的气孔, 说明过量的玻璃在高温下会增加样品的气孔率, 不利于样品烧结致密。

2.4 介电性能分析

图4为烧结样品微波介电性能的测量结果。由图4a可见, 同一烧结温度, 随着玻璃含量的增加, 样品的 ϵ_r 变化趋势相同: 先增大后减小。当烧结温度为850 °C时, 随着玻璃含量(摩尔分数, 下同)从40%增加到46%, 样品的 ϵ_r 先从6.19升高到最大值7.14, 然后降低到6.93, 该变化趋势与图1中相应密度的变化趋势一致。一般情况下, 复合材料的介电常数遵守李氏对数法则^[13]: $\ln \epsilon_r = V_1 \ln \epsilon_1 + V_2 \ln \epsilon_2 + V_3 \ln \epsilon_3$, 其中: V_1 、 V_2 、 V_3 分别为 Al_2O_3 相、 $\text{LaAl}_{2.03}(\text{B}_4\text{O}_{10})\text{O}_{0.54}$ 相和玻璃相的体积分数; ϵ_1 、 ϵ_2 、 ϵ_3 分别为对应相的介电常数。由图2的XRD分析结果可见, 850 °C烧结样品主晶相为 Al_2O_3 结晶相, 900 °C烧结样品主晶相由 Al_2O_3 相和 $\text{LaAl}_{2.03}(\text{B}_4\text{O}_{10})\text{O}_{0.54}$ 相两相组成。研究表明, $\text{LaAl}_{2.03}(\text{B}_4\text{O}_{10})\text{O}_{0.54}$ 相的介电常数比玻璃相的介电常数大^[14-15]。因此, 理论上900 °C烧结样品的介电常数应大于850 °C烧结样品的介电常数。由图4a可见, 随着烧结温度的升高, G40和G42样品的 ϵ_r 上升, G44和G46样品的 ϵ_r 下降。结合图1的气孔率数据可知, 升高温度, G44和G46样品的气孔率提高, 而气孔的介电常数与空气相当, 降低了材料的 ϵ_r 。以上分析表明, 样品的 ϵ_r 由样品的密度和结晶相共同决定。

