ՀԱՅԱՍՏԱՆԻ ՀԱՆՐԱՊԵՏՈՒԹՅԱՆ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱՉԳԱՅԻՆ ԱԿԱԴԵՍԻԱ НАЦИОНАЛЬНАЯ АКАДЕМИЯ НАУК РЕСПУБЛИКИ АРМЕНИЯ NATIONAL ACADEMY OF SCIENCES OF THE REPUBLIC OF ARMENIA

2шјшитшић рћићшцши հшићњи Химический журнал Армении 75, № 3-4, 2022 Chemical Journal of Armenia

ОБЩАЯ, НЕОРГАНИЧЕСКАЯ И ФИЗИЧЕСКАЯ ХИМИЯ

DOI: 10.54503/0515-9628-2022.75.3-230

КЕРАМИКА НА ОСНОВЕ ЭВТЕКТИКИ СИСТЕМЫ ВаО-В₂O₃-SiO₂ и Al₂O₃ Для применения в технологии низкотемпературной сообжигаемой керамики

А. К. КОСТАНЯН*, А. Г. МАНУКЯН, К. А. САРГСЯН, Г. С. КАРАХАНЯН, К. Н. ЭДИЛЯН, Т. В. ГРИГОРЯН, М. А. ПОГОСЯН

Институт общей и неорганической химии им. М.Г. Манвеляна НАН Республики Армения, Армения, Ереван, 0051, ул. Аргутяна, 2 пер., 10 E-mail:aram_kostanyan@yahoo.com

Поступило 01.12.2022

В статье приводятся данные по получению и исследованию свойств композиционного материала для технологии низкотемпературной совместно обжигаемой керамики (LTCC). Керамика получена на основе стекла эвтектического состава псевдобинарной системы BaB₂O₄ – BaSiO₃ и наполнителя Al₂O₃. Установлено, что в диапазоне концентраций Al₂O₃ от 40 до 70 *масс.* % при спекании помимо Al₂O₃ в композитах синтезируется вторичная фаза гексацельзиана (BaAl₂Si₂O₈). Увеличение соотношения стекло/Al₂O₃ в композитах приводит к росту температурного коэффициента линейного расширения и величины диэлектрической постоянной. Композиционная керамика с исходным соотношением стекло/Al₂O₃ равным 60/40 и спеченная при 920 °*C* имеет величину ε_r равную 9,13 и tg $\delta < 10^{-4}$ измеренного при частоте 1*MГц*. Прочность на изгиб такой керамики составляет 72,5 *МПа*, прочность на сжатие - 165,6 *МПа*, ТКЛР = 66,5 ·10⁻⁷·K⁻¹ и композит химически совместим с серебром. Все это указывает на то, что он является перспективным материалом для применения в подложках для низкотемпературной совместно обжигаемой керамики (LTCC).

Библ. ссылок 16, рис. 6.

Ключевые слова: сообжигаемая керамика, диэлектрические свойства, боросиликатное стекло, гексацельзиан, микроструктура.

Развитие комплексных высокочастотных миниатюрных схем для 230

электроники связано с получением подложек по технологии низкотемпературной совместно обжигаемой керамики (Low Temperature Co-fired Ceramic, LTCC). Такие интегральные схемы, обычно в форме трехмерных монтажных плат, состоят из множества тонких слоев керамики с низкой диэлектрической проницаемостью (обычно $\varepsilon_r \approx 4\div12$) и проводников, которые наносятся на подложки из паст, содержащих высокоэлектропроводящие металлы, в частности серебро, поэтому их совместное спекание проводят при температурах не более 950 °C. Керамический материал платы должен обладать малыми диэлектрическими потерями, иметь высокую теплопроводность, хорошие механические свойства и не вступать во взаимодействие с материалом проводников при спекании [1].

