

面向 5G/6G 无线通信和先进封装技术的低介电常数 无机电介质材料研究进展

包 健, 李正巧, 郭 靖, 王昌昊, 席兆琛, 周 迪*

(西安交通大学 电子科学与工程学院, 陕西 西安 710049)

摘 要:以陶瓷材料、玻璃-陶瓷复合材料和微晶玻璃为代表的低介电常数($\epsilon_r < 10$)无机电介质功能材料在高频高速通信、高密度集成封装及高可靠性电子设备等尖端技术中发挥着不可替代的作用。其中,高温共烧陶瓷(HTCC)技术中通常使用高强度氧化铝陶瓷、高热导率氮化铝陶瓷或低介电常数硅基陶瓷作为绝缘封装材料。低温/超低温共烧陶瓷(LTCC/ULTCC)技术则使用本征低烧结温度陶瓷、助烧剂降烧陶瓷、玻璃-陶瓷复合材料及微晶玻璃等作为封装材料。本文对上述低介电常数无机电介质材料的研究进展进行了详细的论述和总结,同时对利用机器学习(ML)预测和设计新型低介电封装材料的前景进行展望,为相关体系的发展提供新的路径。

关键词:低介电常数;高温共烧陶瓷;低温/超低温共烧陶瓷;机器学习

Research progress on low dielectric constant inorganic dielectric materials for 5G/6G wireless communications and advanced packaging technologies

BAO Jian, LI Zhengqiao, GUO Jing, WANG Changhao, XI Zhaochen, ZHOU Di*

(School of Electronic Science and Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: Functional inorganic dielectric materials with low dielectric constants ($\epsilon_r < 10$), represented by ceramic materials, glass-ceramic composites, and microcrystalline glass, play an irreplaceable role in cutting-edge technologies such as high-frequency and high-speed communications, high-density integrated packaging, and high-reliability electronic devices. Among these, high-temperature co-fired ceramic (HTCC) technology employs high-strength alumina ceramics, high thermal conductivity aluminum nitride ceramics, or low-dielectric-constant silicon-based ceramics as insulating packaging materials. Low-temperature/ultra-low-temperature co-fired ceramic (LTCC/ULTCC) technology employs intrinsically low-sintering-temperature ceramics, sintering aid-reduced sintering-temperature ceramics, glass-ceramic composites, and microcrystalline glass as packaging materials. This paper elaborated and summarized the above low-dielectric-constant inorganic dielectric materials, and prospected the application of machine learning (ML) in the prediction and design of novel low-dielectric and low-loss packaging materials, providing a new route for the development of related systems.

Key words: low dielectric constant; HTCC; LTCC/ULTCC; machine learning

0 引言

随着第五代(5G)及第六代(6G)通信系统向更高频率拓展,电子元器件的工作频率(f_0)也加速向高频化迈进。由公式(1)可知, c_0 为恒定的光速,随着 f_0 的升高,在信号传输超过某一特定距离(d)时引起的延迟(φ)现象会变得更加明显,减小基体材料的介电常数(ϵ_r)是一种行之有效的降低器件固有延迟的方案。

$$\varphi = \frac{2\pi f_0 d \sqrt{\epsilon_r}}{c_0} \quad (1)$$

同时,由公式(2)可知,当器件的工作频率一定时,器件的尺寸(L_0)与材料的介电常数成反比,即介电常数越大越有利于器件的小型化。但是随着 f_0 的升高,若继续使用高介电常数材料,反而会使得器件的尺寸过小而难以加工^[1]。

$$L_0 \propto \frac{c_0}{f_0 \sqrt{\epsilon_r}} \quad (2)$$

因此,在 5G/6G 通信系统向毫米波(mmWave)乃至太赫兹(THz)频段发展的背景下,低介电常数($\epsilon_r < 10$)无机电介质绝缘材料因其能够有效降低信号传输损耗、减少信号延迟并减弱基板与金属电极

间的耦合效应，相较于传统高介电常数材料（例如 K20、K40 及 K60 陶瓷），在追求极快信号传输速率的未来高频通信系统中展现出更显著的应用潜力与价值。

2025 年 1 月，中国信通院发布的《全球数字经济发展研究报告（2024）》显示，信息与通信技术（ICT）产业及数字化资本已经成为驱动全球经济增长的关键力量^[2]。根据 2023 年公布的贸易数据，全球主要国家的 ICT 产品总出口贸易金额达 2.4 万亿美元，约占全球总出口贸易的 11.1%。为满足 5G/6G 通信、人工智能及高性能集群计算等领域对低延迟、强算力与高集成度的迫切需求，集成电路及电子封装技术正向三维集成和系统级封装等先进范式发展，相关领域的变革和蓬勃发展对电介质材料提出了更严格要求，也进一步促进了基础功能材料领域的创新。

高温共烧陶瓷（HTCC）是一种在高温下（温度通常高于 1 200℃），将多层高烧结温度生瓷带（如 Al₂O₃、AlN）与高熔点的金属电极（如 W、Mo）共同烧结形成多层互连结构的技术，其具有机械强度高、布线密度高、热导率好及热稳定性优异等特点^[3]。低温/超低温共烧陶瓷（LTCC/ULTCC）技术则是在

相对低温下（温度通常低于 950℃ 或 650℃），将 Cu、Ag 或 Al 等高电导率金属导体与低烧结温度陶瓷生坯共烧形成多层立体电路结构，实现三维电路集成，其具有介电常数可调范围宽、高频特性优良、易于集成无源元件并可进行烧结前分层检测等特点，并且在工艺细节及生产成本等方面展现出显著优势^[4-6]。HTCC/LTCC 技术的典型工艺流程如图 1 所示，主要包括：浆料制备及流延成型；生瓷带切割、打孔、填充和电路印刷；多层生带的精准对齐和叠压；共烧及检测^[7]。HTCC 技术最早起源于美国开发的厚膜流延及多层叠压技术，并在 20 世纪 80 年代由 IBM 公司实现商业化^[8]。但 HTCC 技术存在一些固有的局限：由于该技术需要使用高烧结温度的无机电介质材料，必须采用高熔点金属作为电极，但是该类材料电导率相对较低，难以应用于高频电路中。与 HTCC 技术相比，LTCC/ULTCC 技术使用低烧结温度的电介质材料作为基体，因此可以采用高电导率金属作为导体材料，有利于减少信号延迟和功耗，更加适用于未来高频通信网络中^[9]。但采用 LTCC/ULTCC 技术制备的元件通常在绝缘性能、机械强度和热导率等方面存在劣势，因而不适用于大功率环境中。

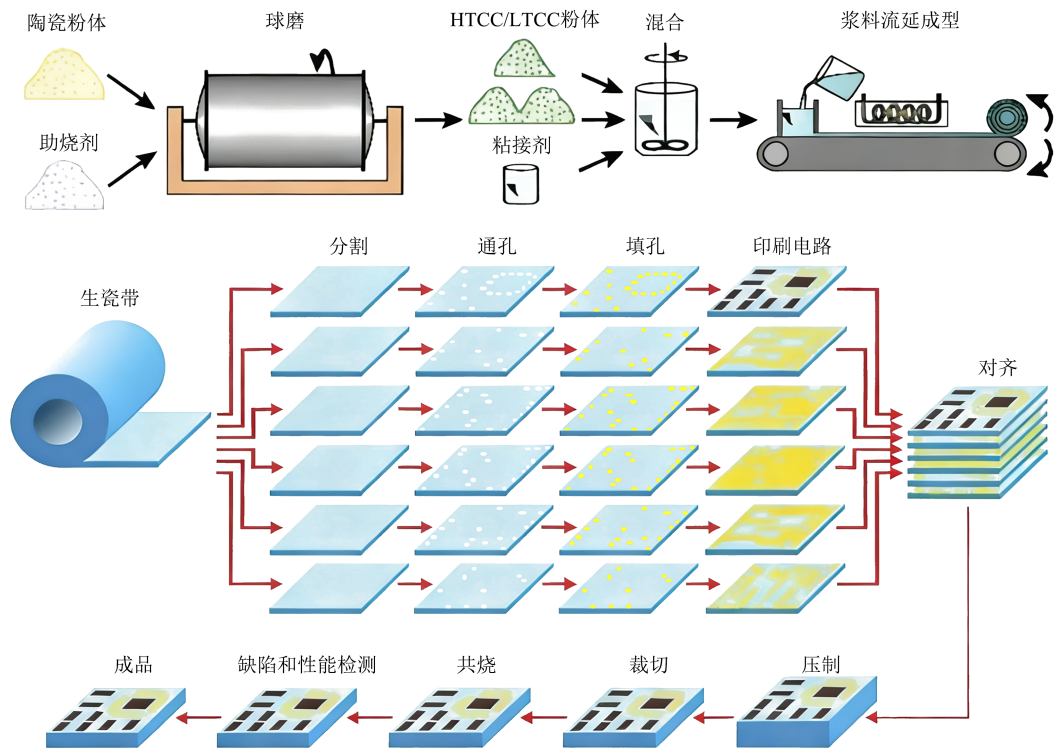


图1 HTCC/LTCC技术工艺流程图

Fig.1 Flowchart of HTCC/LTCC technology process

此外,低介电常数 HTCC/LTCC 粉体材料的开发长期依赖于“经验+试错”的传统开发模式,随着先进封装技术对材料综合性能日益严苛的要求,传统开发模式难以同时对多项指标优化的局限性愈加凸显。因此,本文综述了低介电常数 HTCC/LTCC 粉体材料的研究进展,涵盖当前广泛应用的商用体系和研究热点体系,并对机器学习(ML)辅助低介电常数粉体材料的开发进行介绍和展望。

1 HTCC 用低介电常数陶瓷材料

1.1 氧化铝(Al_2O_3)

氧化铝粉体是目前最主流的 HTCC 粉体材料,其存在 3 种常见类型,分别为 α - Al_2O_3 、 β - Al_2O_3 和 γ - Al_2O_3 ,其中 β - Al_2O_3 并非纯氧化铝,而是一种由钠氧化物与氧化铝组成的铝酸盐^[10]。 α - Al_2O_3 和 γ - Al_2O_3 的晶体结构如图 2 所示,其中 α - Al_2O_3 (又称刚玉)属于三方晶系,是氧化铝最为稳定的晶型^[11-12]。作为最通用的精细陶瓷材料之一, α - Al_2O_3 具有高抗弯强度(300~400 MPa)、高熔点(约为 2 050℃)、高绝缘性和高耐化学腐蚀性,其热膨胀系数($\text{RT}\sim 400^\circ\text{C}$)约为 $7.2\times 10^{-6}^\circ\text{C}^{-1}$,热导率约为 20~30 W/(m·K)。 γ - Al_2O_3 为缺陷型尖晶石结构,具有大

