

유리 프리트의 연화점이 저온소성용 글라스/세라믹 복합체의 소결거동에 미치는 영향

구기덕, 오근호

한양대학교 무기재료공학과, 서울, 133-791

Effect of softening point of glass frit on the sintering behavior of low-temperature cofirable glass/ceramic composites

K.D. Koo and K.H. Auh

Department of Inorganic Materials Engineering, Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

요 약 저온소성용 글라스/세라믹 복합체 제조시 사용되는 유리 프리트의 연화점과 유리의 함량이 소결특성에 미치는 영향에 대해 고찰하였고, 이에따라 고밀도의 저온소성용 글라스/세라믹 복합체를 제조하였다. 유리의 함량이 증가함에 따라 복합체의 소결밀도는 증가하였고, 이때 사용되는 유리의 연화점이 낮을 경우 유리의 함량이 적은 시편의 경우에도 변형이 일어나는 것을 알 수 있었다. 유리의 연화점이 높은 유리를 사용한 시편의 경우, 유리의 함량을 증가시켜도 시편의 변형은 일어나지 않았으며, 소결밀도는 계속적으로 증가하여 치밀화가 하고 있음을 알 수 있었다. 이러한 유리함량과 유리의 연화점이 소결특성에 미치는 영향을 고찰함으로써, 높은 밀도의 동시소성용 글라스/세라믹을 제조할 수 있는 유리의 연화점과 유리함량을 예측할 수 있었고, 이에따라 790°C의 연화점을 갖는 유리를 유리 프리트로 사용함으로써 900°C의 소성온도에서 소결밀도 97% 이상의 고밀도의 저온소성용 글라스/세라믹 복합체를 제조할 수 있었다.

Abstract The effect of softening point and glass amount of glass frit on the sintering behavior of low temperature cofirable glass/ceramic composites was studied and according to these results, glass/ceramic composites with high sintered density was fabricated. The density of composites was increased as the glass amount was increased. In case of using the glass with low softening point, the deformation of specimen was occurred though the ratio of the glass amount in the specimen was low. But, in case of using the glass with high softening point, the sintered density of composites was increased in accordance with glass amount. With the specimen of high softening point, the deformation was not happened. Therefore, it was found that the densification was progressed continuously in high glass amount. From the study on the effect of softening point of glass on sintering behavior, the suitable softening point and glass amount for fabrication of glass/ceramic composites can be anticipated. When glass frit with softening point of 790°C was chosen according to this result, low temperature cofirable glass/ceramic composites with high density (97%) at 900°C was fabricated.

1. 서 론

반도체 산업의 발달과 더불어 반도체용 칩뿐만 아니라 이러한 실리콘 칩을 실장하기 위한 기판용 재료에 대한 중요성이 부각되어 이에대한 연구가 활발히 이루어지고 있으며, 기존의 플라스틱 기판에서 나타나는 문제점을 극복하고자, 재료적인 측면에서의 개발이 이루어져서 최근에 세라믹 기판에 대한 활발한 연구와 발전이 이루어져 왔다[1-4]. 초기 세라믹 재료로는 열방사성, 내식성, 기계적 강도 등이 우수한 알루미늄을 이용한 기판이 개발되어 1920년대부터 현재까지 기판재료로서 널리

사용되었으며[5-7], 1950년부터는 기판위에 전기적 회로를 형성시키기 위한 금속페이스트와 알루미늄 기판과의 접합에 관한 연구도 계속되어 왔다. 특히 적층기술의 발달과 함께 동시소성을 위한 접합방법이 고온에서 소결가능한 Mo이나 W과 같은 금속을 이용하여 많은 연구가들에 의해서 소결온도 및 소결분위기에 초점을 두어 널리 연구되어 졌다[8-10].

그러나 최근에는 반도체 분야의 기술혁신이 이루어짐으로써 반도체 소자의 고집적화, 미세화 및 고속화가 진행됨에 따라 반도체 소자를 실장하는 회로기판도 고밀도, 다기능성을 필요로 하게 되었다. 기존의 고온소결용

알루미늄은 유전율이 높아 전송속도를 지연시키고, Mo이나 W과 같이 비교적 비저항이 높은 금속만을 사용하게 되므로 신호선폭을 줄이는 데 있어서 많은 제약을 받았고 결국 이러한 것이 고밀도화와 미세화를 실현하는데 장애가 된 것이다. 이러한 요구조건을 만족하기 위해 1980년대에 들어서 새로운 기능을 갖는 기판재료가 연구, 개발되었다[11, 12]. 대표적으로는 AlN, SiC 기판 및 유리를 용융한 유리 프리트에 세라믹을 충전제(Filler)로 첨가한 저온소성 기판 등이 이에 속한다.

