

Investigation on Lead-Borosilicate Glass Based Dielectrics for LTCC

Sang Ok Yoon,[†] Chang-Yong Oh, Kwan Soo Kim, Tae Hyun Jo,
Sang Heung Shim,* and Jong Guk Park*

Department of Ceramic Engineering, Kangnung National University, Gangnung 210-702, Korea

*Department of Electrical Engineering, Kangwon National University, Samcheok Campus, Samcheok 245-711, Korea

(Received March 29, 2006; Accepted June 13, 2006)

Lead-Borosilicate Glass계 LTCC용 유전체에 대한 고찰

윤상옥[†] · 오창용 · 김관수 · 조태현 · 심상흥* · 박종국*

강릉대학교 세라믹공학과

*강원대학교 삼척캠퍼스 전기공학과

(2006년 3월 29일 접수; 2006년 6월 13일 승인)

ABSTRACT

The effects of lead-borosilicate glass frits on the sintering behavior and microwave dielectric properties of ceramic-glass composites were investigated as functions of glass composition of glass addition (10~50 vol%), softening point (Ts) of the glass, and sintering temperature of the composites (500~900°C for 2 h). The addition of 50 vol% glass ensured successful sintering below 900°C. Sintering characteristics of the composites were well described in terms of Ts. PbO addition in to the glass enhanced the reaction with Al₂O₃ to form liquid phase and PbAl₂Si₂O₈, which was responsible to lower Ts. Dielectric constant (ϵ_r), $Q \times f_0$ and temperature coefficient of resonant frequency (τ_f) of the composite with 50 vol% glass contents (B₂O₃:PbO:SiO₂:CaO:Al₂O₃ = 5:40:45:5:5) demonstrated 8.5, 6,000 GHz, -70 ppm/°C, respectively, which is applicable to substrate requiring a low dielectric constant. When the same glass composition was applied sinter MgTiO₃ and TiO₂, at 900°C (50 vol% glass in total), the properties were 23.8, 4,000 GHz, -65 ppm/°C and 31.1, 2,500 GHz, +80 ppm/°C respectively, which is applicable to filter requiring an intermediate dielectric constant.

Key words : LTCC, Substrate, Glass-Ceramic, Lead-borosilicate, Dielectric constant

1. 서 론

최근 이동통신의 발달로 인해 전자부품의 고주파화, 소형화가 필수적인 요소로 대두되었다. 이러한 경향에 따라 전자부품의 MCM(Multi-Chip Module)화, 표면실장화(SMD: Surface Mounting Device)가 빠르게 진행되고 있다. 이처럼 부품의 집적, 모듈화를 위해서는 MLP(Multi-Layer Process) 공정과 전극과의 동시소성이 필수요소이다. 고주파에서 사용되기 위한 전극재료로서 도전특성이 우수한 Cu(mp: 1083°C)와 Ag(mp: 961°C), Au(mp: 1063°C) 등을 일반적으로 사용한다. 이들 전극과의 동시소성을 위해서는 1000°C 이하에서 전극과 동시소성이 가능한 재료가 필요로 하게 되었다.¹⁾ 최근엔 전극재료로 전기적 특성이 우수하고, Air 분위기에서 소성이 가능하며, 공정적으로 경제적인 Ag계가 각광 받고 있다. 그러나 Ag의 경우 용점이 960°C로 낮기 때문에 대부분의 LTCC는 900°C 이하에서 소성 가능해

야 한다. 일반적인 LTCC는 저온 첨가제를 이용한 ceramic계와 glass powder를 이용한 glass-ceramic계가 있다. Glass-ceramic계는 대체로 3가지로 구분할 수 있는데 유전율이 낮은 glass powder에 Al₂O₃와 같은 ceramics를 유리기지 내에 filler로 혼합된 것, 결정화가 가능한 glass powder를 열처리를 통해 결정화한 것, 그리고 glass powder와 ceramic powder를 혼합하여 열처리과정을 거치면서 glass와 ceramics가 반응하여 제2상을 생성하여 제조하는 것 등이 있다.²⁾ 이러한 glass-ceramic은 glass의 Ts(Softening Temperature), 결정화 정도 및 filler의 종류에 따라 소결특성이 많이 달라지는 경향이 있다.