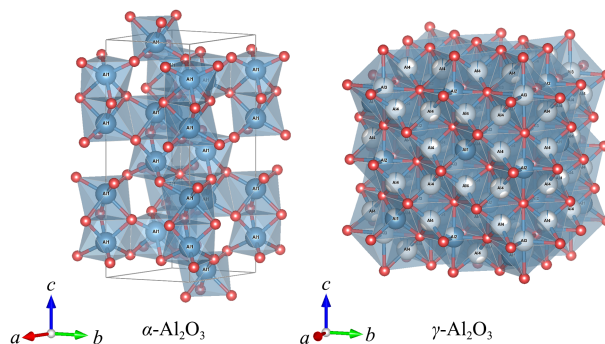


图2 α - Al_2O_3 和 γ - Al_2O_3 的晶体结构

Fig.2 The crystal structures of α - Al_2O_3 and γ - Al_2O_3

的比表面积,适合应用在催化领域,但是其热稳定性较差,在 1 200℃ 以上会不可逆地转化为 α 相^[13-15]。根据英国学者 N M ALFORD 等^[16]的报道, α - Al_2O_3 陶瓷在 1 550℃ 下烧结 5 h 可以达到致密状态,此时陶瓷样品的介电损耗($\tan\delta$)低至 2.7×10^{-5} (10 GHz), ϵ_r 约为 10,谐振频率温度系数(TCF)约为 $-60\times 10^{-6}^\circ\text{C}^{-1}$ 。日本京瓷集团(KYOCERA)作为 HTCC 领域的领先企业,其开发的 AO700/AO800 系列高弯曲强度氧化铝陶瓷的抗弯强度分别可达 620 MPa 与 740 MPa (见表 1),此类材料有助于在封装过程中实现更薄的底层结构与更窄的壁宽,对于微型器件的高密度封装具有重要意义。

表1 京瓷氧化铝 HTCC 粉体材料特性

Table 1 The characteristics of alumina HTCC powder material from Kyocera

材料名称		A440	A443	A473	AO610W	AO700	AO800	A476
颜色		黑紫色	黑色	白色	浅粉色	灰色	灰色	白色
特性		通用	表面贴装	高频	高发热	高抗弯强度		射频
介电常数	1 MHz	9.8	9.6	9.1	9.2	9.4	9.4	9.4
	2 GHz	—	—	8.5	9.0	9.2	9.4	—
介电损耗/($\times 10^{-4}$)	1 MHz	24	5	5	9	6	4	4
	2 GHz	—	—	10	11	6	13	—
热膨胀系数($\text{RT}\sim 400^\circ\text{C}$)/($\times 10^{-6}^\circ\text{C}^{-1}$)		7.1	6.9	6.9	6.9	7.2	7.5	7.2
热导率/(W/(m·K))		14	18	18	17	21	16	24
抗弯强度/MPa		400	460	400	460	620	740	350
杨氏模量/GPa		310	310	270	281	315	300	320

1.2 氮化铝(AlN)

随着微电子和集成电路技术的发展,电路规模和集成密度不断增大,对封装材料的散热能力提出了更加严苛的要求。 AlN 属于六方纤锌矿结构,空间群为 $\text{P6}_3\text{mc}$ (No.186), $a=b=3.119\text{ \AA}$, $c=4.991\text{ \AA}$ 。在 AlN 的晶体结构中,每个 Al 原子与四个 N 原子相连,形成在 [001] 方向上略微拉长的四面体单元,如图 3 所示。由于 Al-N 键极高的共价键强度、 AlN 晶体结构高的

对称性和低的原子量,使其导热能力远高于 Al_2O_3 , AlN 的理论热导率高达 320 W/(m·K)^[17-18]。在常压条件下,通入氮气作为保护气氛的 AlN 陶瓷的烧结温度约为 1 850℃, AlN 陶瓷在低频 (1 MHz) 下表现出低的介电损耗,约为 8×10^{-4} ,在微波频段下的介电损耗在 10^{-3} 量级^[19]。由于 Al-N 键的极化能力弱于 Al-O 键, AlN 陶瓷的介电常数约为 9,略小于 Al_2O_3 陶瓷。但是,由于 AlN 陶瓷在烧结过程中难以致密且易氧

化,致使实际烧结的 AlN 陶瓷样品热导率常在 100 W/(m·K)左右,远低于理论值。因此,当下的研究热点集中于 AlN 陶瓷的致密化烧结和晶格氧杂质的去除。添加玻璃、碱金属及碱土金属氧化物、稀土或氟化物作为助烧剂是研究 AlN 陶瓷的主流手段,表 2 对近几年 AlN 陶瓷的研究进行了汇总,由于 AlN 陶瓷的制备及生产工艺繁杂,成本也相对更高,使其在 HTCC 粉体中的占比远低于 Al₂O₃ [20]。

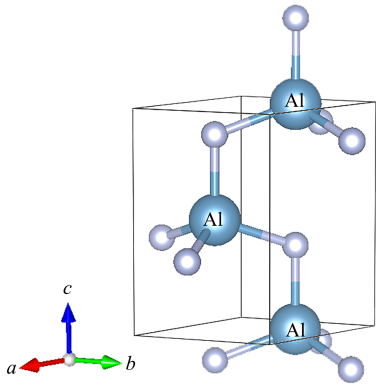


图3 氮化铝的晶体结构
Fig.3 The crystal structure of aluminum nitride

表2 AlN 陶瓷的助烧剂和烧结工艺研究进展
Table 2 The research progress on sintering aids and sintering processes for AlN ceramics

烧结温度 /℃	助烧剂/工艺	热导率 /(W/(m·K))	抗弯强度 /MPa	参考 文献
1 850	Y ₂ O ₃ +长时间退火	222	—	[21]
1 650	CaF ₂ -Li ₂ CO ₃ -Y ₂ O ₃	141	—	[22]
1 650	CaF ₂ -Dy ₂ O ₃	142	—	
1 900	CaF ₂	190.4	—	[23]
1 600	CaZrO ₃ -Y ₂ O ₃ +两步法烧结	156	560	[24]
1 700	Y ₂ O ₃ -CeO ₂	176	392	[25]
1 900	CeO ₂	156	—	[26]
1 850	Y ₂ O ₃	205	295	[27]
1 860	Y ₂ O ₃	206	344	[28]
1 750	Sm ₂ O ₃ -Y ₂ O ₃ -CaO	153.7	402	[29]

1.3 其他材料

根据 Clausius-Mossotti 方程(简称 C-M 方程,见公式(3)),由于真空介电常数(ϵ_0)与单位体积内的分子数(n_0)在常温常压下保持不变,因此电介质材料的介电常数(ϵ_r)与其离子极化率(α)成正比关系,这为低介电常数电介质陶瓷材料的开发奠定了理论基础[30-31]。

$$\frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r + 2} = \frac{n_0 \alpha}{3 \epsilon_0}$$

(3)

由于 B(0.05 Å³)、Al(0.79 Å³)和 Si(0.87 Å³)元素的离子极化率(Shannon 值)明显低于其他元素,因此富含相关元素的陶瓷材料更易表现出低介电常数[32]。表 3 对烧结温度高于 950℃的低介电常数微波介质陶瓷进行了汇总,可以发现 SiO₂的介电常数为 3.83,是除 H₃BO₃(易潮解、热稳定性差)外介电常数最低的致密无机电介质材料[33-34]。在实际的商业应用中,硅基 HTCC 粉体主要以莫来石(SiO₂-Al₂O₃二元系)和氮化硅(Si₃N₄)为主。此外,Mg₂SiO₄(镁橄榄石)、Mg₂Al₄Si₅O₁₈(堇青石)和 CaSiO₃(硅灰石)等硅基微波电介质材料也表现出低的介电常数($\epsilon_r < 7$)和优良的品质因数($Q \cdot f > 40\,000$ GHz),有望在未来毫米波技术及超大规模集成电路中得到应用[35]。

堇青石陶瓷的烧结温度约为 1 400℃,其介电常数为 6.20, $Q \cdot f = 40\,000$ GHz,TCF 为 $-24 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$,该陶瓷因其极低的热膨胀系数(约 $2.6 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$)而受到研究者的广泛关注[36-37]。Mg₂Al₄Si₅O₁₈晶体属于正交晶系 *Cccm* (No.66)空间群,其晶体结构由[Si₄Al₂O₁₈]内六元环与[AlO₄]-[MgO₆]-[SiO₄]外六元环沿 *c* 轴交替连接形成,中间为环形通道,如图 4 所示。SONG K X 课题组[38-41]对堇青石陶瓷开展了一系列的研究,发现其介电性能与内六元环的对称性存在密不可分的联系,并通过正交试验的方式对堇青石的 Mg 位和 Al 位展开了一系列的协同掺杂研究。结果表明,同时对堇青石的 Mg 位和 Al 位进行掺杂时,Al 位的最佳掺杂量为 0.15。此时,Mg_{1.8}(Ni_{0.25}Co_{0.75})_{0.2}-Al_{3.85}(Ge_{0.5}Mg_{0.5})_{0.15}Si₅O₁₈的微波介电性能为: $\epsilon_r = 4.59$, $Q \cdot f = 153\,386$ GHz,TCF = $-25.518 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 。TIAN H R 等[42]进一步对堇青石的 Si 位进行掺杂研究,通过传统固相法成功制备了 Ge⁴⁺取代的 Mg₂Al₄(Si_{1-x}Ge_x)₅O₁₈陶瓷,其具备优异的介电性能: $\epsilon_r = 4.90$, $Q \cdot f = 128\,200$ GHz,TCF = $-21.01 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 。此外,堇青石也是 IBM 公司开发的 LTCC 用 MgO-Al₂O₃-SiO₂-Li₂O 微晶玻璃的主要析出相。

2 LTCC/ULTCC 用低介电常数陶瓷材料

2.1 本征低烧结温度陶瓷

通常,将自身烧结温度低于 950℃的微波介质陶瓷体系称为本征低烧陶瓷体系,由于该类陶瓷在烧结过程中不需要引入额外的助烧剂,使得本征低烧陶瓷材料常表现出优异的微波介电性能[64-66]。大多数本征低烧 LTCC/ULTCC 陶瓷体系以低熔点氧

表3 烧结温度高于950℃的低介电常数微波介质陶瓷

Table 3 Low dielectric constant microwave dielectric ceramic with sintering temperatures exceeding 950℃