이러한 새로운 기판재료중 낮은 열팽창률과 낮은 유전율을 가지며, 950°C 미만의 온도에서 소결이 가능한 유리와 세라믹과의 복합체인 글라스/세라믹 복합체의 저온소성 기판에 대한 연구가 가장 활발히 이루어지고 있어 최근에는 대부분 이에 대한 연구가 집중적으로 이루어지고 있는 실정이다[13-16]. 이는 저온에서 소결이 가능하므로 전도도가 매우 우수한 Cu 혹은 Ag 등과의 동시소결이 가능하여 저유전율용 패키징 재료로서 뿐만 아니라, 높은 전도도로 인해 고주파대 영역에서 전도손실(Conductor Loss)이 낮다는 장점으로 고주파 부품으로서도 각광을 받게 되었다.

이러한 글라스/세라믹 복합체 개발을 위해 유전율이 낮은 코디어라이트계 세라믹을 충전제로 사용하여 기판의 유전율을 낮추거나, 세라믹/유리분말의 입자크기 및 분포 등을 조절하여 소결조건을 최적화시키는 연구, 그리고 금속과의 동시소성을 위한 수축을 조절 등에 관한 많은 연구가 행해져 왔다[17-20]. 글라스/세라믹 복합체 제조시 유리의 특성은 저온소성 기판의 물성 및 소결공정 등의 제조공정에 매우 많은 영향을 미치나, 이러한 유리 자체의 특성이 저온소성용 글라스/세라믹 복합체에 미치는 영향에 관한 전반적인 연구는 아직까지 이루어지지 않았다. 이에따라 본 연구에서는 유리의 연화점이 서로 다른 여러 가지의 유리를 사용하여 글라스/세라믹 복합체를 제조하고, 글라스/세라믹의 혼합비 및 소결 온도 등을 변화시켜 실험함으로써 유리프리트의 특성이 저온소성용 글라스/세라믹 복합체에 미치는 영향에 대한 체계적인 고찰을 하고자 하였다.

2. 실험방법

2.1. 글라스/세라믹 복합체의 제조

글라스/세라믹 복합체 제조를 위한 출발물질로서, 세라믹은 알루미늄 분말(ALM-43, Sumitomo, Japan)을 사용하였고, 유리분말은 연화점이 각각 다른 5가지의 프리트를 사용하였으며, 이러한 유리분말의 특성을 Table 1에 나타내었다.

세라믹과 유리분말의 정확한 칭량을 위해 분말들은 건조기에서 24시간 이상 건조시킨 분말로써 실험하였다. 유리 함량이 다른 여러종류의 복합체 제조를 위해 연화점이 다른 5가지의 유리분말 각각에 일정량의 세라믹 분말을 혼합하여 유리의 연화점 및 유리 함량이 다른 여러종류의 복합체가 제조되도록 하였다.

유리분말과 세라믹 분말을 일정함량이 되도록 칭량한 후 폴리에틸렌 Jar 내에 분말과 증류수를 넣은 후 지르코니아 볼을 사용하여 24시간 혼합하였다. 본 연구에서는 밀도가 서로 다른 유리와 세라믹 분말을 사용하므로 균일한 혼합이 매우 중요하게 되고, 이에 따라 혼합된 슬러리의 건조 및 성형을 위한 결합제 첨가시 주의를 요하게 된다. 본 연구에서는 혼합된 슬러리를 교반기에 회수하여 혼합분말대비 1 w/o의 PVA계 결합제 용액을 첨가한 후 교반하면서 건조를 시킴으로써 균일한 건조 및 결합제가 고르게 분포하도록 하였다.

건조된 혼합분말들은 마노 유발을 사용하여 분쇄한 후 프레스기를 이용하여 1 ton의 힘으로 압축성형하여 지름 12 mm, 높이 6 mm의 실린더형 성형체를 제조하였다. 제조된 성형체는 지르코니아 판 위에서 800~900°C의 온도까지 소결하였으며, 최고온도에서 유지시간은 20분 이었다.

2.2. 측정 및 분석

세라믹 분말 1가지와 유리분말 5가지의 출발물질들의 입자크기 및 입자분포를 관찰하기 위하여 입도분석기

Table 1
The properties of glasses used in this experiment

Glass	Main composition	Density (g/cm ³)	Glass transition temp. (T _g)	Softening point (T _s)	Company
G1	SiO ₂ -B ₂ O ₃ -PbO	5.2	420°C	505°C	Asahi Glass
G2	SiO ₂ -B ₂ O ₃ -PbO	3.8	465°C	615°C	Asahi Glass
G3	SiO ₂ -B ₂ O ₃ -PbO	3.5	555°C	700°C	Asahi Glass
G4	SiO ₂ -B ₂ O ₃ -PbO	3.6	575°C	750°C	Asahi Glass
G5	SiO ₂ -B ₂ O ₃ -PbO	2.1	500°C	790°C	Asahi Glass