본 연구에서는 lead-borosilicate계 glass frit을 제조하여 델라토미터를 이용한 유리 특성을 관찰하였다. 또한 여기에 Al₂O₃와 정량적으로 혼합하여 glass-ceramics을 제조하여 glass의 Ts 및 각 온도별 glass-ceramic의 소결 경향성을 고찰하였고, LTCC용 유전체 응용이 가능한지 확인하기 위해 Al₂O₃, MgTiO₃ 및 TiO₂를 filler로 혼합 성형하여 glass-ceramic 복합체를 제조하여 소결 및 유전 특성을 조사하였다.

[†]Corresponding author : Sang Ok Yoon

E-mail : soyoona@kangnung.ac.kr

Tel : +82-33-640-2361 Fax : +82-33-640-2244

Table 1. Composition of Parent Glass Batch

Materials	Content (wt%)				
	B ₂ O ₃	PbO	SiO ₂	CaO	Al ₂ O ₃
BPS 1	5	60	25	5	5
BPS 2	5	50	35	5	5
BPS 3	5	40	45	5	5

2. 실험 방법

2.1. BPS Glass Frit의 제조

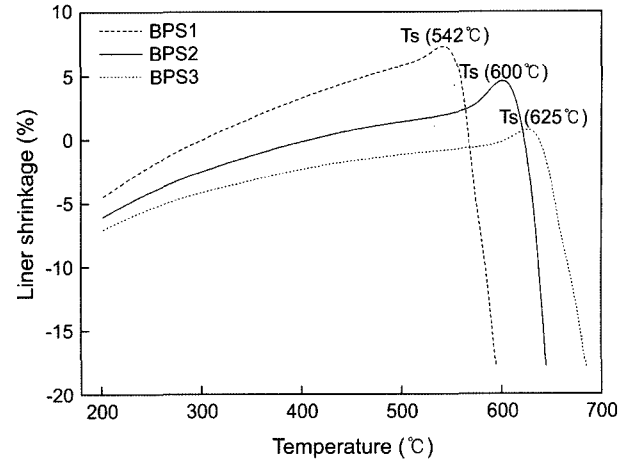
본 연구에서는 일반적인 glass 용융법을 이용하여 glass frit을 제조하였다. 선택한 유리 조성은 일반적인 glass-ceramic 용 lead-borosilicate계를 선택하였고, 상세 조성은 Table 1과 같다. Glass의 Ts 변화는 유리화 범위가 비교적 넓은 PbO와 SiO₂ 비를 달리함으로써 구현하였다. 각각의 배치는 1급 시약용 분말을 칭량하여 폴리에틸렌용기에서 건식 혼합을 실시하였다. 혼합된 powder를 알루미늄 도가니에 넣어 1400~1600°C에서 1시간 동안 유지, 용융시킨 후, 증류수에 급냉시켜 glass를 제조하였다. 제조된 glass는 디스크밀을 통해서 1차 분쇄한 후 다시 알루미늄 용기에 ZrO₂ 불을 이용하여 에탄올을 용매로 48시간 ball milling 하였다. Ball milling 후 오븐에서 100°C로 24시간 건조한 후 325 mesh 체를 통과하여 powder를 제조하였다.

2.2. Glass-Ceramic 복합체의 제조

앞에서 제조한 glass 분말을 1급 시약급의 Al₂O₃, MgTiO₃ 및 TiO₂와 10~50 vol%로 칭량하여 에탄올을 용매로 24시간 습식 혼합하였다. 혼합 및 건조된 powder를 각각 3g씩 칭량하여 지름 15 mm인 금속 몰드에 넣고, 2000 psi의 압력을 가하여 pellet 형태의 성형체를 제조하였다. 이 성형체를 500~900°C에서 50°C 간격으로 5°C/min의 승온속도로 2시간 동안 열처리하였다.