На практике используют два подхода для получения керамических материалов для таких плат. Первый подход - стеклокерамический, который предполагает почти полное расстеклование предварительно сваренного стекла в процессе спекания. Во втором, наиболее распространенном способе, керамический материал получают спеканием исходного материала, состоящего из стекла с низкой температурой размягчения и кристаллического керамического наполнителя (чаще всего порошка α-Al₂O₃) [2,3]. Стекло, по сути, лишь смачивает частицы керамического порошка во время спекания, обеспечивая плотную структуру. Объёмная доля матричного стекла в основном определяет параметры спекания, влияет на величину диэлектрической проницаемости композиции, а кристаллический наполнитель улучшает диэлектрические показатели, минимизирует деформацию изделия и повышает механическую прочность конечной керамики. Таким образом, свойства конечного композита стекло плюс керамика контролируется отношением стекла и наполнителя, а также индивидуальными свойствами компонентов исходной смеси. Процесс спекания такой композиции описывается тремя этапами - появление жидкой фазы, частичное растворение в жидкой фазе наполнителя, и далее твердофазное спекание [4,5,6,7] В некоторых случаях, роль стекла заключается не только в том, чтобы служить связующим компонентом для керамических частиц, но также для взаимодействия с керамическим наполнителем при спекании, обеспечивая образование новых кристаллических фаз с высоким фактором добротности. [8].

Следовательно, разработка новых материалов с набором требуемых диэлектрических и других свойств является самым сложным аспектом данной технологии.

Большинство исследованных составов стекол, используемых для получения низкотемпературных сообжигаемых материалов, относятся к легкоплавким боратным, боросиликатным, алюмоборосиликатным системам, которые модифицированы оксидами MgO, CaO, BaO, ZnO, PbO. Стекла этих систем имеют низкие значения диэлектрической проницаемости (ε_r)

231

и диэлектрических потерь (tg δ), не содержат дефицитных компонентов и имеют относительно низкую себестоимость. [1,8,9]

В настоящей работе приводятся данные по получению и исследованию свойств композиционного материала для LTCC технологии на основе стекла эвтектического состава псевдобинарной системы BaB₂O₄ – BaSiO₃ и наполнителя Al₂O₃.

Экспериментальная часть

В псевдобинарной системе BaB₂O₄ - BaSiO₃ имеется эвтектика состава 54,4/45,6 (моль %) с температурой плавления 940 °C [10,11]. Для синтеза стекла эвтектического состава используют реактивы BaCO₃, H₃BO₃ и SiO₂ марки ч.д.а. Варку стекла проводят в электрической печи сопротивления при температуре 1200 °C в платиновом тигле с выдержкой при этой температуре 20 минут. Расплав стекла отливают в предварительно нагретые металлические формы и отжигают в муфельной печи при температурах на 10 -15 градусов ниже дилатометрических температур начала деформации стекла для определения его свойств. Стекло после отливки подвергают мокрому помолу в керамической шаровой мельнице с корундовыми шарами (BMU-100) в среде этилового спирта при соотношении Т: Ж = 1: 4 в течение 8 час. Средний размер частиц измельченного стекла составляет 3.5 мкм. Далее в пульпу стекла добавляют расчетное количество порошка α -Al₂O₃ марки A-16SG (Almatis. Германия) [12] со средним размером частиц 0.4 мкм и перемешивают в течение 6 час. Пульпу фильтруют на воронке Бюхнера и осадок сушат при 120 °C. Для получения образцов керамики методом полусухого прессования готовят пресс-порошок с добавлением связующего (5 % водный раствор поливинилового спирта) в количестве 8 масс. % и небольшого количества дибутилфталата в качестве пластификатора. Путем одноосного прессования при давлении 30 МПа получают диски и штабики для определния электрофизических, механических и других характеристик керамики. Обжиг образцов проводят в муфельной печи в воздушной атмосфере по режиму: нагрев до температуры 500 °C с выдержкой 60 мин. для выгорания органических добавок и далее нагревают до температуры спекания с выдержкой 60 мин.