(Mastersizer, Malvern, U.S.A.)를 이용하였다. 소결체의 밀도는 Archimedes법과 부피 및 무게를 측정하여 계산하는 Dimension법을 병행하여 측정하였고, 글라스/세라믹 복합체의 소결성을 관찰하고자 상대밀도로 나타내었으며, 이때 각 복합체의 이론밀도는 다음의 혼합식을 사용하여 구하였다.

$$D = (W_1 + W_2) / (W_1/D_1 + W_2/D_2) \quad (1)$$

여기서, D : 복합체의 이론밀도

W_1 : 복합체에서 1 성분의 무게비

W_2 : 복합체에서 2 성분의 무게비

D_1 : 복합체에서 1 성분의 이론밀도

D_2 : 복합체에서 2 성분의 이론밀도

각 시편의 소결 전, 후의 평면방향 및 두께방향의 길이를 마이크로미터를 이용하여 측정함으로써 소결 수축율을 구하였고 그 식은 다음과 같다.

$$\alpha = (L_2 - L_1) / L_1 \quad (2)$$

여기서, α : 소결체의 선 수축율

L_1 : 소결 전 시편의 길이

L_2 : 소결 후 시편의 길이

3. 결과 및 고찰

3.1. 유리 프리트트의 연화점이 글라스/세라믹 복합체의 소결성에 미치는 영향

Fig. 1에는 각 출발물질들의 입도분포를 나타내었다. Fig. 1(a)는 세라믹 분말로 사용된 알루미늄 입자의 입도분포 결과로서 1 μm 이하의 입자와 수 μm 크기의 입자가 혼재된 Bimodal 형태임을 알 수 있고, 평균입径은 5.92 μm 이었다. Fig. 1(b)부터 (f)까지는 사용된 유리 분말의 입도분포 결과를 나타내었다. 대부분의 유리 분말들은 크기가 수 μm 대 이었으며, Bimodal 형태의 입도분포를 나타내고 있었다. 일반적으로 이러한 유리 프리트트는 용융법에 의해 거대한 모유리를 제조하고 이를 분쇄공정을 통해서 작은 입자크기를 갖도록 제조하는데, 유리자체는 마찰력이 적기 때문에 분쇄시 모든 입자가 균일한 크기로 되는 것이 어렵고 이에따라 Bimodal 형태가 나타난 것으로 생각된다. 사용한 분말 중 G5 분말은 입도분포가 가장 균일함을 알 수 있었다.

Fig. 2는 연화점이 다른 4가지 종류의 유리 프리트트(G1~G4)의 혼합비를 유리함량이 부피비로 10 v/o로부터 50 v/o까지 변화를 주어 알루미늄 분말과 혼합하여 저온소성용 글라스/세라믹 복합체 제조시 나타나는 소

결거동을 고찰하기 위한 것이므로써 모든 시편을 Cu 혹은 Ag와의 동시소성이 가능한 900°C에서 소결하여 밀도를 나타낸 것이다. 결과를 보면 복합체내의 유리함량이 증가함에 따라 밀도는 증가하는 경향을 나타내었다. 본 연구에서 사용한 세라믹 물질인 알루미늄은 자체의 소결온도가 1600°C 이상이고, 특히 입자크기가 수 μm 일 경우 1700°C의 고온에서도 완전한 소결이 일어나지 않기 때문에, 900°C에서 나타나는 치밀화는 유리의 점성 유동에 의한 액상소결 기구에 의해 나타나게 된다. 이러한 점성유동은 온도에 따른 유리의 점도에 의해 좌우되고, 이를 나타내는 물리적인 특성인 연화점은 이러한 관점에서 글라스/세라믹 소결시 매우 중요한 인자로 작용하게 된다. 연화점이 가장 낮은 G1의 유리 프리트트를 사용한 경우에는 유리함량의 증가에 따라 크게 증가하는 경향을 나타내었고, 연화점이 두번째로 낮은 G2의 유리를 사용한 시편의 경우에도 유리 함량에 따른 밀도증가 현상이 뚜렷하였다. 그러나, 이러한 G1, G2 분말을 사용한 경우에는 40 v/o 이상 유리분말을 혼합할 경우 시편의 변형(Deformation)이 일어났다. 일반적으로 글라스/세라믹 복합체의 소결에 미치는 중요한 인자중의 하나는 각 분말의 입자크기(입자크기 비)이고, 본 연구에서 사용한 분말은 대부분 수 μm 의 크기이므로, 이러한 입자크기에 의한 영향을 배제할 수 있고, 따라서 본 시스템에서 소결에 가장 큰 영향을 미치는 인자는 유리의 특성(연화점)이라고 생각할 수 있다. 이처럼 G1, G2의 유리분말을 사용한 경우에 변형이 일어난 것은 소결온도(900°C)에 비해 연화점이 매우 낮기 때문에 유리분말이 40 v/o 이상 혼합될 경우 유리의 연화로 인한 시편의 변형이 나타난 것으로 생각된다. 그리고, G1의 복합체의 경우 밀도값이 가장 높게 나타났으나, 이는 다른 시편에 비해 치밀화가 많이 진행되어 나타난 결과가 아닌 유리 자체의 밀도가 높기 때문에 나타난 결과로 생각된다.