2.3. 소결 및 유전 특성 분석

Glass의 Ts를 분석하기 위해서 Dilatometer(DIL 402, Netzsch, Germany)를 사용하였다. 소결체의 치밀화 정도를 알아보기 위하여 수축률, 밀도, 겉보기 기공률을 측정하였는데, 밀도와 기공률은 아르키메데스법을 사용하여 측정하였다. 온도에 따른 상변화의 분석은 X선 회절분석기(MO3XHF, MAC Science, Japan)로 Cu-K α target을 사용하였으며, Ni-filter를 이용하여 10~80° 범위를 4 deg/min로 조사하였고, 미세구조는 분석은 FE-SEM(S-4200, Hitachi, Japan)을 이용하였다. Pellet 소성체의 마이크로파 유전특성은 시편을 두 개의 평행 도체판 사이에 유전체를 넣고 Hakki-Colemann법을 사용하여 network analyzer(HP8720ES, Agilent, U.S.A.)로 공진 주파수 f_0 , 공진 주파수 양쪽에서

**Fig. 1.** Thermal analysis of glass frit measured by dilatometer.

3 dB 떨어진 지점에서 공진폭 Δ_f 와 공진주파수에서의 삽입손실을 측정하여 유전을 및 $Q \times f_0$ 를 계산하였다. 공진주파수의 온도계수는 invar cavity를 사용하여 공동 공진기법으로 측정하였으며,

$$\tau_f = \frac{1}{f_0} \frac{f_2 - f_1}{T_2 - T_1} \times 10^6 \text{ [ppm/}^\circ\text{C]}$$

의 식을 사용하였다. 본 실험에서는 세라믹스 유전체를 넣은 cavity 공진기를 25°C에서의 공진주파수와 85°C까지 히터로 가열하였을 때의 공진주파수를 측정하여 온도 특성을 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. BPS Glass Frit의 제조

Fig. 1은 glass 성분 중 PbO/SiO₂의 비를 달리한 모유리의 Ts를 dilatometer를 이용하여 측정한 그래프이다. Dilatometer의 측정시 승온속도는 5°C/min이었다. ASTM 상에서 유리의 연화점은 littleton 온도로서 얘기하는데, 이때 보통유리의 점도는 $\log \eta = 7.6$ 이다. 종종 dilatometer에서 열팽창곡선이 극대값을 이루는 온도도 연화온도라 부르는데, 이 논문에서는 이러한 극대값에서의 온도로서 연화점인 Ts를 사용하였다.³⁾ 측정 결과 PbO 성분이 많은 BPS1 유리의 경우 Ts는 542°C로 낮았으며, 반대로 PbO는 적고 SiO₂ 성분이 많은 BPS3 유리의 경우 Ts는 625°C로 높았다. 다성분계에서 유리의 연화점은 유리화 능력과 연관이 있는데, 단일 성분으로도 유리화가 가능한 SiO₂의 경우는 유리 성분 내에서 망목형성제로 작용함으로써 유리의 구조가 매우 견고해지며, 이 때문에 SiO₂가 많은 유리는 연화점이 높아지고, 반면에 PbO의 경우 일정량 이상으로 유리 성분에 포함되면 유리 내부에서의 원자와 가교산소의 결합력을 약화시키기 때문에 유리의 연화점이 낮아지는