物相组成	烧结温度 /℃	ϵ_r	$Q \cdot f$ /GHz	TCF /($\times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$)	参考 文献
SiO ₂ (非晶)	熔融法	3.83	12 100	-8.30	[33]
Al ₂ SiO ₅	1 525	4.43	41 800	-17.00	[43]
Mg ₃ P ₂ O ₈	1 150	4.90	31 000	-19.20	[44]
Li ₂ MgSiO ₄	1 250	5.10	15 385	—	[35]
LiAlO ₂	1 250	5.45	14 748	-190.00	[45]
CaCuSi ₄ O ₁₀	1 045	5.75	20 210	-38.90	[46]
SrCuSi ₄ O ₁₀	1 025	5.77	48 790	-46.30	[46]
Li ₂ ZnSiO ₄	1 250	5.80	14 700	-96.60	[47]
BaCuSi ₄ O ₁₀	1 100	6.03	49 952	-18.00	[48]
CaCoSi ₂ O ₆	1 175	6.04	12 457	-18.90	[43]
α -Mg ₂ P ₂ O ₇	1 150	6.10	38 175	-746.00	[49]
SrZnSi ₃ O ₈	1 150	6.12	78 064	-33.20	[43]
Mg ₂ Al ₄ Si ₅ O ₁₈	1 440	6.20	40 000	-24.00	[36]
Ni ₃ P ₂ O ₈	1 200	6.23	83 430	-24.63	[44]
BaAl ₂ Si ₂ O ₈	1 450	6.36	44 800	-46.90	[35]
Zn ₂ SiO ₄	1 340	6.60	219 000	-61.00	[43]
BaZnSi ₃ O ₈	1 100	6.60	52 400	-24.50	[43]
BaSi ₂ O ₅	1 250	6.70	59 500	-28.00	[50]
SrMgSi ₂ O ₆	1 125	6.70	25 800	-46.00	[51]
MgSiO ₃	1 380	6.70	121 200	-17.00	[52]
Co ₂ P ₂ O ₇	1 160	6.76	36 400	-23.90	[53]
CaSiO ₃	1 500	6.80	42 200	-19.00	[54]
SrSiO ₃	1 500	6.80	12 100	-66.00	[54]
Mg ₂ SiO ₄	1 500	6.80	270 000	-70.00	[55]
CaMgSiO ₄	1 350	7.05	62 500	-62.90	[56]
α -Sr ₂ P ₂ O ₇	1 150	7.11	35 500	-23.00	[57]
Sr ₂ Al ₂ SiO ₇	1 525	7.20	33 000	-37.00	[35]
LiYbSiO ₄	1 140	7.30	25 257	4.50~8.00	[58]
Ba ₃ Si ₈ O ₂₁	1 200	7.30	16 700	25.00	[50]
Mn ₂ P ₂ O ₇	1 100	7.34	23 847	-95.80	[57]
CaMnSi ₂ O ₆	1 220	7.39	34 100	-25.60	[59]
CaMgSi ₂ O ₆	1 290	7.46	59 640	-46.00	[43]
KBaPO ₄	1 150	7.58	31 577	-13.30	[60]
BaZn ₂ P ₂ O ₈	1 000	7.72	17 000	-41.10	[61]
Ca ₃ Si ₂ O ₇	1 300	7.80	28 400	—	[62]
Nd ₂ SiO ₅	1 500	7.94	38 800	-53.00	[35]
YPO ₄	1 600	8.00	67 933	-35.30	[63]

化物为主元,包括磷酸盐(P₂O₅, 340℃)、硼酸盐(B₂O₃, 450℃)、钒酸盐(V₂O₅, 690℃)、碲酸盐(TeO₂, 733℃)、钼酸盐(MoO₃, 795℃)和一些含有较多碱金属(Li、Na和K)的陶瓷体系,本文仅选择部分钼酸盐和磷酸盐进行介绍。

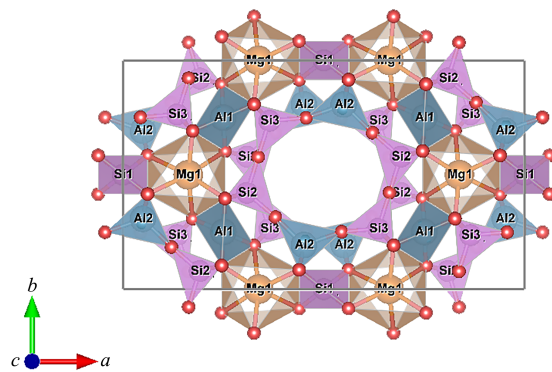
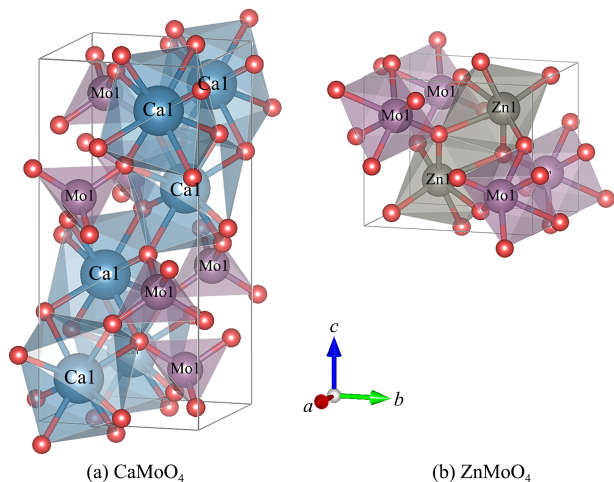


图4 堇青石的晶体结构

Fig.4 The crystal structure of cordierite

低介电常数钼酸盐微波介质陶瓷体系众多,其中AMoO₄(A=Mg、Zn、Mn、Ca、Sr或Ba等二价元素)型钼酸盐微波介质陶瓷近年来尤其受到科研人员的关注^[67-70]。AMoO₄型钼酸盐微波介质陶瓷的烧结温度普遍较低,大部分体系的烧结温度在900℃以下,介电常数小于10。图5为AMoO₄型钼酸盐中两种典型晶体结构。该类陶瓷的晶体结构与A位阳离子的大小密切相关,当A位为Ba、Sr、Ca等半径较大的离子时倾向于形成白钨矿结构;而当A位由半径较小的Mg、Zn或Mn离子占据时则为黑钨矿结构。2006年韩国学者G K CHOI等^[71]利用最小二乘法获得了Mo离子的极化率(3.28 Å³),对Shannon报道的离子极化率数据进行了补充,并使用C-M方程对该AMoO₄型陶瓷的微波介电性能进行了研究。结果表明,AMoO₄的介电性能与A位阳离子的半径和晶体结构关系密切,当A位阳离子半径过大或过小时,会在晶格间隙中出现偏移晃动或晶格受压畸变,该类陶瓷的 ϵ_r 和TCF值也会产生规律性变化,使得采用不同半径离子形成固溶体从而调节AMoO₄的TCF成为可能。

磷酸盐陶瓷可以按照PO₄四面体的连接方式大体分为正磷酸盐、焦磷酸盐、偏磷酸盐三类^[72-73]。图6为磷酸盐微波介电陶瓷的介电性能。从图6可以看出,正磷酸盐微波介质陶瓷通常表现出高的烧结温度,代表体系有LnPO₄(Ln=镧系元素)、M₃P₂O₈(M=Mg、Ca、Sr和Ba等)和AMPO₄(A=Li、Na和K)^[60-61,74-75]。焦磷酸盐微波介质陶瓷代表体系有M₂P₂O₇和MMP₂O₇(M=Mg、Ca、Sr和Ba等),该类微波介质陶瓷的烧结温度在1 150℃左右,普遍低于正磷酸盐陶瓷^[57]。偏磷酸盐微波介质陶瓷代表体系有APO₃(A=Li、Na和K)和AMP₃O₉(M=Mg、Ca、Sr和Ba等二

图5 AMoO₄陶瓷中两种典型的晶体结构Fig.5 Two typical crystal structures in AMoO₄ ceramics

价元素), 该类陶瓷晶体结构中 PO₄ 四面体倾向于共顶连接形成长链, 这种独特的结构使其主要被应用于电池和发光材料领域^[76-77]。2024 年 S YOUNES 等^[78]首先报道了 LiCa(PO₃)₃ 和 LiSr(PO₃)₃ 两种陶瓷的微波介电性能, 两种陶瓷的烧结温度分别为 700℃ 和 625℃, 介电常数均为 6 左右, 远低于磷酸盐陶瓷体系。但是 LiCa(PO₃)₃ 和 LiSr(PO₃)₃ 的 TCF 在 $-105 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 左右, 并且品质因数较低。与此同时, 电子科技大学的 LIU W 等^[79]对 NaMg(PO₃)₃ 陶瓷的微波介电性能展开了研究, 该陶瓷可以在 800~900℃ 下烧结成瓷, 具备在 LTCC 技术中应用的潜在价值, 并且 NaMg(PO₃)₃ 同样表现出极低的介电常数。通过在 Mg 位掺杂摩尔分数为 3.75% 的 Zn 元素, 陶瓷的品质因数显著提高, 此时陶瓷的 $\epsilon_r = 4.49$, $Q \cdot f = 58\,237 \text{ GHz}$, $\text{TCF} = -50.6 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 。此外, 本团队^[73]和烟台大学 TIAN H R 等^[80]也各自对偏磷酸盐陶瓷展开了一系列研究, 如 $\text{ALnP}_4\text{O}_{12}$ (A=Li、Na 或 K; Ln=镧系元素) 和 $\text{Mg}_2\text{P}_4\text{O}_{12}$, 这些陶瓷不仅烧结温度低, 同时表现出极低的介电常数 (ϵ_r 约为 5), 在 LTCC/ULTCC 技术和未来 5G/6G 通信领域极具应用潜力。但是该类陶瓷易与 Ag 电极发生化学反应、难以烧结致密且机械强度较差, 介电损耗也略大于另外两类磷基陶瓷材料, 还有待进一步优化。

2.2 助烧剂降烧陶瓷

除本征低烧陶瓷材料以外, 采用少量玻璃或者低熔点氧化/氟化物降低陶瓷的烧结温度至 950℃ 以下, 这也是 LTCC/ULTCC 粉体研发的热点方向。其中, 硅酸盐陶瓷凭借其出色的介电性能和低的生产成本备受科研人员关注。图 7 对当下主流的硅酸盐

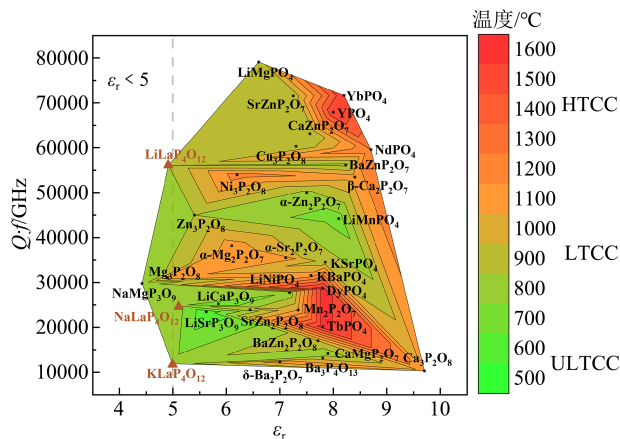
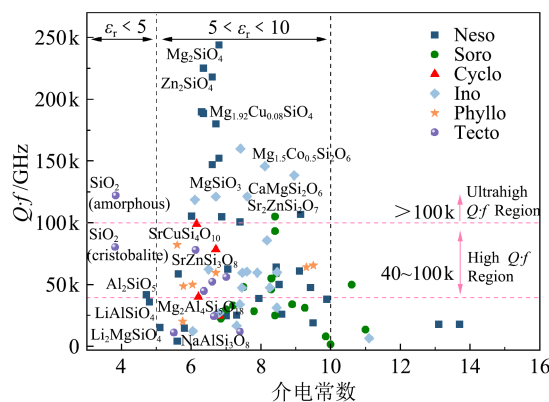
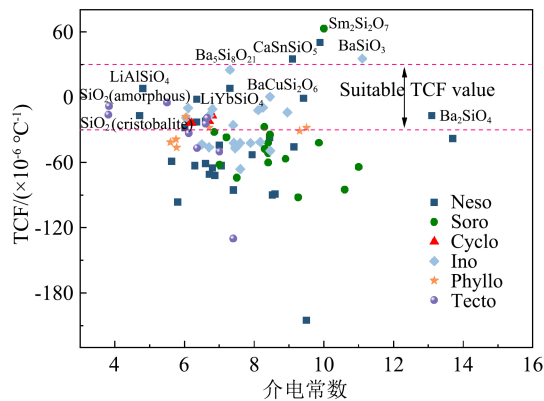