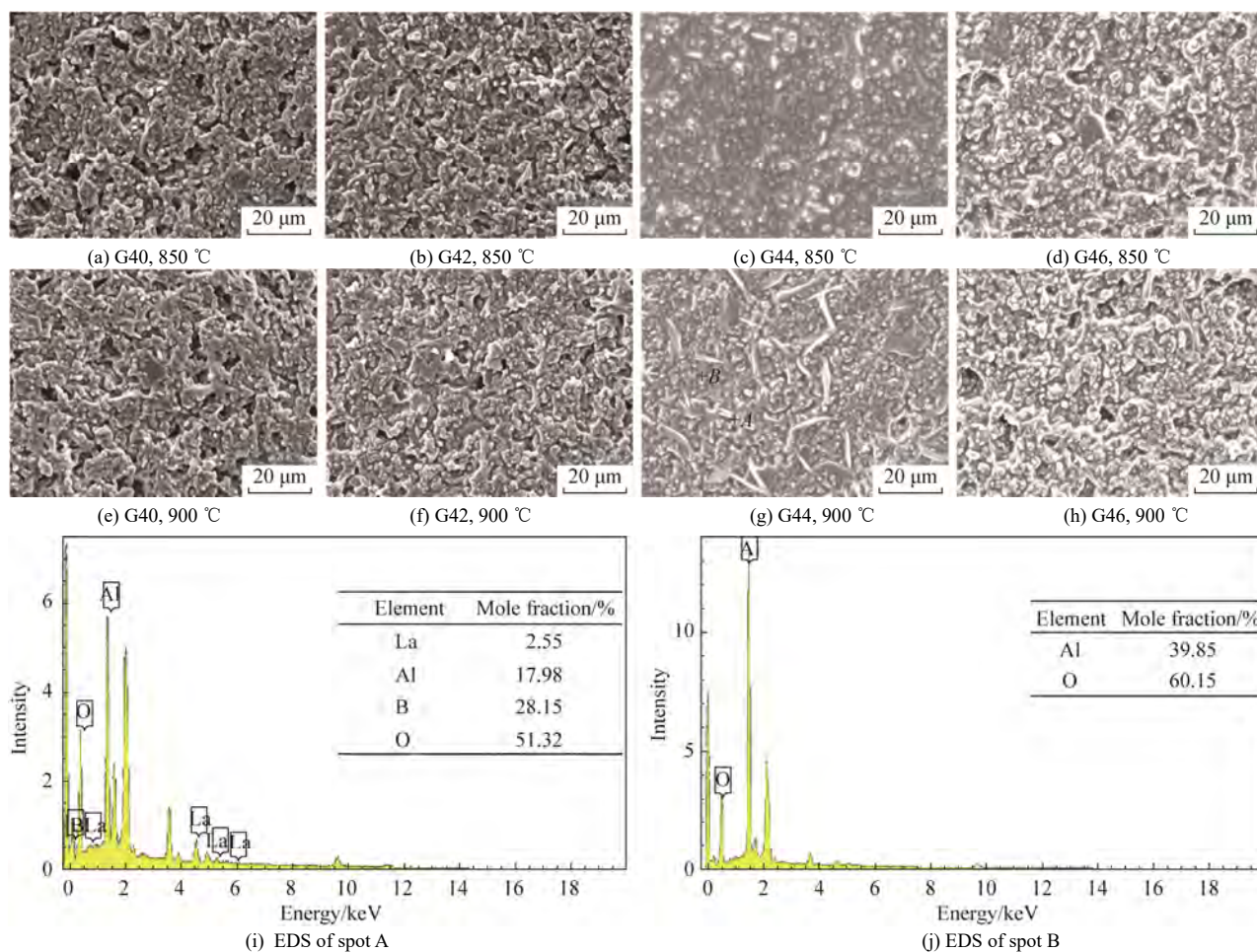


图 3 烧结样品的表面形貌和 EDS 谱

Fig. 3 Surface images and EDS analysis of the ceramics sintered at different temperature