Рентгенофазовый анализ образцов проводят на приборе URD-6 с источником рентгеновского излучения CuKα, а электронно-микроскопические снимки образцов керамики получают на сканирующем электронном микроскопе (SEM) VEGA TS 5130MM при ускоряющем напряжении 20 кВ.

Температурный коэффициент линейного расширения (ТКЛР) стекла и образцов керамических композитов измеряют на дилатометре ДКВ5-А по стандартной методике, а истинную плотность - пикнометрическим мето-232 дом в толуоле (ГОСТ 2211-2020). Определение диэлектрических параметров - диэлектрической постоянной (ε_r) и тангенса угла диэлектрических потерь (tg δ) проводят на измерителе иммитанса E7 – 20 при комнатной температуре с использованием образцов в виде дисков с Ø = 30 ммс толщиной не более 2 мм, с нанесенным слоем серебряной пасты с дальнейшим вжиганием по ГОСТ 22372-77. Кажущуюся плотность определяют методом гиростатического взвешивания (метод Архимеда) по ГОСТ 2409 – 2014. Определение прочности на сжатие и изгиб проводят согласно ГОСТ 24409-80 на разрывной машине ZD – 10/90.

Обсуждение результатов

Сваренное стекло эвтектического состава имело следующие параметры: температура стеклования (t_g) – 510 °C, температура начала деформации ($t_{H,A}$) - 555 °C, пикнометрическая плотность – 4,11 г/см³, ТКЛР – 110.0·10⁷·К⁻¹ в интервале 20-300 °C.

Процесс спекания керамики изучали при массовых соотношениях стекло/Al₂O₃ равных 25:75, 40:60, 50:50, 60:40 и 70:30. Предварительные исследования спекаемости образцов проведенные при температурах 820 ^{o}C , 860 ^{o}C и 920 ^{o}C показали, что наибольшее уплотнение образцы достигали при 920 ^{o}C и времени выдержки 1 час, поэтому дальнейшие исследования проводились в основном при этих условиях. На рис.1 приведены рентген дифракционные спектры спеченных при 920 ^{o}C образцов керамики при вышеуказанных соотношениях компонентов, которые показывают наличие в синтезированных композитах двух кристаллических фаз – фазу корунда, идентифицированную по порошковому дифракционному файлу ICDD PDF 82-1467 и фазу гексагонального цельзиана (BaO·Al₂O₃·2SiO₂), идентифицированную по порошковому дифракционному файлу ICDD PDF 26-0137.

Из полученных данных следует, что при спекании происходит взаимодействие размягченного стекла с наполнителем с образованием алюмосиликатата бария – цельзиана гексагональной модификации, в литературе именуемой гексацельзианом. Следовательно, спекание в данном случае протекает по механизму частично реакционного жидкофазного спекания, а именно, растворением α -Al₂O₃ в размягченном стекле с образованием новой фазы, с дальнейшим выделением этой фазы из насыщенного расплава [13, 14].



Рис.1 Рентген дифракционные спектры спеченных образцов керамики с массовым соотношением стекло/α-Al₂O₃, равным 25/75 (1), 40/60 (2), 55/50 (3), 60/40 (4) и 70/30 (5).

Увеличение в исходном составе содержания стекла приводит к закономерному уменьшению величины дифракционных пиков Al_2O_3 , однако интенсивности основных пиков гексацельзиана увеличиваются незначительно. Это говорит о том, что кроме указанных кристаллических фаз, присутствующая стеклофаза преимущественно бариевоборатного состава, насыщается оксидом алюминия и дальнейшее образование гексацельзиана тормозится ввиду малого содержания силикатной составляющей. Косвенно это подтверждает также изменение пикнометрической плотности композитов при изменении соотношения компонентов (Рис.2). Минимальная пикнометрическая плотность достигается при соотношении компонентов равным около 50/50, что свидетельствует о насыщении стеклофазы гексацельзианом, т.к. гексацельзиан имеет наименьшую плотность из всех компонентов смеси (3.21-3.28 e/cm^3 по сравнению с 4.11 e/cm^3 у стекла эвтектического состава и 3.95 e/cm^3 у α - Al_2O_3).