图6 低介电常数磷酸盐微波介质陶瓷的介电常数、品质因数和烧结温度

Fig.6 The dielectric constant, quality factor, and sintering temperature of low-dielectric-constant phosphate microwave dielectric ceramics



(a) 硅酸盐陶瓷品质因数与介电常数的关系



(b) 硅酸盐陶瓷温度系数与介电常数的关系

图7 硅酸盐陶瓷品质因数及谐振频率温度系数与介电常数的关系

Fig.7 The relationship between quality factor, temperature coefficient of resonance frequency, and dielectric constant in silicate ceramics

微波介质陶瓷的介电性能进行了汇总^[81]。从图 7 可以发现, 正交晶系的镁橄榄石 (Mg_2SiO_4) 陶瓷表现

出低的介电常数($\epsilon_r=6.7$)和极高的品质因数($Q\cdot f=240\,000\text{ GHz}$),有利于减少信号延迟和信号衰减,非常适合在5G/6G通信技术中应用。 Mg_2SiO_4 陶瓷最早由日本学者M ANDO等^[82]报道,该陶瓷合成温度在 $1\,200^\circ\text{C}$ 以上,烧结温度为 $1\,400^\circ\text{C}$,但在烧结过程中容易产生次生相硅酸镁(MgSiO_3)。为了降低 Mg_2SiO_4 的烧结温度,印度学者T S SASIKALA等^[83]采用质量分数为15%的 $\text{Li}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ (LBS)玻璃作为助烧剂成功降低 Mg_2SiO_4 陶瓷的烧结温度到 950°C ,但是大量玻璃相的引入会显著劣化 Mg_2SiO_4 陶瓷的介电损耗。为此,电子科技大学LAI Y M等^[84]采用质量分数为8%的LiF作为助烧剂,并添加体积分数为6%的 CaTiO_3 以调节TCF,成功将 Mg_2SiO_4 的烧结温度降至 900°C ,此时其 $\epsilon_r=7.1$, $Q\cdot f=31\,091\text{ GHz}$, $\text{TCF}=-2\times 10^{-6}^\circ\text{C}^{-1}$,具备在LTCC技术中应用的潜力。

3 LTCC/ULTCC用低介玻璃-陶瓷复合及微晶玻璃材料

3.1 玻璃-陶瓷复合材料

玻璃-高烧结温度陶瓷复合体系是当下应用最广泛的陶瓷粉体体系,常用的陶瓷填料有氧化铝、氮化铝、石英、莫来石、镁橄榄石和堇青石等^[85-86]。如前文所述, Al_2O_3 作为HTCC领域最为常用的粉体材料,兼具高性能与低成本,通过引入大量玻璃相降低烧结温度制备的玻璃-氧化铝复合粉体,也是当前商用LTCC材料的主流选择之一^[87-88]。杜邦公司(Dupont)开发的951和9K7粉体是玻璃-陶瓷复合体系的典型代表^[89]。

其中,Dupont 9K7采用易析晶的 $\text{CaO}-\text{La}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$ 玻璃与 Al_2O_3 复合制得,其抗弯强度约为230 MPa,在高频下(测试频率为10 GHz)表现出优异的介电性能,介电损耗低至0.000 9。 $\text{CaO}-\text{La}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$ 玻璃中3种组分的相对含量会显著影响烧结中析出的晶相种类和析出量。图8是 $\text{CaO}-\text{La}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$ 体系的赝相图^[90],总计由18个三相区域组成,共存在5种三元化合物和7种二元化合物。国防科技大学ZHANG W J等^[91]制备了La/B比例从1:6变化到1:3的 $\text{CaO}-\text{La}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$ 微晶玻璃,详细研究了La/B比例对微晶玻璃结构、烧结温度和结晶相的影响。研究表明La/B比例的增加能降低玻璃网络结构中 $[\text{BO}_4]$ 单元的含量,并降低 $\text{CaO}-\text{La}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$ 微晶玻璃的玻

璃化转变温度和软化温度,但低La/B比例的玻璃会在烧结过程中导致严重的起泡。此外,华中科技大学WANG F等^[92]进一步将 $\text{CaO}-\text{La}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ (LCBS)玻璃与氧化铝进行复合,DSC和FT-IR结果表明,添加适量的 SiO_2 有利于LCBS玻璃的结晶,而且玻璃网络在 SiO_2 添加后并未发生明显变化。通过在 850°C 烧结0.5 h,40%玻璃/60% Al_2O_3 复合材料表现出优异的综合性能: $\epsilon_r=6.87$,介电损耗($\tan\delta$)= 2.2×10^{-4} , $\text{TCF}=-55.7\times 10^{-6}^\circ\text{C}^{-1}$, $\text{CTE}=6.13\times 10^{-6}^\circ\text{C}^{-1}$,并且展现出高的抗弯强度(241 MPa),不与Ag电极反应,具备在LTCC技术中应用的潜力。这是因为 $\text{LaAlO}_3(\text{B}_2\text{O}_3)_2$ 和 Al_2O_3 相的协同作用使复合材料具有更好的介电性能和更高的弯曲强度。

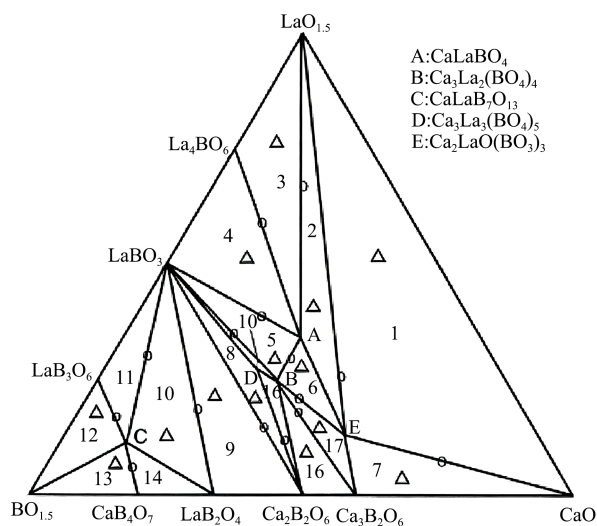


图8 $\text{CaO}-\text{La}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$ 体系赝相图

Fig.8 Pseudophase diagram of the $\text{CaO}-\text{La}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$ system

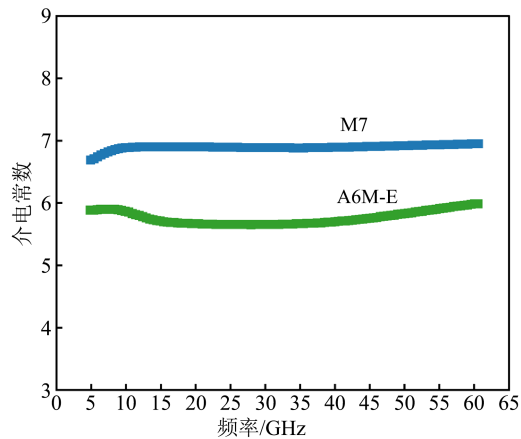
3.2 微晶玻璃

微晶玻璃是一类重要的LTCC材料,商用材料以Ferro A6M-E、M7材料($\text{CaO}-\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系微晶玻璃)和IBM($\text{MgO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2-\text{Li}_2\text{O}$ 系微晶玻璃)最具代表性。微晶玻璃的制备和使用过程通常是先通过熔融-急冷过程制成具有特定组分的玻璃材料,然后通过加热或者其他条件使玻璃进行受控的晶化处理,获得由大量微细晶体和少量残余玻璃相组成的复合材料^[93-96]。

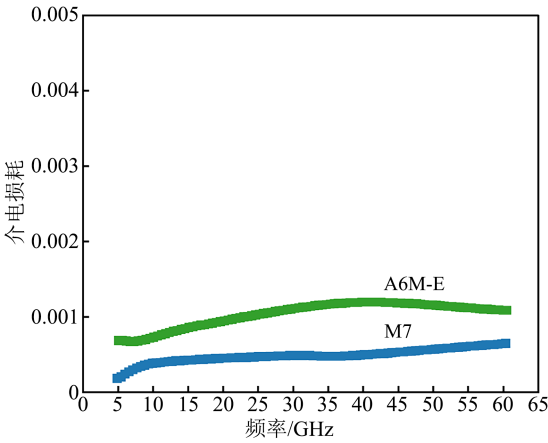
近年来, $\text{CaO}-\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系微晶玻璃因Ferro A6M-E LTCC粉体在商业领域取得的成功而备受科研人员关注。 $\text{CaO}-\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系微晶玻璃中,以 CaSiO_3 和 CaB_2O_4 作为主要结晶相的析晶路线相对成熟,技术的关键在Ca-B-Si三种元素的相对比例,

以及其他元素的少量添加对微晶玻璃整体介电性能和力学性能的影响。南京航空航天大学 ZHU H Y 等^[97]研究了 BaO 对 CaO-B₂O₃-SiO₂ 微晶玻璃体系的影响,发现添加 BaO 会增加玻璃抵抗结晶的能力。在不含 BaO 的微晶玻璃中倾向于形成 β -CaSiO₃, 而在 BaO 含量较低时倾向于形成 α -CaSiO₃, 同时也会形成 CaB₂O₄ 相,而在 BaO 含量较高(摩尔分数 15%)时则会形成 Ba₄Si₆O₁₆ 和 SiO₂。南京工业大学 XIA Y S 等^[98]以硅烷偶联剂(SCA)改性 CaO-B₂O₃-SiO₂ 微晶玻璃粉体来获得性能优良的生瓷带,当 SCA 添加质量分数为 1.5% 时,改性粉末能够实现最优异的性能,经 820℃ 烧结后, $\epsilon_r=5.93$, $\tan\delta=8\times10^{-4}$ (12.0 GHz)。