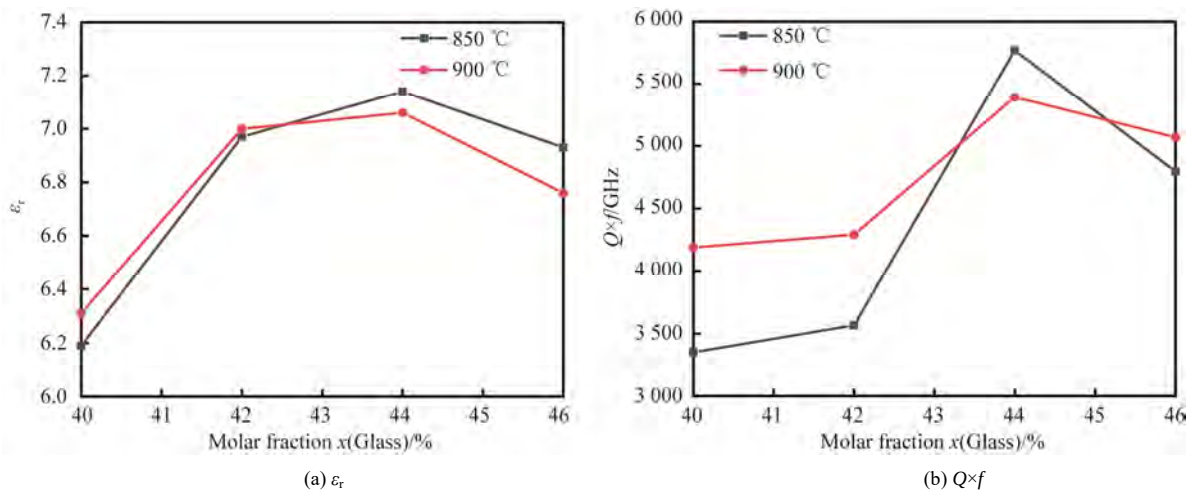


图 4 样品的介电性能

Fig. 4 Dielectric properties of the samples

图 4b 为不同烧结温度的样品随玻璃含量变化的 $Q \times f$ 曲线。研究表明,在微波频段,介电材料的损耗主要包括 2 种:由物质本身的主晶相振动模式产生的本征损耗和由缺陷、第二相、气孔、致密度等外界因素产生的非本征损耗^[16]。对于玻璃/陶瓷,主要讨论非本征因素对损耗的影响。随着玻璃含量的增加,同一

烧结温度下的样品, $Q \times f$ 值均呈现先增加后减小的趋势,850 °C 烧结的 G44 样品,介电损耗最小。当玻璃含量小于 44% 时,由于玻璃含量较少,升高温度有助于提升样品的致密性,从而提高样品的 $Q \times f$ 值,但此时样品中仍有大量气孔,导致损耗较大。当玻璃含量达到 44% 时,样品气孔率最低,具有最高的 $Q \times f$ 值。

玻璃含量继续增加到 46%，样品的 $Q \times f$ 值开始下降。这主要是由于过量的玻璃会产生大量的气孔，从而增加样品的介电损耗， $Q \times f$ 值降低。

2.5 击穿性能分析

图 5 为玻璃/陶瓷的击穿强度，由于测试结果具有一定的分散性，采用两参数 Weibull 统计分布计算材料的击穿场强^[17]，即公式： $\ln[-\ln(1-P_i)] = \beta \ln E - \beta \ln E_b$ 。其中： P_i 为累计击穿概率； E 为样品测试的击穿场强； E_b 为特征击穿强度，表示 $P_i = 63.2\%$ 的击穿场强； β 为击穿场强的分散程度，数值大于 1

才有效，且该值越大表明试验数据的分散性越小。由图 5a 可见，每个样品的 Weibull 分布系数 β 均大于 1，数值可靠。在图 5b 中，同一烧结温度，随着 LCBS 玻璃含量的增加，样品的击穿强度先升高到最大值，然后再降低。G40、G42、G44、G46 样品在不同烧结温度下，击穿强度最高值分别为 25.52、28.41、57.44、33.15 kV/mm。结合图 1 的气孔率变化曲线和图 3a~图 3h 的微观形貌，可以发现：少气孔、高致密的微观结构有助于击穿强度的提升。