것이라 사료된다.⁴⁾

3.2. Glass-Ceramic의 소결거동

Ko는 glass-ceramic 복합체의 소결 및 물성에서 비반응성 액상소결(NLPS)에 대해서 설명하였는데, NLPS 소결에서 세라믹 입자 사이에 존재하는 액상은 입자간의 마찰력을 감소시키고, 이러한 힘의 불균형을 제거하기 위해 세라믹 입자가 서로 이동하는 것을 돕는다. 입자의 재배열은 유리 재분배 과정에서 생성된 큰 기공을 폐쇄시킨다. 입자 재배열은 유리의 재분배와 거의 동시적으로 일어나며 NLPS 동안 일어나는 치밀화된 bulk(이론밀도의 65~90%)의 원인이 된다. 또한 glass-ceramic 복합체의 치밀화 속도는 복합체에서의 점성유동에 의해 정의되며, 유리점도 대신 세라믹이 동시에 존재하는 계의 점도로서 나타나게 된다. 이때 glass-ceramic 복합체의 점도는 유동학적 상태로 용매인 액상 유리 내에 용질인 고상이 분산되어 있는 슬러리의 점도와 같은 개념으로 상대점도(relative viscosity)라 하며 점성유동에 크게 영향을 미치는 중요한 인자이다.⁵⁾ 본 논문에서도 이러한 비반응성 액상소결의 방법으로 filler와 glass의 혼합에 의한 소결을 진행하였다. Al₂O₃에 각각의 glass를 함량에 따라 첨가하여 소결한 결과 유사한 수축 거동을 나타내었기 때문에, 본 고에서는 Al₂O₃에 BPS3 glass를 10~50 vol%로 정량적으로 혼합하여 500~900°C에서 2시간 동안 열처리한 선수축을 변화를 Fig. 2에 나타내었다. Al₂O₃-BPS glass 복합체의 소결이 650°C에서부터 수축이 일어나는 것으로 BPS3 glass Ts가 625°C로써 점성거동에 의한 소결이 이루어지는 것을 확인할 수 있다.

Fig. 3은 Al₂O₃에 BPS3 glass를 30~50 vol%로 정량적으로 혼합하여 900°C에서 2시간 동안 열처리한 시편의 미세구조를 분석한 것이다. BPS3 glass 함량이 적은 경우

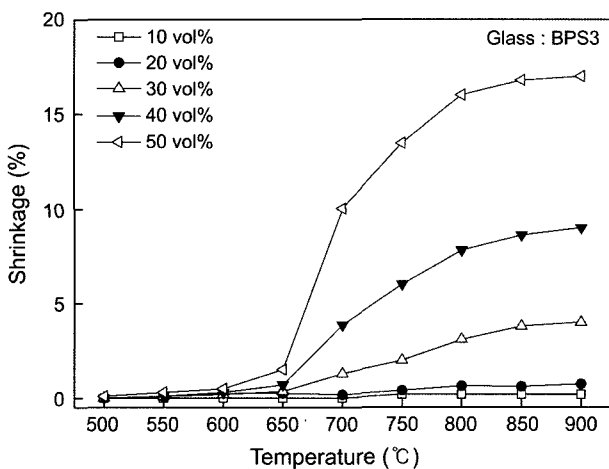


Fig. 2. Shikage of Al₂O₃ with BPS3 glass as a function of glass × vol%.