Дальнейшее увеличение содержания стекла в составе композиции увеличивает плотность, связанное с высокой плотностью стекла эвтектического состава. Изменение относительной плотности, расчитанная как отношение кажущейся плотности к истинной (в данном случае к пикнометрической) показывает, что максимального значения (99.1%) она достигает для образца с соотношением стекло/ Al_2O_3 равным 60/40, далее начинает резко падать. Данное обстоятельство объясняется полным растворением Al_2O_3 в стекле с изменением состава композиции, так как в



Рис. 2. Зависимость пикнометрической плотности (d), и относительной плотности (v) композитов от соотношения стекло/Al₂O₃

этом случае композиция уже состоит из стекла барий-алюмоборосиликатного состава и кристаллической фазы гексацельзиана. Образование насыщенного расплава стекла, способствует полному протеканию взаимодействия компонентов стекла и выделению только кристаллов цельзиана при охлаждении системы. Следовательно, при отсутствии второй кристаллической фазы на рентген дифракционном спектре керамики исходного состава 70/30 (рис.1, спектр 5) проявляются только дифракционные пики гексацельзиана. По-видимому, увеличением объема стеклообразной фазы и предельно возможным выделением кристаллической фазы можно объяснить проявление при спекании коробления и образование закрытых пор в этих образцах.

В работе [15] при синтезе керамики по LTCC технологии использование богатого кремнеземом боросиликатного стекла и оксида алюминия, также было установлено образование гексацельзиана, однако в качестве вторичных фаз отмечалось образование также и силикатов бария ($BaSi_2O_5$, $Ba_2Si_3O_8$). Отсутствие в составе композита в исследованной нами системе силикатов бария, по-видимому, можно объяснить тем, что из всех вторичных фаз образование фазы гексацельзиана является термодинамически наиболее выгодным ввиду относительно низкого содержания SiO_2 в стекле эвтектического состава. Отметим, что растворение Al_2O_3 в стекле приводит также к увеличению вязкости стеклофазы и, следовательно, торможению диффузионных процессов с уменьшением скорости образования и кристаллизации гексацельзиана.



Рис.3. Электронно-микроскопические снимки керамики состава стекло / $\alpha\text{-Al}_2O_3$: а) 40/60, б) 50/50 и с) 60/40

Электронно-микроскопические исследования (рис.3) показали, что микроструктура поверхности излома композитов стекло - Al_2O_3 , спеченных при 920 °C в течение 60 *мин*. имеют однородную, плотную микроструктуру с микропорами (диаметр пор $1.2 \div 2.6 \text{ мкм}$).

Качественный микроанализ, выполненный в двух участках образца 50/50 (рис 4), отличающиеся по структуре поверхности, показывает, что в первом участке (спектр 1) содержание SiO_2 больше глинозема, что указывает на наличие фазы гексацельзиана, а на другом (спектр 2) - резко увеличивается концентрация Al_2O_3 , свидетельствующая о превалировании стеклофазы, обогащенной глиноземом.





Спектр 2

Рис. 4. Результаты качественного элементного микроанализа двух участков образца керамики стекло/ α-Al₂O₃ при массовом соотношении 50/50.

Известно, что разрабатываемые материалы для LTCC технологии не должны вступать в химическую реакцию с материалом проводников [1]. Для выяснения совместимости материала синтезированной керамики с 236

серебром был синтезирован образец керамики состава 50/50 стекло/ α -Al₂O₃ с добавлением 10 *масс.* % порошка серебра с размерами частиц 20-50 мкм. На рис.5 представлены электронно-микроскопические снимки поверхности излома керамики, из которых видно, что частицы серебра хорошо сочетаются с материалом керамики и на поверхностях раздела фаз не наблюдается признаков взаимодействия.