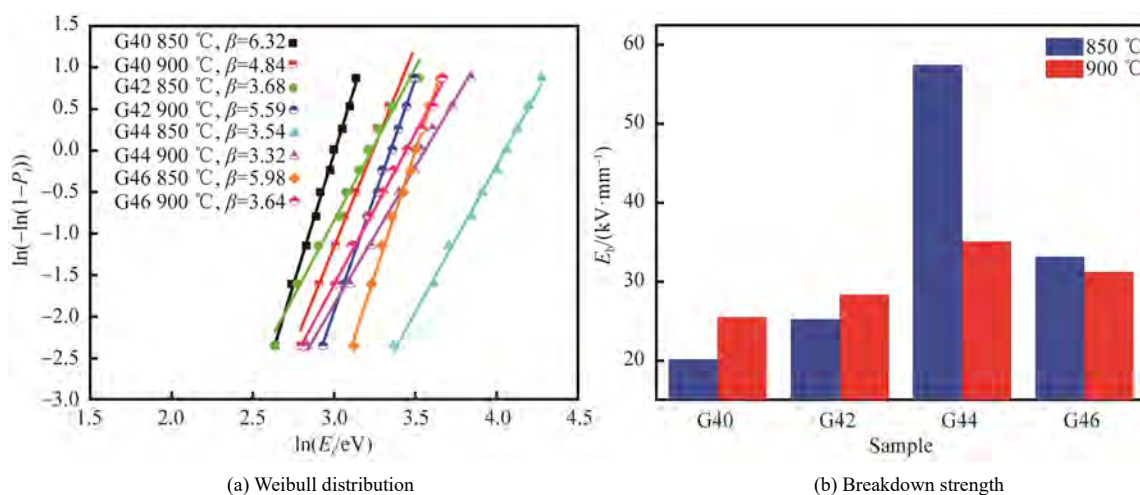


图 5 样品的击穿强度

Fig. 5 Breakdown strength of the samples

阻抗谱技术可以研究电子陶瓷内部的电学特性，计算电导活化能，确定材料的禁带宽度 E_g ，从而分析材料的绝缘特性^[18–20]。图 6 为烧结样品的阻抗复平面图(Z' - Z'')和电导活化能图。图 6a 给出了 G40~G46 样品在 725 °C 的测试温度下，从 100 Hz~1 MHz 的 Z' - Z'' 曲线，其中： Z' 和 Z'' 分别为阻抗的实部和虚部。由图 6a 可见，G40、G42、G44、G46 样品的电阻率分别为 0.17、0.28、14.4、3.64 $M\Omega \cdot cm$ ，G44 样品具有最高的电阻率值，这与 E_b 随玻璃含量的变化趋势一致。一般情况下，材料的电阻率越大，抗漏电流能力越强，获得的直流 E_b 越大。图 6b 所示为 G44 样品在 725 °C 下的实验数据(蓝色空心三角块)和拟合数据(红线)的 Z' - Z'' 曲线。样品出现了压制的圆弧，这是由于 2 个弛豫过程的弛豫时间常数相似，2 个半圆强烈重叠有关^[21]。在 ZView2 软件中，采用 2 个串联的 R -CPE 电路进行建模， R 和 CPE 分别表示电阻和恒相位元件(代表电容)。由图 6b 可见，G44 样品的测试数据与拟合结果匹配良好，表明可以用此等效电路对样品进行拟合计算。根据阻抗分析的一般解释^[18]，小圆弧(黑线)归属于

高频晶粒电阻的贡献，大圆弧(绿线)归属于低频晶粒-玻璃(晶界)的界面贡献，很显然，LCBS/ Al_2O_3 样品的传导机制由晶界主导。样品的电导率与活化能遵守 Arrhenius 方程，可以通过拟合计算得到样品的电导活化能^[22]，即公式 $\ln \sigma = -\frac{E_a}{k_B T} + \ln \sigma_0$ 。其中：

σ 为电导率，单位 $\Omega^{-1} \cdot cm^{-1}$ ； σ_0 为指前因子，单位 $\Omega^{-1} \cdot cm^{-1}$ ； E_a 为电导活化能，单位为 eV； k_B 为 Boltzman 常数， $8.617 \times 10^{-5} eV \cdot K$ ； T 为绝对温度，单位为 K。图 6c~图 6d 分别为晶粒和晶界的电导率随温度变化的 Arrhenius 拟合图。由拟合结果可知，850 °C 烧结样品的晶粒活化能 E_g 在 1.48~4.22 eV，晶界活化能 E_{gb} 在 1.51~3.68 eV 之间变化。当玻璃含量从 40% 增加到 46%，晶界活化能从 1.51 eV 升高到 3.68 eV，再降低到 2.41 eV，与样品击穿强度的变化趋势一致，G44 样品具有最高的晶界活化能 $E_{gb} = 3.68 eV$ 。依据介电材料的本征禁带宽度近似等于 2 倍活化能的关系^[19–20]，可以推断出 G44 样品具有最高的击穿强度，这与图 6a 的实验结果相符。以上分析表明，添加适量的 LCBS 玻璃粉有助于提高样品的活化能，