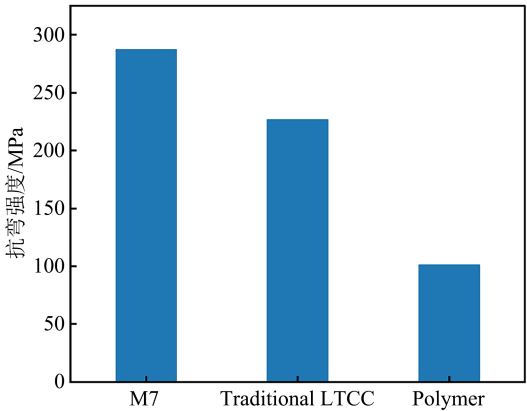
WANG S F 等^[99]为了追求尽可能低的介电常数,根据 CaO-B₂O₃-SiO₂ 三元相图制备了析出 SiO₂ 相的微晶玻璃,由于 SiO₂ 作为主要析晶相,该微晶玻璃表现出高的击穿强度(15.20 kV/mm)和低的介电常数(4.04)。在商用 LTCC 微晶玻璃粉体研发方面,由于 5G/6G 用封装基板的热导率和抗弯强度对于器件的热管理和可靠性至关重要, Ferro 公司在 A6M-E 配方的基础上成功开发了 M7 粉体。如图 9 所示, M7 粉体的抗弯强度达到 294 MPa, 较 A6M-E (170 MPa) 显著提升; 其在 25℃ 下的热导率为 5.2 W/(m·K), 有效改善了传统微晶玻璃类 LTCC 材料热导率常低于 2 W/(m·K) 的不足。当前, 在微晶玻璃基粉体的研究中, 鲜有能够同时实现低介电常数、低损耗、高强度和高热导率的体系, 这一现状也反映出国内在高性能 LTCC 材料研发方面与国际先进水平之间存在的差距。



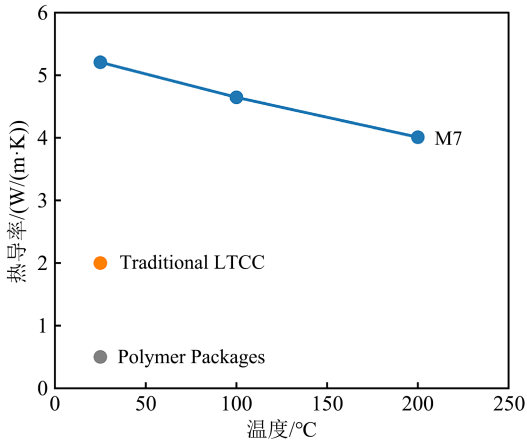
(a) 介电常数随频率的变化



(b) 介电损耗随频率的变化



(c) M7 低温共烧陶瓷生瓷带与其他生瓷带的抗弯强度对比



(d) M7 低温共烧陶瓷生瓷带与其他生瓷带的热导率对比

图9 Ferro M7 粉体的主要性能指标

Fig.9 The key performance indicators of Ferro M7 powder

4 机器学习辅助的高端低介电材料设计与研发

4.1 传统材料研发方法的局限性

为突破传统研发流程带来的长周期瓶颈,研究者在介电性能计算框架内相继提出了一些经典理论模型,旨在加速材料的介电性能预测,包括 C-M

方程、P-V-L 理论、第一性原理计算、Onsager 模型、Penn 模型、Gladstone-Dale 模型等。这些理论虽各具优势,但共同暴露出“单点计算和理想晶体”的短板,面对 5G/6G 对“低介低损高可靠性”多种条件的组合搜索,传统模型显得更加难以胜任。而机器学习(ML)以“文献+计算+实验大数据”为燃料,可在秒级内完成十万量级候选材料的性能预测,自动挖掘键长、离子极化率、形成能等隐式描述符的非线性耦合规律,并通过主动学习-实验闭环持续自我修正,把“偶遇式”发现升级为“定向式”发明,为新一代高频介质陶瓷的极速迭代提供可扩展、可解释、可迁移的智能引擎,其主要流程如图 10 所示。得益于实验表征与第一性原理计算所累积的庞大数据库,深度神经网络、核方法及集成学习算法等被迅速移植到无机电介质材料的性能预测中^[100-101]。当下,数据驱动范式已催生出一系列面向 5G/6G 应用的高性能低介电常数材料,为高频高速器件的按需设计奠定了理论与技术基础。

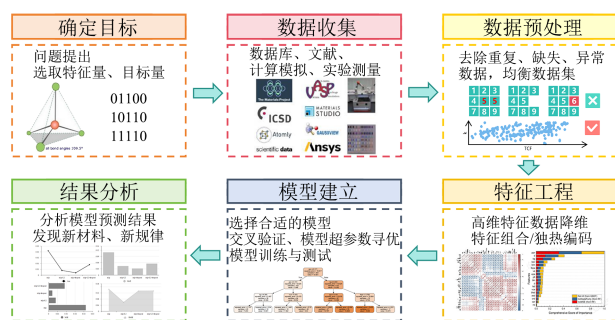


图 10 机器学习辅助材料研究的主要流程示意图

Fig.10 Schematic diagram of the main process for machine learning-assisted materials research

4.2 ML 模型在预测材料介电性能中的应用

4.2.1 介电常数

为提升介质滤波器用高介电陶瓷的研发效率,伦敦大学学院 D J SCOTT 小组^[102]早在 2007 年即引入反向传播人工神经网络(BP-ANN),以 53 维元素含量为描述符,对文献中 700 余种陶瓷的介电常数进行建模,但相关系数(R^2)仅为 0.64,均方根误差(RMSE)高达 13.21。帝国理工 K MORITA 等^[103]基于通过密度泛函微扰理论(DFT)获得的 1 364 种陶瓷材料的光频介电常数(ϵ_∞),以禁带宽度(E_g)、Pauling 能差、密度等特征构建支持向量回归模型,测试集 R^2 达 0.86, RMSE 降至 0.99;结合 SHAP 解析,证实密度与 ϵ_∞ 正相关、与 E_g 负相关,并与 C-M 方程及

Penn 模型趋势一致,并初步搭建了“电子结构-介电响应”定量桥梁。QIN J C 等^[104]以 254 种单相微波介质陶瓷为样本,结合 C-M 方程、Penn 模型与 P-V-L 理论,筛选单位体积极化率、平均键长等 7 个物理意义明确的特征。使用 SVR-RBF 模型训练,结果 SVR-RBF 模型 $R^2=0.58$, RMSE=2.54,显著优于传统方程。俄罗斯科学院 N KIREEVA 等^[105]聚焦白钨矿等 7 种结构,以阳离子极化率、Shannon 半径、Pauling 数等 20 余项特征建立 SVR 模型,该模型 $R^2>0.7$, RMSE<5,证实结构对称性(PN 值)对 ϵ_r 的决定性作用,并成功外推至岩盐、尖晶石等新结构。在成分-工艺联合优化层面,LIU Y C 等^[106]针对 LTCC 玻璃陶瓷体系,以填料类型、玻璃含量及三阶段煅烧反应积为特征,建立高斯核岭回归模型,介电常数与介电损耗交叉验证 R^2 分别为 0.57 与 0.91,并验证了机器学习在多目标工艺寻优中的实用性。

4.2.2 品质因数与谐振频率温度系数

相对介电常数一直是介电材料领域共同关注的核心指标,其第一性原理计算框架发展成熟,公开数据丰富,获取门槛较低。然而,作为衡量信号损耗关键的品质因数(Q)却缺乏普适、低成本的计算途径。近年来,研究人员开始尝试在特定结构类型中建立 Q 的统计预测模型。QIN J C 等^[104]以 A 位阳离子置换策略实现 $(\text{Ca}_x\text{Sr}_{1-x})\text{CuSi}_4\text{O}_{10}$ 陶瓷局域结构的可控调制,并将模型外推至 Ba 等其他碱土离子占据 A 位的同结构体系。Y OBA 等^[107]提出以双声子态密度(TDOS)为中介变量的迁移学习框架:首先利用 50 种陶瓷材料在 100 GHz 的 TDOS 数据预训练多层感知器,再将所得权重迁移至目标 $\tan\delta$ 预测网络。与从零开始训练的模型相比,迁移学习版本均方误差降低 25%,外推稳定性显著提升。

TCF 的研究现状与品质因数类似,其机器学习方法当前尚未形成完整体系。WANG X 等^[108]针对 $(\text{Ba},\text{Sr},\text{Ca})\text{HfO}_3$ 提出“归一化离子半径-端元 TCF 加权”双参数线性方程,在正交钙钛矿区段把误差降到 $6.8\times 10^{-6}\text{ }^\circ\text{C}^{-1}$,并区分结构相变与离子“晃动效应”对 TCF 的竞争机制,但其未覆盖立方/四方相变区域。NI Z Q 等^[109]基于 20 组均匀实验数据训练 SVR-RBF/PR 混合模型,在 1 037 组 $(\text{Ca},\text{Nd},\text{Li})\text{Ti}(\text{Mg},\text{Nb})\text{O}_3$ 候选中筛得 69 个近零 TCF 的配方,但这仅适用于特定 $(\text{Li}/\text{Nd},\text{Mg}/\text{Nb})$ 掺杂体系。M APPIAH 等^[110]以冷烧结-退火工艺量化为特征,经 SVM 闭环

优化Ge-堇青石体系,使体系的 $TCF=1.99 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 。

但是,当下ML也存在诸多亟待解决的问题。首先是模型的数据依赖性极强,例如,晶体图卷积神经网络或基于注意力机制的深度网络严重依赖高质量且大规模的晶体结构文件或精确的成分编码数据,极大地限制了其在数据稀缺的新型陶瓷体系或成分复杂掺杂体系中的应用。其次是模型的可解释性普遍不足,例如,支持向量机或等变神经网络框架虽能取得较高的预测精度,但其决策过程往往如同“黑箱”,难以清晰揭示材料微观结构特征与介电常数、介电损耗或温度系数之间的物理机制,导致预测结果难以有效指导具有明确物理目标的材料设计。最后是许多模型的实验验证范围狭窄,其可靠性仅在有限化学空间内得到确认,对于类似于巨介电常数陶瓷中常见的氧空位、缺陷偶极子以及晶界-晶粒协同效应等复杂起源,机器学习模型尚难以实现跨体系的稳健预测与机理鉴别。

此外,数据是机器学习的根基和养分,材料数据的准确性、完整性和数量不足对ML模型的训练和应用会产生显著的影响。如果在训练预测模型时使用了错误的或者含有测量误差的数据,模型可能会学习到错误的性能与材料结构、成分之间的关系,导致对新材料介电特性预测不准确,这也是当下制约ML发展的最主要瓶颈。当前,电介质陶瓷 ϵ_r 的预测相对成熟可靠,TCF的验证局限于某个特定的晶体结构中比较可信,而 $Q \cdot f$ 受到工艺制备、烧结过程及测试方法的诸多影响,致使文献数据离散性偏大,难以准确预测。并且从理论模型到实验验证以及实际应用过程中,也面临着诸多技术和成本等方面的障碍。理论模型往往是基于一定的假设和简化条件建立的,而实际材料的制备过程和测试环境可能存在各种复杂因素,导致理论预测结果与实验结果存在误差。