이러한 글라스/세라믹 복합체의 소결거동을 고찰하기 위하여 밀도를 복합체의 이론밀도에 대한 상대밀도로 하여 Fig. 3에 나타내었다. 그림에서 보듯이 유리 프리트트의 함량이 증가함에 따라 복합체의 치밀화는 향상되었고, 4가지 시편 모두 유리의 함량이 30 v/o 이상이 될 때 소결밀도가 급격히 증가함을 알 수 있다. 연화점이 낮은 G1, G2의 경우에는 유리의 함량이 40 v/o까지 증가함에 따라 소결밀도는 계속적인 증가를 나타내다가 유리함량을 50 v/o 첨가하여 혼합할 경우 소성 시편의 변형이 일어났다. 본 실험에서는 유리 첨가량을 10 v/o 씩 증가시키는 방법으로 실험하였으므로 G1, G2의 시편에서 변형이 일어나지 않는 최대 유리 첨가량은 40 v/o 이었고, 이때의 소결밀도는 각각 86%, 81% 임을 알 수 있었다. 그러나, 연화점이 높은 G3, G4의 시편 경우에는

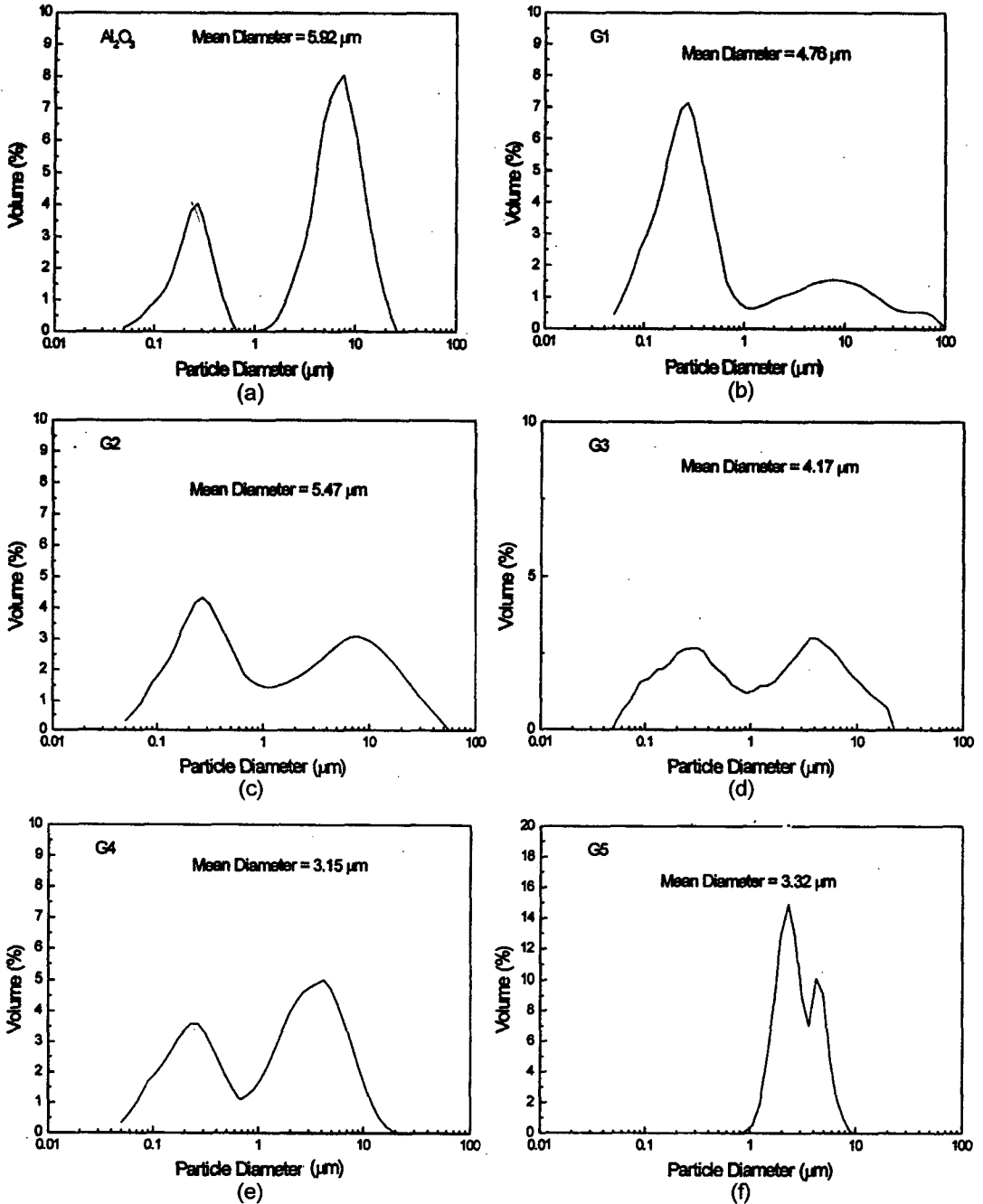


Fig. 1. Particle size distribution of starting materials. (a) Al₂O₃, (b) G1, (c) G2, (d) G3, (e) G4 and (f) G5.