从而提升样品的击穿强度。

一般情况下,陶瓷的介电击穿主要分为热击穿和电击穿。为了深入研究陶瓷样品的介电击穿机制,图 7 为 G44 样品的击穿形貌照片。由图 7a 和图 7b 可见,击穿后的样品表面有 1 个明显的凹坑

和贯通的击穿通道。从图 7c 放大图可见,在击穿通道处有大量的微裂纹,表明样品所受局部热应力非常高。这些微裂纹可能是由热击穿引起的^[17,23-25],也可能是材料中存在的气孔引起的局部放电击穿所致,具体的击穿机制有待进一步研究。

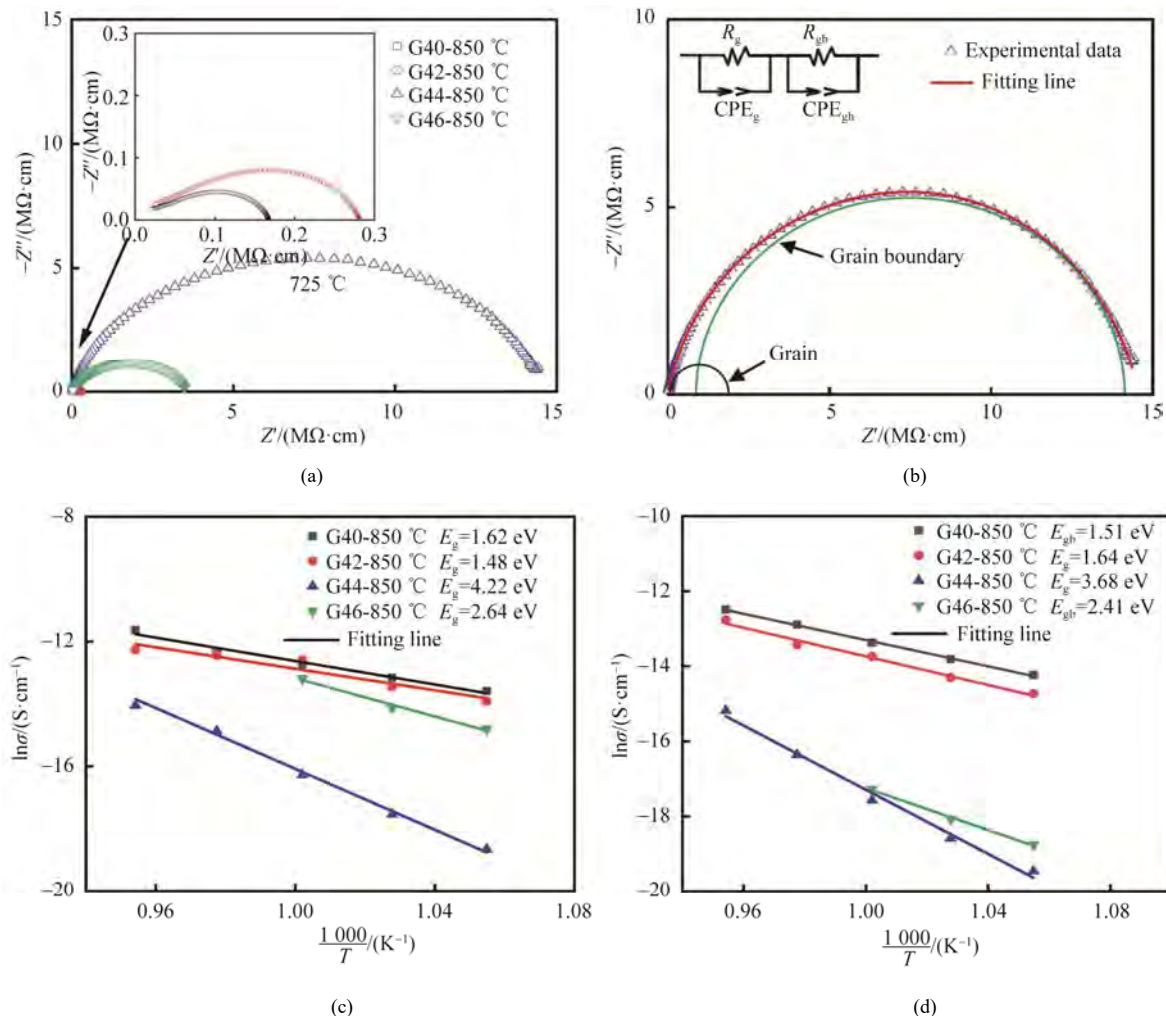


图 6 (a) 不同样品在 725 °C 的阻抗复平面图; (b) G44-850 °C 样品电响应模型图; (c) 晶粒电导率和 (d) 晶界电导率随温度变化的 Arrhenius 拟合图

Fig. 6 (a) Impedance complex plane (Z^*) plots of samples at 725 °C; (b) $Z'-Z''$ plots of experimental data and fitting line at 725 °C for G44-850 °C; Arrhenius-type plots of (c) grain conductivity, and (d) grain boundary conductivity