在6G通信系统(或太赫兹频段)中,ML预测无机电介质材料介电性能面临的关键挑战在于,模型所依赖的宏观参数(如离子极化率)难以完全反映高频下晶格振动阻尼、氧空位等所引发的额外损耗。并且在实际制备中,烧结助剂引入的杂质、气孔以及晶界结构等复杂因素会进一步加剧理论预测与实验结果的偏差。未来研究趋势将侧重于开发融合阻尼因子、缺陷浓度等微观结构描述符的多尺度ML模型,并结合高通量计算与实验验证,以提

升对高频损耗机理的解析能力及预测准确性。

5 结束语

综合文献报道的研究成果及商业化应用产品的参数指标可知,兼具优异电学、力学与热学性能的先进封装技术用低介电常数无机电介质粉体材料,是支撑未来5G/6G通信与封装技术发展的基础,其主要发展趋势体现在以下4个方面:

(1)推动HTCC粉体向精细化与定制化方向发展,尤其是开发兼具超高抗弯强度、超高热导率与低介电常数的HTCC粉体,是当前该领域研究的重点与难点。

(2)玻璃-陶瓷复合材料和微晶玻璃是当前商用LTCC粉体的主流体系,为进一步适应高频通信需求,仍需对其性能进行持续优化。可通过引入高热导率相来提升微晶玻璃的热导率;研发在高频下具有更低介电损耗的玻璃材料,通过精巧的微观结构设计,在材料中合理引入气孔或非晶相实现超低介电常数,以增强玻璃-陶瓷复合材料在高频领域的适用性。

(3)本征低烧结温度陶瓷以及通过助烧剂实现低温烧结的陶瓷,因其优异的介电性能,有望成为下一代高端LTCC粉体的重要选择。

(4)面对陶瓷材料综合性能优化的复杂挑战,引入机器学习等先进计算模型辅助材料设计与性能预测,有望加速新材料的研发进程,为突破现有技术瓶颈提供新的路径。

综上所述,以KYOCERA、Dupont和Ferro为代表的国际企业,在高端HTCC/LTCC粉体领域仍占据主导地位。大力发展新型低介电常数无机电介质材料对提升国家科技竞争力、抢占未来技术制高点具有关键战略意义,未来需持续加强基础材料创新与跨学科融合,以推动高频通信与先进封装技术的持续突破。

参考文献 References

- [1] 罗福川.PTFE基非简单氧化物陶瓷复合基板材料的微结构与微波介电性能研究[D].成都:电子科技大学,2020.
LUO Fuchuan. Study on microstructure and microwave dielectric properties of PTFE-based non-simple oxide ceramic composite substrate materials[D]. Chengdu: University of Electronic Science and Technology of China,2020.
- [2] 中国信息通信研究院.全球数字经济发展研究报告(2024)[R].2025.

- China Academy of Information and Communications Technology. Global digital economy development research report (2024) [R]. 2025.
- [3] CAI Y Y, YANG J Q, CHENG M F, et al. Structure-property relationships of hexaluminate $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Al}_{12}\text{O}_{19}$ ceramics with magnetoplumbite structure for HTCC applications[J]. *Ceramics International*, 2025, 51(25): 44364-44370.
- [4] BAO J, DU J L, LIU L T, et al. A new type of microwave dielectric ceramic based on $\text{K}_2\text{O-SrO-P}_2\text{O}_5$ composition with high quality factor and low sintering temperature[J]. *Ceramics International*, 2022, 48(1): 784-794.
- [5] WANG W, WANG X, BAO J, et al. Low-permittivity BaCu-Si₄O₁₀-based dielectric Ceramics: an available solution to connect low temperature cofired ceramic technology and millimeter-wave communications[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2024, 494: 153172.
- [6] FANG Z, ZHANG K H, WANG W, et al. Tunable microwave dielectric properties of the $(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{Li}_2\text{Ti}_6\text{O}_{14}$ ceramics and effects of BCB addition on performance[J]. *Applied Materials Today*, 2025, 45: 102806.
- [7] 周济. 低温共烧陶瓷(LTCC)介质的材料科学与设计策略[J]. *电子元件与材料*, 2012, 31(6): 1-5.
- ZHOU Ji. Material science and design strategy for low temperature co-fired ceramic (LTCC) dielectrics[J]. *Electronic Components and Materials*, 2012, 31(6): 1-5.
- [8] 王东生, 任才华, 张炳渠. 高温共烧陶瓷的技术现状及新进展[J]. *微纳电子技术*, 2025, 62(8): 9-17.
- WANG Dongsheng, REN Caihua, ZHANG Bingqu. Technical status and new progress of high temperature Co-fired ceramic[J]. *Micronanoelectronic Technology*, 2025, 62(8): 9-17.
- [9] 周迪. 新型铋基低温烧结微波介质陶瓷研究[D]. 西安: 西安交通大学, 2009.
- ZHOU Di. Research on novel bismuth-based low-temperature sintering microwave dielectric ceramics[D]. Xi'an: Xi'an Jiaotong University, 2009.
- [10] 徐克南. $\beta''\text{-Al}_2\text{O}_3$ 基质材料制备及其离子掺杂后发光性能研究[D]. 大连: 大连交通大学, 2025.
- XU Kenan. Preparation of $\beta''\text{-Al}_2\text{O}_3$ matrix materials and study on their luminescence properties after ion doping[D]. Dalian: Dalian Jiaotong University, 2025.
- [11] 纪其燕. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 基气凝胶材料的组制备及其高温隔热性能研究[D]. 济南: 山东大学, 2023.
- JI Qian. Assembly preparation of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ -based aerogel materials and study on their high-temperature thermal insulation performance[D]. Jinan: Shandong University, 2023.
- [12] 舒锐, 宁晓秋, 杨波. 基于介电响应的环氧树脂/微米氧化铝复合电介质热性能研究[J]. *绝缘材料*, 2025, 58(6): 52-60.
- SHU Rui, NING Xiaoqiu, YANG Bo. Study on thermal properties of epoxy resin/micron alumina composite dielectrics based on dielectric response[J]. *Insulating Materials*, 2025, 58(6): 52-60.
- [13] 王宇晖, 周义棹, 李月明, 等. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 颗粒增强日用陶瓷力学性能的研究及其强化机理[J]. *中国陶瓷*, 2025, 61(6): 68-75, 83.
- WANG Yuhui, ZHOU Yizhuo, LI Yueming, et al. Study on mechanical properties and strengthening mechanism of $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ particle reinforced domestic ceramics[J]. *China Ceramics*, 2025, 61(6): 68-75, 83.
- [14] 李石琨, 李文鹏, 史晓宁, 等. 氧化铝/聚丙烯复合材料的导热与介电性能仿真优化[J]. *绝缘材料*, 2025, 58(1): 20-28.
- LI Shikun, LI Wenpeng, SHI Xiaoning, et al. Simulation and optimization of thermal conductivity and dielectric properties of alumina/polypropylene composites[J]. *Insulating Materials*, 2025, 58(1): 20-28.
- [15] 万冬毅, 魏钢, 曹政钦, 等. 基于密度泛函理论的 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 对 C_2F_6 与 C_3F_8 表面吸附研究[J]. *绝缘材料*, 2025, 58(2): 76-84.
- WAN Dongyi, WEI Gang, CAO Zhengqin, et al. Study on surface adsorption of C_2F_6 and C_3F_8 by $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ based on density functional theory[J]. *Insulating Materials*, 2025, 58(2): 76-84.
- [16] ALFORD N M, PENN S J. Sintered alumina with low dielectric loss[J]. *Journal of Applied Physics*, 1996, 80(10): 5895-5898.
- [17] 杨书泉. CMBSL 玻璃/AlN 基低温共烧陶瓷的制备与性能研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2023.
- YANG Shuquan. Preparation and properties of CMBSL glass/AlN based low temperature Co-fired ceramics[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2023.
- [18] 付强, 李浩明, 彭磊, 等. 填充型导热绝缘硅橡胶复合材料的研究进展[J]. *绝缘材料*, 2024, 57(9): 1-14.
- FU Qiang, LI Haoming, PENG Lei, et al. Research progress of filled thermally conductive insulating silicone rubber composites[J]. *Insulating Materials*, 2024, 57(9): 1-14.
- [19] 姜海. AlN 陶瓷的导热特性与弯曲强度的协同改性研究[D]. 武汉: 华中科技大学, 2020.
- JIANG Hai. Synergistic modification of thermal conductivity and flexural strength of AlN ceramics[D]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology, 2020.
- [20] 邹东利, 阎殿然, 何继宁, 等. 氮化铝陶瓷粉末的制备方法及其展望[J]. *绝缘材料*, 2006, 39(5): 20-22, 64.
- ZOU Dongli, YAN Dianran, HE Jining, et al. Preparation methods and prospects of aluminum nitride ceramic powder[J]. *Insulating Materials*, 2006, 39(5): 20-22, 64.
- [21] PEZZOTTI G, NAKAHIRA A, TAJIKA M. Effect of extended annealing cycles on the thermal conductivity of AlN/ Y_2O_3 ceramics[J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2000, 20(9): 1319-1325.
- [22] DU X L, QIN M L, FARID A, et al. Study of rare-earth oxide sintering aid systems for AlN ceramics[J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2007, 460-461: 471-474.
- [23] LEE H K, LEE H M, KIM D K. AC impedance spectroscopy of CaF_2 -doped AlN ceramics[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2014, 97(3): 805-810.
- [24] LEE H M, KIM D K. High-strength AlN ceramics by low-temperature sintering with $\text{CaZrO}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$ co-additives[J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2014, 34(15): 3627-3633.
- [25] KUSUNOSE T, SEKINO T. Improvement in fracture strength in electrically conductive AlN ceramics with high thermal conduc-