Измерение диэлектрической постоянной и тангенса угла диэлектрических потерь образцов керамических композиций при комнатной температуре и частоте 1 МГц показало, что диэлектрическая постоянная увеличивается с увеличением соотношения стекло/Al₂O₃ (рис 6), причем для всех образцов величина tgδ меньше 10^{-4} . Уменьшение величины диэлектрической постоянной композиций по сравнению с исходным стеклом и α -Al₂O₃ объясняется образованием фазы гексацельзиана, для которой величина ε_r , по литературным данным [16], равна 6.5-7. Следует также учитывать, что наличие небольшой пористости в композите также снижает значение диэлектрической постоянной. Обратное явление, а именно увеличение ε_r , наблюдается при увеличении доли стеклянной фазы в композите.



Рис.5.Электронно-микроскопические снимки керамики состава стекло/α-Al₂O₃ (50/50) с добавлением порошка серебра

Аналогичная картина наблюдается для значений ТКЛР образцов (рис. 6) которые монотонно увеличиваются с увеличением содержания стекла в композите, что вполне закономерно, т.к. ТКЛР исходного стекла наибольший из компонентов керамической композиции ($110.0 \cdot 10^{-7} \cdot K^{-1}$ в интервале 20-300 °C). Одновременно можно заметить, что до определенного соотношения стекло / Al_2O_3 (~ 50/50) увеличение незначительное, ввиду образования кристаллической фазы цельзиана, имеющей наименьший коэффициент расширения в составе композиции равный (21-22) $\cdot 10^{-7} \cdot K^{-1}$ в интервале 20-100 °C) [16].



Рис.6. Изменения диэлектрической постоянной ϵ_r (1), ТКЛР (2) и прочности на изгиб $\delta_{\text{изг.}}$ (3) композиций от соотношения стекло/ Al_2O_3

Измерение прочности на изгиб образцов (рис. 6) показало, что прочность возрастает с увеличением доли стеклянной фазы до соотношения 60/40. Дальнейшее увеличение соотношения до 70/30, как уже указывалось, приводит к деформации образцов в процессе спекания и образованию значительного количества закрытых пор, поэтому измерения прочности для таких образцов не проводились. Из всех исследованных образцов, максимальной прочностью на изгиб обладает керамическая композиция с исходным соотношением компонентов 60/40, которая составляет 72.5 *МПа* (прочность на сжатие – 165.6 *МПа*). Для этих же образцов величина $\varepsilon_r = 9.13$, tg $\delta < 10^{-4}$, a TKЛР = 66.5 $\cdot 10^{-7} \cdot K^{-1}$.

Таким образом, проведенные исследования показывают, что композиционный керамический материал, синтезированный на основе эвтектики псевдобинарной системы $BaB_2O_4 - BaSiO_3$ и порошка α -Al₂O₃ марки A-16SG при массовом соотношении стекла и α -Al₂O₃ равном 60/40 является перспективным материалом для получения подложек, используемых в электронике, по технологии низкотемпературной совместно обжигаемой керамики.

Благодарности: авторы благодарят и.о. зав. лаборатории материаловедения ИФИ НАН РА Бадаляна Г.Р. за оказанную помощь при исследования морфологии поверхности образцов методом сканирующей электронной микроскопии.

BaO-B₂O₃-SiO₂ ՀԱՄԱԿԱՐԳԻ ԷՎՏԵԿՏԻԿԱՑԻ ՀԻՄՔՈՎ ԵՎ Al₂O₃-ով ՍՏԱՑՎԱԾ ԿԵՐԱՄԻԿԱ ՑԱԾՐՋԵՐՄԱՍՏԻՃԱՆԱՑԻՆ ՀԱՄԱՏԵՂ ԹՐԾՄԱՆ ՏԵԽՆՈԼՈԳԻԱՅԻ ՀԱՄԱՐ