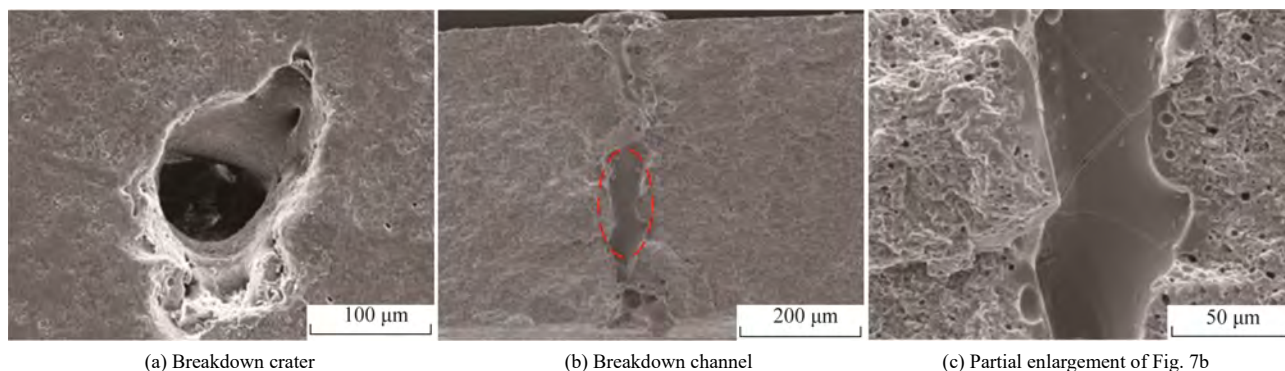


图 7 击穿后的 G44 样品微观形貌

Fig. 7 Micromorphologies of G44 sample after breakdown

表 1 列出了一些商用 LTCC 陶瓷的性能, 由表 1 可知, 目前商用的 LTCC 材料, 烧结温度基本在 850~900 °C, 介电常数 <10 , $Q \times f < 5\,000$ GHz。在本实验中获得 G44 陶瓷 $Q \times f = 5\,769$ GHz, $\epsilon_r = 7.14$, $E_b = 57.44$ kV/mm, 表明该材料在 LTCC 领域具有巨大的应用潜力。

表 1 一些商用 LTCC 陶瓷的性能^[26–28]

Table 1 Properties of some commercial LTCC ceramics^[26–28]

Material	Sintering temperature/°C	ϵ_r	$Q \times f$ /GHz	E_b /(kV·mm ⁻¹)
Ferro A6M	850	5.9	1 500	>40
NEC-MLS-61	900	8.1	360	
Dupont 951	850	7.85	900	>40
Dupont 943	850	7.5	3 000	>40
G44 (This work)	850	7.14	5 769	57.44