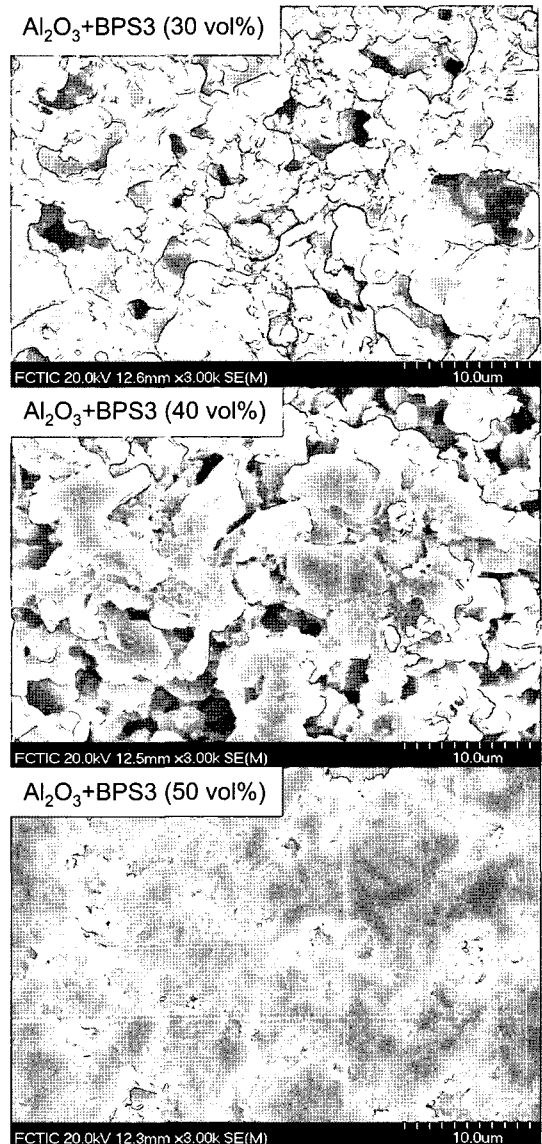


Fig. 3. SEM micrographs of Al₂O₃ with BPS3 glass as a function of glass × vol%.

Al₂O₃ filler 입자들 사이에 부족한 glass 액상이 neck을 형성하여 porous한 모양을 나타내고 있으며, glass 함량이 증가함에 따라 계면 전체에 액상이 고립기공을 채우면서 치밀화가 이루어지는 것을 알 수 있으며, 50 vol% 이상 혼합된 경우에는 시편 전체가 액상으로 덮히게 되는 것을 알 수 있다.

Figs. 4와 5는 각각의 BPS glass 성분에 ceramic filler인 Al₂O₃를 50 vol%로 혼합한 복합체의 온도별 선수축율 및 상대밀도를 나타낸 것이다. Fig. 4의 수축율 그래프를 보면 glass의 Ts가 낮을수록 수축이 시작하는 온도가 빨랐으며, Ts가 높을수록 급격한 치밀화를 보였다. 이는 앞서 언급했듯이 전이점 이상의 온도에서 glass의 연화로 인해 액상의 재분배가 일어나고 있음을 예상할 수 있었으며,

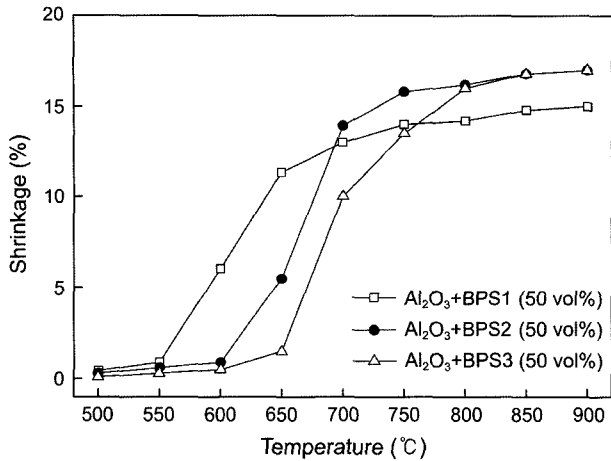


Fig. 4. Shrinkage of Al_2O_3 with BPS glass as a function of sintered temperature.

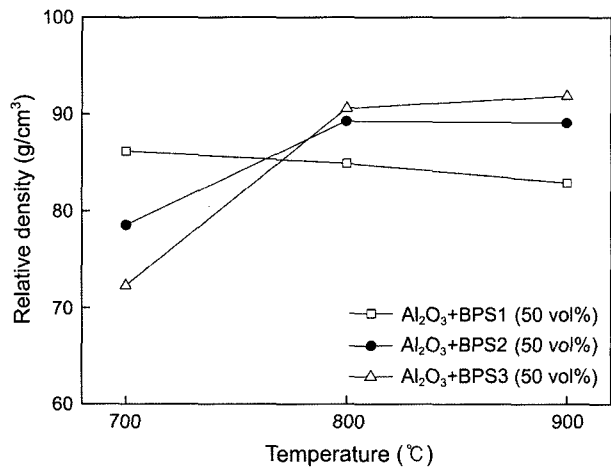


Fig. 5. Relative density of Al_2O_3 with BPS glass as a function of sintered temperature.