50 v/o까지 유리함량을 증가시켜도 시편의 변형은 일어나지 않고 밀도가 계속 증가하는 경향을 나타내고 있다. 결국 본 실험에서와 같이 900°C에서 소성할 경우 글라스/세라믹 복합체가 90% 이상의 높은 소결밀도를 나타내기 위해서는 사용하는 유리의 연화점에 따라 유리의 혼합량을 결정하여야 함을 알 수 있고, 적절한 함량 이

상이 첨가될 경우에는 쉽게 변형이 생길 수 있으므로 이러한 함량에 대한 정확한 조절이 글라스/세라믹 제조에서 중요하게 됨을 알 수 있다. 연화점이 750°C로 가장 높은 유리(G4)를 사용한 경우에는 50 v/o까지 유리함량을 증가시켜도 시편의 변형이 일어나지 않았고, 밀도도 93% 정도로 비교적 높은 값을 나타냄을 알 수 있다.

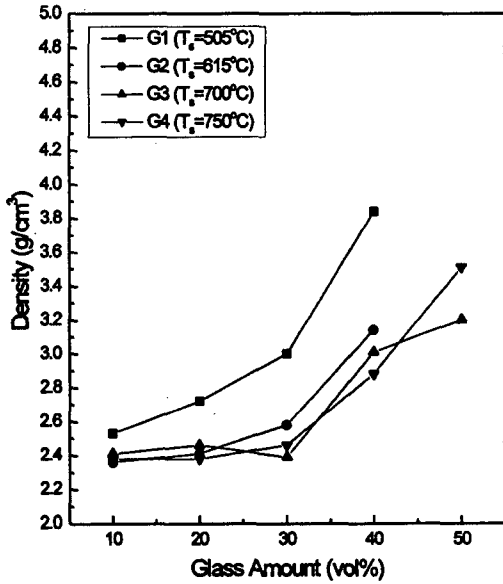


Fig. 2. Changes of densities of glass/ceramic composites with glass amount and softening points (T_s) of glasses (Sintering Temperature=900°C).

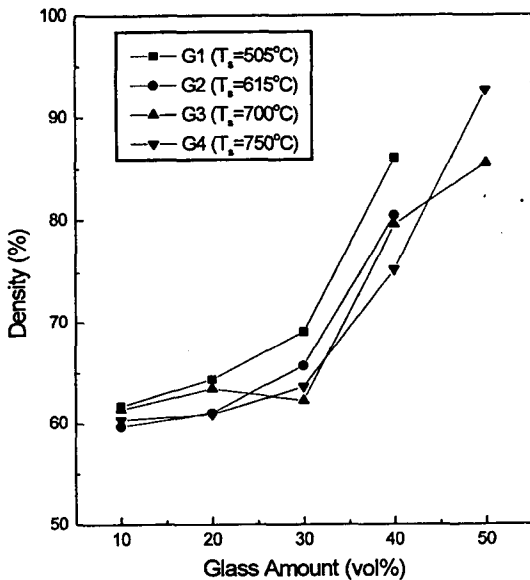


Fig. 3. Changes of relative densities of glass/ceramic composites with glass amount and softening points (T_s) of glasses (Sintering Temperature=900°C).