3 结论

通过固相烧结法制备了一系列低介、低损耗、高耐压的 Al₂O₃ 基 LTCC 玻璃/陶瓷, 复合材料由 Al₂O₃ 陶瓷粉和 LCBS 玻璃粉组成。结果表明, 添加适量的 LCBS 玻璃可以有效降低 Al₂O₃ 陶瓷的烧结温度, 提高样品性能, 而过量的 LCBS 玻璃会产生气孔, 增加样品介电损耗。850 °C 烧结的 G44 陶瓷具有最低气孔率(1.20%)和最高击穿强度(57.44 kV/mm), 同时兼具优良的介电性能: $\epsilon_r = 7.14$, $Q \times f = 5\,769$ ($f = 13$ GHz)。该材料优异的介电性能和较高的介电击穿强度, 可以有效提升通讯系统的可靠性, 有望应用于高功率滤波器、高集成封装基板等微波/毫米波器件。

参考文献:

- [1] SAMANTA K K. Pushing the envelope for heterogeneity: multilayer and 3-D heterogeneous integrations for next generation millimeter- and submillimeter-wave circuits and systems[J]. IEEE Microw Mag, 2017, 18(2): 28–43.
- [2] 曾群, 李蔚, 郭景坤. 固有烧结温度低的 Li 基微波介质陶瓷材料[J]. 硅酸盐学报, 2009, 37(11): 1951–1956.
ZENG Qun, LI Wei, GUO Jingkun. J Chin Ceram Soc, 2009, 37(11): 1951–1956.
- [3] LEI W, YAN Y Y, WANG X H, et al. Improving the breakdown strength of (Mg_{0.9}Zn_{0.1})₂(Ti_{1-x}Mn_x)O₄ ceramics with low dielectric loss[J]. Ceram Int, 2015, 41(1): 521–525.
- [4] SU Y P, LI Q, LEE F C. Design and evaluation of a high-frequency LTCC inductor substrate for a three-dimensional integrated DC/DC converter[J]. IEEE Trans Power Electron, 2013, 28(9): 4354–4364.
- [5] MCPHERSON J W, KIM J, SHANWARE A, et al. Trends in the ultimate breakdown strength of high dielectric-constant materials[J]. IEEE Trans Electron Devices, 2003, 50(8): 1771–1778.
- [6] OHSATO H, TSUNOOKA T, SUGIYAMA T, et al. Forsterite ceramics for millimeterwave dielectrics[J]. J Electroceram, 2006, 17(2): 445–450.
- [7] TOUZIN M, GOEURLOT D, GUERRET-PIÉCOURT C, et al. Alumina based ceramics for high-voltage insulation[J]. J Eur Ceram Soc, 2010, 30(4): 805–817.
- [8] WEI M J, HE F, CAO X H, et al. Structure and sintering behavior of BaO–SrO–B₂O₃–SiO₂ sealing glass for Al₂O₃ ceramic substrates[J]. Ceram Int, 2022, 48(19): 27718–27730.
- [9] WANG F, LOU Y H, LI Z J, et al. Improved flexural strength and dielectric loss in Al₂O₃-based LTCC with La₂O₃–CaO–B₂O₃–SiO₂ glass[J]. Ceram Int, 2021, 47(7): 9955–9960.
- [10] 朱海玲, 陈沙鸥, 李达, 等. 测定陶瓷材料密度及其气孔率的方法[J]. 理化检验: 物理分册, 2006, 42(6): 289–291.
ZHU Hailing, CHEN Shaou, LI Da, et al. Phys Test Chem Anal (Part A: Physical Testing) (in Chinese), 2006, 42(6): 289–291.
- [11] HAKKI B W, COLEMAN P D. A dielectric resonator method of measuring inductive capacities in the millimeter range[J]. IRE Trans Microw Theory Tech MTT, 1960, 8: 402–410.
- [12] COURTNEY W E. Analysis and evaluation method of measuring the complex permittivity and permeability of microwave insulators[J]. IEEE Trans Microw Theory Tech MTT, 1970, 18: 476–485.
- [13] LAN X K, LI J, LI J P, et al., Phase evolution and microwave dielectric properties of novel LiAl_{5-x}Zn_xO_{8-0.5x}-based (0≤x≤0.5) ceramics[J]. J Am Ceram Soc, 2020, 103: 1105–1112.