- tivity[J]. *Ceramics International*, 2016, 42(11): 13183-13189.
- [26] CHOI H S, IM H N, KIM Y M, et al. Structural, thermal and mechanical properties of aluminum nitride ceramics with CeO_2 as a sintering aid[J]. *Ceramics International*, 2016, 42(10): 11519-11524.
- [27] HUANG D, TIAN Z B, CUI W, et al. Effects of Y_2O_3 and yttrium aluminates as sintering additives on the thermal conductivity of AlN ceramic substrates[J]. *Ceramics International*, 2018, 44(16): 20556-20559.
- [28] CHEN Z Q, WANG L, DU P P, et al. Effects of different sintering additives Re_2O_3 ($\text{Re}=\text{Y}, \text{Nd}, \text{Gd}, \text{Sm}, \text{and Yb}$) on the thermal conductivity, mechanical properties and dielectric properties of AlN ceramics[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2025, 1023: 180180.
- [29] ZHAN J, CAO Y, ZHANG H, et al. Low-temperature sintering of AlN ceramics by Sm_2O_3 - Y_2O_3 -CaO sintering additives formed via decomposition of nitrate solutions[J]. *Journal of Materials Engineering and Performance*, 2017, 26(1): 453-459.
- [30] 殷之文. 电介质物理学(第二版)[M]. 北京: 科学出版社, 2003.
- YIN Zhiwen. Dielectric physics (second edition)[M]. Beijing: Science Press, 2003.
- [31] BAO J, WANG Y Z, KIMURA H, et al. Sintering characteristics, crystal structure, and microwave dielectric properties of $\text{Ce}_2[\text{Zr}_{1-x}(\text{Al}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})_3(\text{MoO}_4)_9]$ ceramics[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2022, 925: 166566.
- [32] SHANNON R D. Dielectric polarizabilities of ions in oxides and fluorides[J]. *Journal of Applied Physics*, 1993, 73(1): 348-366.
- [33] LI L, FANG Y, XIAO Q, et al. Microwave dielectric properties of fused silica prepared by different approaches[J]. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, 2014, 11(1): 193-199.
- [34] LI L, ZHU X L, CHEN X M. Where can the low dielectric constant go in dense inorganic materials? [J]. *Journal of Materials*, 2023, 9(5): 980-983.
- [35] SEBASTIAN M T, UBIC R, JANTUNEN H. Low-loss dielectric ceramic materials and their properties[J]. *International Materials Reviews*, 2015, 60(7): 392-412.
- [36] OHSATO H, TERADA M, KAGOMIYA I, et al. Sintering conditions of cordierite for microwave/millimeterwave dielectrics [J]. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, 2008, 55(5): 1081-1085.
- [37] WU S, SONG K X, LIU P, et al. Effect of TiO_2 doping on the structure and microwave dielectric properties of cordierite ceramics[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2015, 98(6): 1842-1847.
- [38] CAO L, WANG Y Y, YU X Q, et al. Significantly enhanced microwave-millimeterwave properties of cordierite ceramics: Roundness regulation of Si-Al hexagonal ring, analysis of far-infrared reflectance and terahertz time-domain spectroscopy[J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2025, 45(3): 117045.
- [39] YAO Y, CAO L, YANG H Y, et al. High-entropy $\text{Mg}_{1.8}\text{R}_{0.2}\text{Al}_4\text{Si}_5\text{O}_{18}$ ($\text{R}=\text{Ni}, \text{Co}, \text{Zn}, \text{Cu}, \text{Mn}$) cordierite ceramics: influence of octahedral distortion and electronegativity mismatch on the microwave dielectric properties[J]. *Ceramics International*, 2024, 50(23, Part C): 51826-51831.
- [40] LANG Z D, REN L C, SHAO P C, et al. $(\text{Cu}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})^{3+}$ -doped cordierite ceramics with near-zero τ_f and low ϵ_r for temperature-stable microwave dielectrics[J]. *Ceramics International*, 2025, 51(18, Part A): 24952-24959.
- [41] 曹林. 6G 堇青石陶瓷内外环结构调控与毫米波介电性能研究[D]. 杭州: 杭州电子科技大学, 2024.
- CAO Lin. Structure regulation of inner and outer rings and millimeter wave dielectric properties of 6G cordierite ceramics[D]. Hangzhou: Hangzhou Dianzi University, 2024.
- [42] TIAN H R, ZHANG Y Y, WANG R H, et al. Effect of Ge^{4+} -substituted on the structure characteristics and microwave/terahertz dielectric properties of ultra-low ϵ_r , high $Q \times f$ cordierite ceramics [J]. *Journal of Materials Science & Technology*, 2025, 216: 165-177.
- [43] KAMUTZKI F, SCHNEIDER S, BAROWSKI J, et al. Silicate dielectric ceramics for millimetre wave applications[J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2021, 41(7): 3879-3894.
- [44] CHO I S. Sintering behavior and dielectric properties of $\text{A}_3(\text{PO}_4)_2$ compounds ($\text{A}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}, \text{Mg}, \text{Zn}, \text{Ni}, \text{Cu}$)[J]. *Materials Science in Semiconductor Processing*, 2022, 148: 106793.
- [45] LAN X K, LI J, ZOU Z Y, et al. Lattice structure analysis and optimised microwave dielectric properties of $\text{LiAl}_{1-x}(\text{Zn}_{0.5}\text{Si}_{0.5})_x\text{O}_2$ solid solutions[J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2019, 39(7): 2360-2364.
- [46] QIN J C, LIU Z F, MA M S, et al. Structure and microwave dielectric properties of gillespite-type $\text{ACuSi}_4\text{O}_{10}$ ($\text{A}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$) ceramics and quantitative prediction of the $Q \times f$ value via machine learning[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2021, 13(15): 17817-17826.
- [47] DOU G, ZHOU D X, GONG S P, GUO M. Low temperature sintering and microwave dielectric properties of $\text{Li}_2\text{ZnSiO}_4$ ceramics with ZB glass[J]. *Journal of Materials Science Materials in Electric*, 2013, 24(5): 1601-1607.
- [48] SONG X Q, LEI W, WANG F, et al. Phase evolution, crystal structure, and microwave dielectric properties of gillespite-type ceramics[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2021, 104(4): 1740-1749.
- [49] BIAN J J, KIM D W, HONG K S. Microwave dielectric properties of $\text{A}_2\text{P}_2\text{O}_7$ ($\text{A}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}, \text{Mg}, \text{Zn}, \text{Mn}$)[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2004, 43(6R): 3521.
- [50] LEI W, ZOU Z Y, CHEN Z H, et al. Controllable τ_f value of barium silicate microwave dielectric ceramics with different Ba/Si ratios[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2018, 101(1): 25-30.
- [51] ZHOU X J, ZHOU H F, HU S, et al. Sintering behavior and microwave dielectric properties of low-permittivity $\text{SrMgSi}_2\text{O}_6$ ceramic[J]. *Journal of Electronic Materials*, 2020, 49(10): 5989-5993.
- [52] SONG M E, KIM J S, JOUNG M R, et al. Synthesis and microwave dielectric properties of MgSiO_3 ceramics[J]. *Journal of the*

- American Ceramic Society,2008,91(8):2747-2750.
- [53] CHEN X Q, LI H, ZHANG P C, et al. Microwave dielectric properties of $\text{Co}_2\text{P}_2\text{O}_7$ ceramics[J]. *Ceramics International*,2021, 47(2):1980-1985.
- [54] KAGOMIYA I, SUZUKI I, OHSATO H. Microwave dielectric properties of $(\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{SiO}_3$ ring silicate solid solutions[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*,2009,48(9S1):09KE2.
- [55] OHSATO H, TSUNOOKA T, SUGIYAMA T, et al. Forsterite ceramics for millimeterwave dielectrics[J]. *Journal of Electroceramics*,2006,17(2):445-450.
- [56] ZHOU H F, HUANG J, TAN X H, et al. Microwave dielectric properties of low-permittivity CaMgSiO_4 ceramic[J]. *Journal of Materials Science Materials in Electric*, 2017, 28(20): 15258-15262.
- [57] BIAN J J, KIM D W, HONG K S. Glass-free LTCC microwave dielectric ceramics[J]. *Materials Research Bulletin*,2005,40(12): 2120-2129.
- [58] SU C X, AO L Y, ZHANG Z W, et al. Crystal structure, Raman spectra and microwave dielectric properties of novel temperature-stable LiYbSiO_4 ceramics[J]. *Ceramics International*,2020, 46(12):19996-20003.
- [59] CHEN X Q, LI H, ZHANG P C, et al. Phase composition, microstructure, and microwave dielectric properties of $\text{CaMnSi}_2\text{O}_6$ ceramics[J]. *Ceramics International*,2021,47(3):4083-4089.
- [60] JIANG T Y, KIMURA H, MA X M, et al. Crystal structure, dielectric properties, and far-infrared reflectivity spectrum of a novel phosphate KBaPO_4 ceramic at microwave frequency[J]. *Ceramics International*,2022,48(23, Part A):35621-35626.
- [61] GUO T, LI Y X, WAHYUDI O, et al. Microwave dielectric properties of $\text{AZn}_2(\text{PO}_4)_2$ ($\text{A}=\text{Sr}, \text{Ba}$) ceramics[J]. *Ferroelectrics*, 2016,492(1):91-102.
- [62] VALANT M, SUVOROV D. Glass-free low-temperature cofired ceramics: calcium germanates, silicates and tellurates[J]. *Journal of the European Ceramic Society*,2004,24(6):1715-1719.
- [63] CHO I S, CHOI G K, AN J S, et al. Sintering, microstructure and microwave dielectric properties of rare earth orthophosphates, RePO_4 ($\text{Re}=\text{La}, \text{Ce}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Tb}, \text{Dy}, \text{Y}, \text{Yb}$) [J]. *Materials Research Bulletin*,2009,44(1):173-178.
- [64] YANG Y, LI M Y, CHEN G H. Synthesis and dielectric performance of new calcium boro-stannate microwave ceramics[J]. *Journal of Materials Science Materials in Electric*, 2024, 59(32): 15168-15175.
- [65] HUANG B H, XIA T, SHANG F, et al. A new BaB_2O_4 microwave dielectric ceramic for LTCC application[J]. *Journal of the European Ceramic Society*,2023,43(14):6107-6111.
- [66] 陈国华,黄冰虹.低温共烧低介电常数微波介质陶瓷的研究进展[J]. *材料导报*,2023,37(20):28-43.
CHEN Guohua, HUANG Binghong. Research progress in low-temperature co-fired low dielectric constant microwave dielectric ceramics[J]. *Materials Reports*,2023,37(20):28-43.
- [67] LI M Y, HUANG B H, SHANG F, et al. Microwave dielectric properties and LTCC applications of new glass-free molybdate ceramics $\text{Li}_3\text{Ba}_2\text{Ln}_3(\text{MoO}_4)_8$ ($\text{Ln}=\text{Gd}, \text{Tm}$) [J]. *Ceramics International*,2024,50(14):25349-25354.
- [68] SONG J, LI M Y, CHEN G H. Structure characteristics and microwave dielectric properties of ultra-low firing $\text{Li}_{1.6}(\text{Mn}_{1-x}\text{Zn}_x)_{2.2}(\text{MoO}_4)_3$ ceramics[J]. *Ceramics International*, 2025, 51(4): 4712-4720.
- [69] SONG J, LI M Y, CHEN G H. New $\text{Li}_{1.94}\text{Cu}_{2.06}(\text{MoO}_4)_3$ dielectric ceramic for ULTCC applications[J]. *Ceramics International*, 2025,51(23, Part B):39744-39749.
- [70] LI M Y, HUANG B H, SHANG F, et al. A novel dielectric ceramic $\text{Na}_{0.48}\text{La}_{0.52}\text{MoO}_4$ with excellent thermal stability for LTCC applications[J]. *Ceramics International*,2024,50(8):13544-13549.
- [71] CHOI G K, KIM J R, YOON S H, et al. Microwave dielectric properties of scheelite ($\text{A}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$) and wolframite ($\text{A}=\text{Mg}, \text{Zn}, \text{Mn}$) AMoO_4 compounds[J]. *Journal of the European Ceramic Society*,2007,27(8):3063-3067.
- [72] 冯战百. $(\text{Ni}, \text{Cu})_3(\text{PO}_4)_2$ 基低介电微波介质陶瓷性能调控及器件研究[D]. 济南:济南大学,2024.
FENG Zhanbai. Performance regulation and device research of $(\text{Ni}, \text{Cu})_3(\text{PO}_4)_2$ -based low dielectric microwave dielectric ceramics[D]. Jinan: University of Jinan,2024.
- [73] BAO J, ZHANG K H, WANG W, et al. A Series of ultra-low permittivity $\text{ALaP}_4\text{O}_{12}$ ($\text{A}=\text{Li}, \text{Na}, \text{K}$) metaphosphate microwave dielectric ceramics for ultra-wideband dielectric resonant antenna application[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*,2024,16(43): 58898-58911.
- [74] THOMAS D, SEBASTIAN M T. Temperature-compensated LiMgPO_4 : a new glass-free low-temperature cofired ceramic[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2010, 93(11): 3828-3831.
- [75] ZHANG P, WU S X, XIAO M. The microwave dielectric properties and crystal structure of low temperature sintering LiNiPO_4 ceramics[J]. *Journal of the European Ceramic Society*,2018, 38(13):4433-4439.
- [76] 刘威. $\text{NaMg}(\text{PO}_3)_3$ 微波介质陶瓷材料的制备及应用研究[D]. 成都:电子科技大学,2024.
LIU Wei. Preparation and application of $\text{NaMg}(\text{PO}_3)_3$ microwave dielectric ceramic materials[D]. Chengdu: University of Electronic Science and Technology of China,2024.
- [77] FERHI M, HORCHANI-NAIFER K, FERID M. Efficient NIR quantum cutting of $\text{Eu}^{3+}/\text{Yb}^{3+}$ co-doped $\text{LiLa}(\text{PO}_3)_4$ for luminescent solar concentrators[J]. *Optical Materials*,2023,135:113365.
- [78] YOUNES S, EHSAN T N, RAINER S, et al. Novel $\text{LiCa}(\text{PO}_3)_3$ and $\text{LiSr}(\text{PO}_3)_3$ microwave dielectric ceramics[J]. *Journal of the European Ceramic Society*,2024,44(3):1617-1626.
- [79] LIU W, LI Y X, LIU X Y, et al. A novel $\text{NaMg}_{(1-x)}\text{Zn}_x(\text{PO}_3)_3$ microwave dielectric ceramic with an ultra-low dielectric constant for LTCC application[J]. *Ceramics International*,2024, 50(1, Part A):143-149.
- [80] TIAN H R, ZHOU X, ZHANG Z D, et al. A novel ultra-low relative permittivity $\text{Mg}_2\text{P}_4\text{O}_{12}$ metaphosphate ceramic for dielectric