Fig. 4는 유리의 연화점을 다르게 한 여러종류의 글라스/세라믹 복합체들의 평면방향 및 두께방향의 선수축을 결과를 나타낸 것으로서, Fig. 3의 상대밀도 측정결과와 마찬가지로 유리의 함량이 증가함에 따라 치밀화 현상이 증대되어 선수축율이 증가하는 경향을 알 수 있었다. 또한 시편의 방향에 따른 수축율이 동일한 것으로

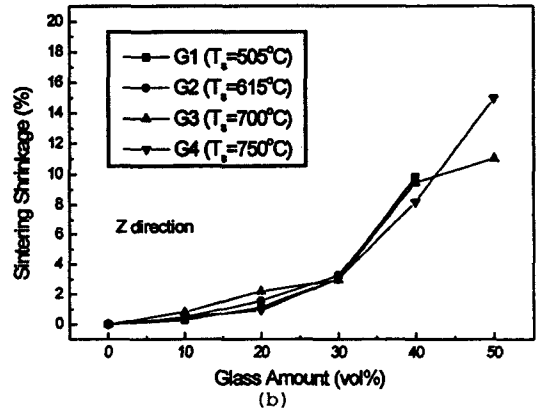
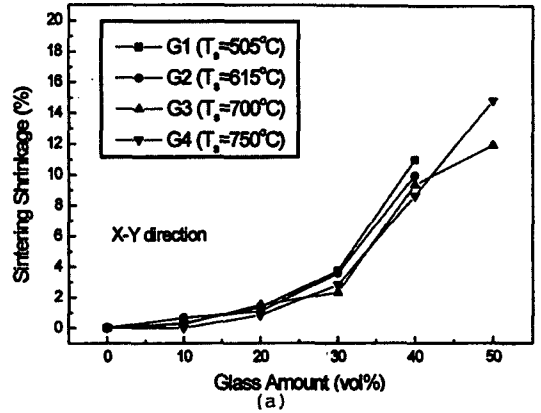


Fig. 4. Sintering shrinkage of glass/ceramic composites with glass amount and softening points (T_s) of glasses (Sintering Temperature=900°C). (a) in X-Y direction and (b) in Z direction.

보아 방향성이 없이 균일한 치밀화가 일어나고 있음을 알 수 있었다.

3.2. 고밀도의 저온소성용 글라스/세라믹 복합체의 제조

상기의 실험으로부터 글라스/세라믹 복합체의 제조시 유리의 연화점이 소결특성에 미치는 영향을 고찰하였다. 그 결과 글라스/세라믹 복합체 제조시, 사용되는 유리의 연화점에 따라 변형이 일어나지 않으면서 높은 소결밀도를 나타낼 수 있는 유리함량이 결정됨을 알 수 있었다. 900°C의 동시소성에 적용되는 본 시스템의 경우에는 유리의 연화점이 750°C보다 약간 높고, 유리의 함량을 50 v/o 혹은 그 이상 첨가할 경우 시편의 변형이 없는 치밀한 소결체를 얻을 수 있음을 예측할 수 있다. 이에 따라 후속 실험에서는 유리분말의 연화점이 G4의 경우보다 약간 높은 G5 유리분말(연화점: 790°C)을 사용하여 복합체를 제조하였고, 이때 소결온도 및 유리함량을 변화시켜가며 시편을 제조하여 실제 저온소성 팩

키지 및 마이크로웨이브용 기관재료로 사용이 가능한 정도로 치밀화가 일어난 고밀도의 글라스/세라믹 복합체를 제조하고자 하였다.

Fig. 5는 G5의 유리함량 및 소결온도에 따른 복합체의 밀도변화를 나타낸 그림이다. 결과를 보면 소성온도가 800°C에서 900°C까지 높아짐에 따라 소결밀도는 증가함을 알 수 있고, 유리의 함량이 70 v/o 이상인 경우에는 소결온도에 상관없이 거의 동일한 소결밀도를 나타냄을 알 수 있다. 이는 유리의 함량이 70 v/o 이상인 경우에는 소결온도가 낮아도 유리의 점성유동 현상이 활발히 일어나서 입자의 재배열이 충분히 일어났기 때문으로 생각된다. 그리고, 유리의 함량이 60 v/o까지 증가함에 따라 소결밀도는 증가하지만, 그 이상의 유리함량에서는 밀도가 낮아졌다. 이는 치밀화가 덜 일어난 것이 아니라 사용된 유리분말의 밀도가 세라믹의 밀도에 비해 낮고, 이러한 유리의 함량이 증가함에 따라 나타난 결과이다.