- [14] CHEN X Y, WANG F L, ZHANG W J. Low temperature sintering and dielectric properties of La₂O₃–B₂O₃–Al₂O₃ glass-ceramic/Al₂O₃ composites for LTCC applications[J]. J Mater Sci-Mater El, 2019, 30: 3098–3106.
- [15] XIANG Y, HAN J, LAI Y M, et al. Glass structure, phase transformation and microwave dielectric properties of CaO–B₂O₃–SiO₂ glass-ceramics with addition of La₂O₃[J]. J Mater Sci-Mater El, 2017, 28: 9911–9918.
- [16] 文智弘, 孙成礼, 张树人, 等. MgO 掺杂对 Al₂O₃ 基微波介质陶瓷材料烧结及介电性能的影响[J]. 电子元件与材料, 2021, 40(7): 649–659.
WEN Zhihong, SUN Chengli, ZHANG Shuren, et al. Electron Compon Mater (in Chinese), 2021, 40(7): 649–659.
- [17] ZHANG C, CHEN Y, ZHOU M, et al. Achieving ultrahigh dielectric breakdown strength in MgO-based ceramics by composite structure design[J]. J Mater Chem C, 2019, 7(26): 8120–8130.
- [18] IRVINE J T S, SINCLAIR D C, WEST A R. Electroceramics: characterization by impedance spectroscopy[J]. Adv Mater, 1990, 2(3): 132–138.
- [19] LI M, PIETROWSKI M J, DE SOUZA R A, et al. A family of oxide ion conductors based on the ferroelectric perovskite Na_{0.5}Bi_{0.5}TiO₃[J]. Nat Mater, 2014, 13: 31–35.
- [20] ZANG J D, LI M, SINCLAIR D C, et al. Impedance spectroscopy of (Bi_{1/2}Na_{1/2})TiO₃–BaTiO₃ ceramics modified with (K_{0.5}Na_{0.5})NbO₃[J]. J Am Ceram Soc, 2014, 97(5): 1523–1529.
- [21] LI J, LAN X K, WANG F, et al. Impedance spectroscopy and dielectric properties of BaAl_(2-2x)(Zn_{0.5}Ti_{0.5})₂O₄ ceramics[J]. Ceram Int, 2020, 46(2): 1830–1835.
- [22] CHEN X Q, LI H, ZHANG P C, et al. SrZnV₂O₇: A low-firing microwave dielectric ceramic with high-quality factor[J]. J Am Ceram Soc, 2021, 104: 5110–5119.
- [23] ZHOU H Y, LIU X Q, ZHU X L, et al. CaTiO₃ linear dielectric ceramics with greatly enhanced dielectric strength and energy storage density[J]. J Am Ceram Soc, 2018, 101: 1999–2008.
- [24] LIEBAULT J, VALLAYER J, GOEURLOT D, et al. How the trapping of charges can explain the dielectric breakdown performance of alumina ceramics[J]. J Eur Ceram Soc, 2001, 21(3): 389–397.
- [25] NEUSEL C, JELITTO H, SCHMIDT D, et al. Dielectric breakdown of alumina single crystals[J]. J Eur Ceram Soc, 2012, 32(5): 1053–1057.
- [26] SEBASTIAN M T, UBIC R, JANTUNEN H. Microwave materials and applications [M]. Hoboken, NJ: John Wiley and Sons, Inc, 2017.
- [27] SEBASTIAN M T, JANTUNEN H. Low loss dielectric materials for LTCC applications: A review[J]. Int Mater Rev, 2008, 53(2): 57–90.
- [28] GOLONKA L J. Technology and applications of low temperature cofired ceramic (LTCC) based sensors and microsystems[J]. Bull Pol Ac Tech, 2006, 54(2): 221–231.