- resonator antennas[J]. Journal of the European Ceramic Society, 2025,45(13):117480.
- [81] 王威,张玲,吴亚光,等.微波毫米波用低介电常数低温共烧陶瓷研究进展[J].硅酸盐学报,2023,51(4):934-48.
- WANG Wei, ZHANG Ling, WU Yaguang, et al. Research progress on low dielectric constant low temperature co-fired ceramics for microwave and millimeter wave applications[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society,2023,51(4):934-948.
- [82] ANDO M, OHSATO H, KAGOMIYA I, et al. Quality factor of forsterite for ultrahigh frequency dielectrics depending on synthesis process[J]. Journal of Applied Physics,2008,47(9S):7729.
- [83] SASIKALA T S, SUMA M N, MOHANAN P, et al. Forsterite-based ceramic-glass composites for substrate applications in microwave and millimeter wave communications[J]. Journal of Alloys and Compounds,2008,461(1):555-559.
- [84] LAI Y M, TANG X L, ZHANG H W, et al. Correlation between structure and microwave dielectric properties of low-temperature-fired Mg_2SiO_4 ceramics[J]. Materials Research Bulletin, 2018,99:496-502.
- [85] 徐明,王峰,刘岗,等.叠层片式电感低介低烧陶瓷材料的研究进展[J].绝缘材料,2006,39(3):23-26.
- XU Ming, WANG Feng, LIU Gang, et al. Research progress on low dielectric constant and low sintering temperature ceramic materials for multilayer chip inductors[J]. Insulating Materials, 2006,39(3):23-26.
- [86] XI J, CHEN G H, LIU F, et al. Synthesis, microstructure and characterization of ultra-low permittivity $\text{CuO-ZnO-B}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O}$ glass/ Al_2O_3 composites for ULTCC application[J]. Ceramics International,2019,45(18, Part A):24431-24436.
- [87] 张兰.氧化铋系玻璃基低温共烧陶瓷的制备与性能研究[D].合肥:中国科学技术大学,2024.
- ZHANG Lan. Preparation and properties of bismuth oxide-based glass ceramic low temperature co-fired ceramics[D]. Hefei: University of Science and Technology of China,2024.
- [88] 汪伟.钙铝硼硅/氧化铝玻璃陶瓷性能研究[D].武汉:华中科技大学,2013.
- WANG Wei. Study on properties of $\text{Ca-Al-B-Si/Al}_2\text{O}_3$ glass ceramics[D]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology,2013.
- [89] 曹禹,海韵,朱宝京,等.低温共烧陶瓷用玻璃材料研究进展[J].硅酸盐学报,2022,50(4):1182-92.
- CAO Yu, HAI Yun, ZHU Baojing, et al. Research progress on glass materials for low temperature co-fired ceramics[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society,2022,50(4):1182-1192.
- [90] ZHANG Y, CHEN X L, LIANG J K, et al. Phase relations in the system $\text{La}_2\text{O}_3\text{-CaO-B}_2\text{O}_3$ [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2001,315(1):198-202.
- [91] ZHANG W J, WANG F L, CHEN X Y, et al. Influence of La/B ratio on the structure, sinterability and crystallization of $\text{La}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3\text{-CaO}$ glass-ceramics[J]. Journal of Materials Science Materials in Electric,2019,30(15):14805-14812.
- [92] WANG F, LOU Y H, LI Z J, et al. Improved flexural strength and dielectric loss in Al_2O_3 -based LTCC with $\text{La}_2\text{O}_3\text{-CaO-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ glass[J]. Ceramics International,2021,47(7, Part A): 9955-9960.
- [93] XI J, SHANG F, LIU F, et al. A facile preparation of temperature-stable borate ultra-low permittivity microwave ceramics for LTCC applications[J]. Ceramics International, 2020, 46(11, Part B):19650-19653.
- [94] CHEN J J, HE J, JIANG D H, et al. Temperature stable borophosphate glass-ceramics with low permittivity for LTCC application[J]. Materials Research Express,2019,6(11):116330.
- [95] JIANG D H, CHEN J J, LU B B, et al. Preparation, crystallization kinetics and microwave dielectric properties of $\text{CaO-ZnO-B}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5\text{-TiO}_2$ glass-ceramics[J]. Ceramics International,2019, 45(7, Part A):8233-8237.
- [96] XI J, LU B B, CHEN J J, et al. Ultralow sintering temperature and permittivity with excellent thermal stability in novel borate glass-ceramics[J]. Journal of Non-Crystalline Solids, 2019, 521: 119527.
- [97] ZHU H Y, FU R L, AGATHOPOULOS S, et al. Crystallization behaviour and properties of $\text{BaO-CaO-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ glasses and glass-ceramics for LTCC applications[J]. Ceramics International, 2018,44(9):10147-10153.
- [98] XIA Y S, HU Y K, REN L C, et al. Manufacturing a high performance film of $\text{CaO-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ glass-ceramic powder with surface modification for LTCC application[J]. Journal of the European Ceramic Society,2018,38(1):253-261.
- [99] WANG S F, LAI B C, HSU Y F, et al. Dielectric properties of $\text{CaO-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ glass-ceramic systems in the millimeter-wave frequency range of 20-60 GHz[J]. Ceramics International, 2021, 47(16):22627-22635.
- [100] 夏杰桢,曹蓉,吴琪.机器学习结合密度泛函理论计算在材料科学中的研究进展[J].化学通报,2022,85(10):1224-32.
- XIA Jiezhn, CAO Rong, WU Qi. Research progress of machine learning combined with density functional theory calculations in materials science[J]. Chemistry, 2022, 85(10): 1224-1232.
- [101] 秦锦成,刘志甫,马名生,等.数据驱动范式下微波介质陶瓷材料及器件研究进展[J].硅酸盐学报,2023,51(4):921-933.
- QIN Jincheng, LIU Zhifu, MA Mingsheng, et al. Research progress on microwave dielectric ceramic materials and devices under data-driven paradigm[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society,2023,51(4):921-933.
- [102] SCOTT D J, COVENEY P V, KILNER J A, et al. Prediction of the functional properties of ceramic materials from composition using artificial neural networks[J]. Journal of the European Ceramic Society,2007,27(16):4425-4435.
- [103] MORITA K, DAVIES D W, BUTLER K T, et al. Modeling the dielectric constants of crystals using machine learning[J]. The Journal of Chemical Physics,2020,153(2):024503.
- [104] QIN J C, LIU Z F, MA M S, et al. Machine learning approaches for permittivity prediction and rational design of microwave dielectric ceramics[J]. Journal of Materiomics,2021,7(6):1284-

- 1293.
- [105] KIREEVA N, SOLOV'EV V P. Machine learning analysis of microwave dielectric properties for seven structure types: the role of the processing and composition[J]. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*,2021,156:110178.
- [106] LIU Y C, LIU T Y, HUANG T H, et al. Exploring dielectric constant and dissipation factor of LTCC using machine learning [J]. *Materials*,2021,14(19):5784.
- [107] OBA Y, UMEDA Y, ISHII D. Materials informatics for dielectric loss tangent in the millimeter wave region[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*,2022,61(SN):SN1007.
- [108] WANG X, DING Y H, ZHU X L, et al. Structure and microwave dielectric characteristics of (Ba, Sr, Ca)HfO₃ ceramics[J]. *Journal of Materiomics*,2025,11(3):100924.
- [109] NI Z Q, WANG F L, GUAN Y Q, et al. Acceleration of optimizing the dielectric properties of (Ca_{0.7}Nd_{0.2})_{1-x}(Li_{0.5}Nd_{0.5})Ti_{1-y}(Mg_{1/3}Nb_{2/3})_yO₃ with the aid of machine learning[J]. *Journal of the American Ceramic Society*,2024,107(5):3380-3389.
- [110] APPIAH M, YANG Y X, ULLAH B, et al. Exceptionally optimized millimeter-wave properties of cordierite-based materials via innovative processing and predictive analytics[J]. *Journal of the European Ceramic Society*,2025,45(6):117206.

收稿日期:2025-10-22;修回日期:2025-12-22。

作者简介:

包健(1998—),男(汉族),山东临沂人,博士生,主要从事低介电常数电介质功能陶瓷与器件的研究;

通信作者:周迪(1983—),男(汉族),山东泰安人,教授,主要从事电介质功能材料与器件的研究。