복합체의 치밀화 거동을 고찰하기 위해 소결밀도를 복합체의 이론밀도에 대한 상대밀도로 나타내어 Fig. 6에 나타내었다. 유리의 함량이 증가함에 따라 상대밀도 값은 증가하였고, 유리분말이 70 v/o 이상에서는 유리의 함량 및 소결온도에 무관하게 약 98%의 매우 높은 소결밀도를 나타냄을 알 수 있었다. 그리고, 유리의 함량이 60 v/o 이하의 구간에서는 소결온도가 높을수록 높은 소결밀도를 나타냄을 알 수 있다. 그러나, 본 실험의 경우에는 유리의 함량이 80 v/o까지 증가하여도 시편의 변형이 일어나지 않았고, 이는 앞절의 실험에서 예측한

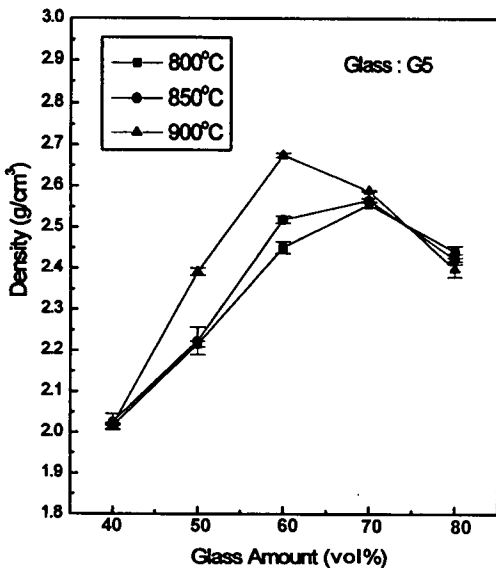


Fig. 5. Changes of densities of glass/ceramic composites with sintering temperatures and glass amounts.

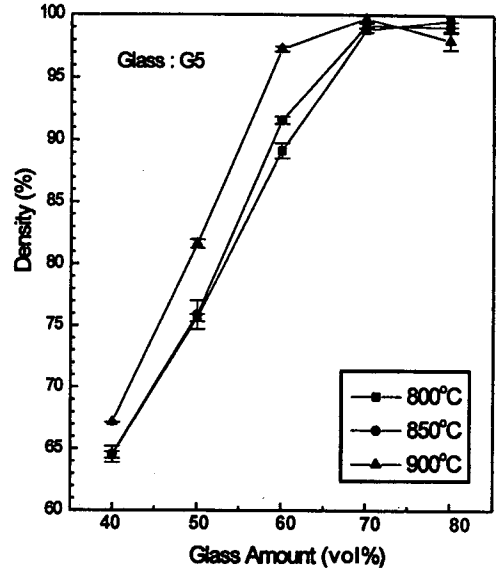


Fig. 6. Changes of relative densities of glass/ceramic composites with sintering temperatures and glass amounts.

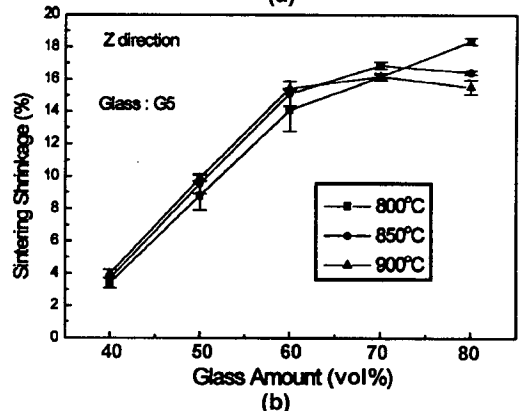
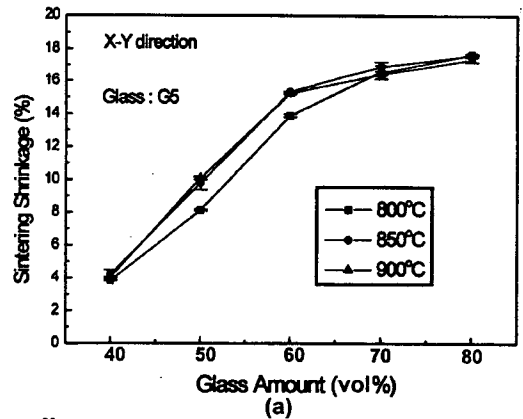


Fig. 7. Sintering shrinkages of glass/ceramic composites with sintering temperatures and glass amounts. (a) in X-Y direction and (b) in Z direction.

바와 같이 사용된 유리의 연화점이 시편의 변형없이 소결시 점성유동을 유도할만큼 적절히 높았기 때문으로 생각한다. 결국, 본 연구의 결과로써 900°C 소성의 경우에는 95% 이상의 높은 소결밀도를 얻을 수 있음을 알 수 있다.

Fig. 7은 소결수축율의 결과를 나타낸 것으로 소결수축율 역시 유리의 함량이 60 v/o 이상일 경우에는 일정 값으로 포화됨을 알 수 있었고, 이때의 수축율 값은 약 17~18% 정도이었다.