Ա. Կ. ԿՈՍՏԱՆՅԱՆ, Ա. Գ. ՄԱՆՈՒԿՅԱՆ, Կ. Ա. ՍԱՐԳՍՅԱՆ, Գ. Ս. ԿԱՐԱԽԱՆՅԱՆ, Կ. Ն. ԷԳԻԼՅԱՆ, Տ. Վ. ԳՐԻԳՈՐՅԱՆ, Մ. Ա. ՊՈՂՈՍՅԱՆ

Հոդվածում բերված են տվյալներ ցածրջերմաստիճանային համատեղ *խ*րծվող (LTCC) կերամիկայի ստացման և հատկու*խ*յունների վերաբերյալ։ Կերամիկական նյու*խ*երը ստացվել են BaB₂O₄ – BaSiO₃ կեղծ բինար համակարգի էվտեկտիկ բաղադրու*խ*յան ապակու և Al₂O₃ լցանյու*խ*ի հիման վրա։ Հաստատված է, որ Al₂O₃- h 40-ից 70 % (զանդվածային) միջակայքում *խ*րծման ըն*խ*ացքում, Al₂O₃-ից բացի, կոմպոզիտում, որպես երկրորդական ֆազ, սին*խ*եզվում է հեքսացելզիան (BaAl₂Si₂O₈)։ Ապակի/Al₂O₃ հարաբերու*խ*յան մեծացումը հանդեցնում է գծային ընդարձակման դործակցի և դիէլեկտրիկ հաստատունի աճի։ 60/40 ապակի/ Al₂O₃ բաղադրու*խ*յամբ կոմպոզիտային կերամիկան (*խ*րծված 920°C) ունի ε_r հավասար 9,13 և tg $\delta < 10^4$ չափված 1ՄՀց հաճախականու*խ*յան տակ։ Այսպիսի կերամիկայի ճկման ամրու*խ*յունը կազմում է 72,5 ՄՊա (սեղմման ամրու*խ*յունը` 165,6 ՄՊա), իսկ գծային ընդարձակման գործակիցը համարար է 66,5 ·10⁷K⁻¹-ի և կոմպոզիտը քի-միապես համատեղելի է արծա*խ*ի հետ։ Այս տվյալները վկայում են, որ տվյալ կոմպոզիտը կաղնում է մամասի

CERAMICS BASED ON EUTECTIC OF BaO-B₂O₃ -SiO₂ SYSTEM AND AL₂O₃ FOR USING IN THE LOW TEMPERATURE CO-FIRED CERAMICS TECHNOLOGY

A. K. Kostanyan*, A. G. Manukyan, K. A. Sargsyan, G. S. Karakhanyan, K. N. Edilyan, T. V. Grigoryan and M. A. Poghosyan

M.G. Manvelyan Institute of General and Inorganic Chemistry NAS RA Bld. 10, 2 Lane, Argutyan Str., Yerevan, 0051, Armenia E-mail: aram_kostanyan@yahoo.com

The data on the preparation and study of the properties of a composite material for the technology of low-temperature co-fired ceramics (LTCC) are presented in this article. Ceramics based on glass of eutectic composition of pseudobinary system $BaB_2O_4 - BaSiO_3$ and Al_2O_3 filler is obtained. It is found that in the Al_2O_3 concentration range from 40 to 70 *wt.%* during sintering in addition to Al_2O_3 the secondary phase of hexacelzian ($BaAl_2Si_2O_8$) is synthesized in composites. The glass / Al_2O_3 ratio increasing in composites leads to the increase of the coefficient of thermal expansion (CTE) and the value of the dielectric constant. The composite ceramics with an initial glass / Al_2O_3 ratio 60/40 and sintered at 920 $^{\circ}C$ has ε_r value equaled to 9.13 and tg $\delta < 10^{-4}$ measured at a frequency of 1 *MHz*. The bending strength of such ceramics is 72.5 *MPa* (compressive strength is 165.6 *MPa*) and

 $CTE = 66.5 \cdot 10-7 \cdot K^{-1}$. The composite is chemically compatible with silver, which indicates that it can be successfully used in low-temperature co-fired ceramic (LTCC) substrates.