이러한 연구를 통하여 소결밀도 95% 이상의 치밀한 소결체를 얻을 수 있었고, 이때 유리의 연화점 등이 소결특성에 미치는 영향을 고찰함으로써 최적의 소결체를 얻을 수 있는 유리의 연화점 및 유리함량의 예측이 가능함을 알 수 있었다.

4. 결 론

저온소성용 글라스/세라믹 복합체 제조시 사용되는 유리 프리트트의 연화점이 소결특성에 미치는 영향에 대해 고찰하였고 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 저온소성용 글라스/세라믹 복합체 제조시 사용되는 유리의 연화점이 낮을 경우 유리의 함량이 적은 시편의 경우에도 변형이 일어남을 알 수 있었다.

2) 연화점이 높은 유리를 사용할 경우, 유리의 함량을 50 v/o까지 증가시켜도 소결시 모양의 변형이 일어나지 않으면서 소결밀도는 계속적으로 증가하여 치밀화가 계속 진행함을 알 수 있었다.

3) 유리함량과 유리의 연화점이 소결특성에 미치는 영향을 고찰함으로써 최적의 유리의 연화점과 유리함량을 예측할 수 있었고, 이러한 결과에 따라 글라스/세라믹 제조에 적합한 유리 프리트트의 선택이 가능함을 알 수 있었다.

4) 790°C의 연화점을 갖는 유리를 유리 프리트트로 사용함으로써 900°C의 소성온도에서 소결밀도 97% 이상의 고밀도의 저온소성용 글라스/세라믹 복합체를 제조할 수 있었다.

참 고 문 헌

[1] A.J. Bloodgett, Jr., Multi-Layer Ceramics, Multi-Chip Module, Proc. 30th Electronic Component Conf 30 (1980) 283.
[2] N. Kamehara, K. Niwa and K. Murakawa, Pac-

kaging materials for High Speed Computer, Proc. 1982 Int. Microelectronics Conf 2 (1982) 388.
[3] E.M. Passmore, R.M. Spriggs and T. Vasilos, Strength-Grain Size-Porosity Relations in Alumina, J. Am. Ceram. Soc. 21(1) (1965) 1.
[4] N. Kamehara, Y. Imanaka and K. Niwa, Multilayer Ceramic Circuit Boards with Copper Conductors, IEEE Tokyo Section, Denshi Tokyo No. 26 (1987) 143.
[5] R.R. Tummala, Ceramics in Microelectronic Packaging, Advanced in Ceramics, Vol. 26, (American Ceramic Society, Westerville, OH, 1989) p. 3.
[6] B. Schwartz, Ceramic Packaging of Integrated Circuits, Electronic Ceramics, (Marcel Dekker Inc., NY, 1987) p. 1.
[7] D.L. Wilcox, Solid State Tech. (1971) pp. 40-60.
[8] J. Guille, J. Mater. Sci. 24(1) (1986) 97.
[9] A. Hayduk and K. Berger, Solid State Tech. (Sep. 1986) 135.
[10] K. Otsuka, Am. Ceram. Soc. Bull. 60(1) (1981) 540.
[11] R.R. Tummala, J. Am. Ceram. Soc. 74(5) (1991) 895.
[12] B. Schwartz, Am. Ceram. Soc. Bull. 56(4) (1977) 433.
[13] K. Niwa, N. Kamehara, K. Yokouchi and Y. Imanaka, Advanced Ceramic Materials 2(4) (1987) 832.
[14] J.U. Knickerbocker, Am. Ceram. Soc. Bull. 71(9) (1993) 1393.
[15] Y. Shimada, K. Utsumi, M. Suzuki, H. Takamizawa, M. Nitta and T. Watari, IEEE Transactions on Components, Hybrids, and Manufacturing Technology Vol. CHMT-6, No. 4 (1983) 382.
[16] R.R. Tummala, J.U. Knickerbocker and S.H. Knickerbocker, High Performance Glass-Ceramic/Copper Multilayer Substrate with Thin-Film Redistribution, IBM J. Res. Develop. 36(5) (1992) 889.
[17] K. Watanabe and E.A. Giess, J. Am. Ceram. Soc. 68(4) (1985) C-102.
[18] Y. Imanaka, K. Yamazaki, K. Aoki, N. Kamehara and K. Niwa, Nippon Seramikkusa Kyokai Gakujutsu Ronbunshi 97(3) (1989) 309.
[19] Y. Imanaka, S. Aoki and N. Kamehara, Thermal Expansion of Glass/Ceramic Composites for Multilayer Ceramic Circuit Boards, Fujitsu Sci. Tech. J. 25(1) (1989) 73.
[20] E. Cross and T.R. Gururaja, Ultralow Dielectric Permittivity Ceramics and Composites for Packaging Applications, Proceedings of the Materials Research Society Spring Meeting (Palo Alto, CA, April 1986) p. 53.