ЛИТЕРАТУРА

- Sebastian M.T. and Jantunen H. Low Loss Dielectric Materials for LTCC Applications // Inter. Mater. Rev., 2008, v.53, p.p. 57-90.
- [2] Wu J. M. and Huang H.L. Microwave properties of zinc, barium and lead borosilicate glasses // J. Non-Cryst. Solids, 1999, v. 260, Issues 1-2, p.p. 116-124.
- [3] Surendran K.P., Mohanan P., Sebastian M.T. The effect of glass additives on the microwave dielectric properties of Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ ceramics // J. Solid State Chem., 2004, v. 177, Issue 11, p.p. 4031-4046.
- [4] Jean J.-H. and Lin S.-C. Effects of Borosilicate Glass on Densification and Properties of Borosilicate Glass + TiO2 Ceramics // J. Mater. Res., 1999, v.14, p.p. 1359-1363.
- [5] Ming Liu, Hongqing Zhou, Haikui Zhu, Zhenxing Yue, Jianxin Zhao Low temperature sintering and dielectric properties of Ca-Ba-Al-B-Si-O glass/Al₂O₃ composites for LTCC applications // Journal of Wuhan University of Technology-Mater. Sci. Ed., 2013, v.28, p.p. 1085-1090.
- [6] Xingyu Chen, Weijun Zhang, Shuxin Bai, Yongguo Du Densification and characterization of SiO₂-B₂O₃-CaO-MgO glass/Al₂O₃ composites for LTCC application // Ceram. Int., 2013, v. 39, Issue 6, p.p. 6355-6361.
- [7] Ming Liu, Hongqing Zhou, Haikui Zhu, Zhenxing Yue, Jianxin Zhao Microstructure and dielectric properties of glass/Al₂O₃ composites with various low softening point borosilicate glasses //J Mater Sci: Mater Electron., 2012, v. 23, p. p. 2130–2139.
- [8] Song Chen, Degui Zhu Phase formation and properties of the BaO–B₂O₃–SiO₂ and –Al₂O₃ ceramics prepared via an aqueous suspension route // J. Alloys Compd., 2012, v. 536, p.p. 73-79.
- [9] Xianfu Luo, Huajie Tao, Pengzhen Li, Yao Fu, Hongqing Zhou Properties of borosilicate glass/Al₂O₃ composites with different Al₂O₃ concentrations for LTCC applications // J.Mater. Sci.: Mater. Electron., 2020, v. 31, p. p.14069–14077 (2020).
- [10] Levin E.M. and Ugrinic G.M.-The System Barium Oxide-Boric Oxide-Silica // J. Res. Natl. Bur. Stand (US), 1953, v.51, №1, p.p. 37-56.
- [11] W. Wong-Ng, R. S. Roth, T. A. Vanderah, and H. F. McMurdie Phase Equilibria and Crystallography of Ceramic Oxides // J.Res. Natl. Inst. Stand. Technol., 2001, v.106, №6, p.p. 1097-1134.
- [12] www.almatis.com
- [13] German R.M., Suri P., Park S.J. Review: liquid phase sintering // J. Mater. Sci., 2009, v. 44, p.p. 1–39.
- [14] M.F. Zawrah, E.M.A. Hamzawy Effect of cristobalite formation on sinterability, microstructure and properties of glass/ceramic composites // Ceram. Int., 2002, v.28, Issue 2, p.p. 123-130.
- [15] I.J. Induja, K.P. Surendran, M.R. Varma, M.T. Sebastian Low κ, low loss alumina-glass composite with low CTE for LTCC microelectronic applications// Ceram. Int., 2017, v. 43, Issue 1, Part A, p.p.736 -740.
- [16] https://pandia.ru/399994/