PbO 의 함량이 많을수록 상전이가 발생하는 온도가 낮아진다는 보고⁶⁾를 통해 치밀화의 속도도 이에 지배됨을 유추할 수 있었다. 수축율과 연관 지어서 Fig. 5의 상대밀도를 보면 T_s 가 낮은 glass-ceramic 복합체가 상대밀도가 낮음을 볼 수가 있다. 이는 glass의 소결 중에서 생성되는 결정상의 생성으로 인해서 glass의 점성거동이 방해받기 때문으로 판단되는데, glass의 재분배 과정에서 고립된 기공을 액상이 완전히 채워지기 전에 glass와 ceramic 입자의 반응에 의해 2차상이 형성되면서, 이 때문에 glass의 점성거동이 멈추고 시편 내에 기공으로 남게 되는 것으로 사료된다.⁷⁾

Figs. 4, 5의 glass 점성거동에 관한 정확한 규명을 위해 이의 확인을 위해 XRD 분석을 실시하였고, Fig. 6에 나타내었다. X-회절 분석 결과 충전제인 Al_2O_3 peak 외에 $\text{PbAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ 의 2차상이 발생한 것을 알 수 있었으며, 이 상은 T_s 가 낮은 BPS1 glass의 경우 가장 많이 나타났다. 이것

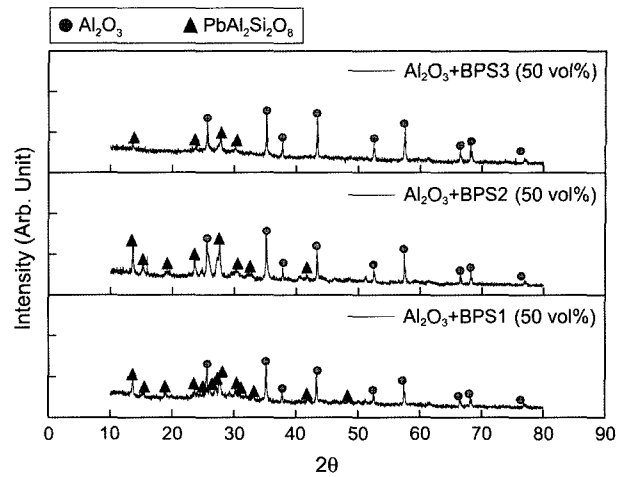


Fig. 6. XRD patterns of sintered Al_2O_3 with BPS glass additions.

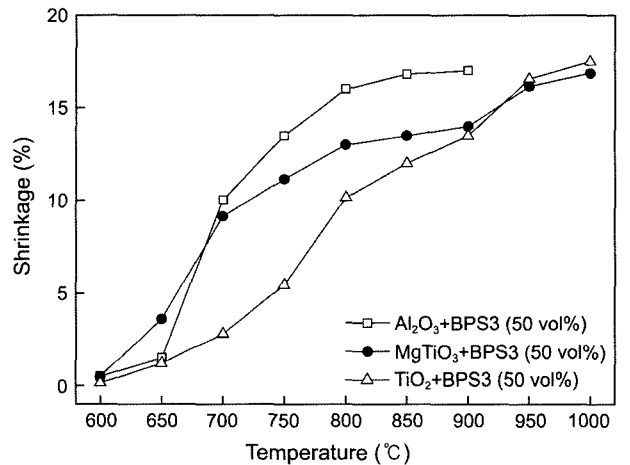


Fig. 7. Shrinkage of Al_2O_3 , MgTiO_3 , and TiO_2 with BPS3 glass as a function of sintered temperature.

은 T_s 가 높아질수록 생성되는 2차상이 작음을 알 수 있으며, Fig. 5에서의 Al_2O_3 와 BPS1 glass 복합체의 상대밀도가 다른 glass-ceramic보다 저하되는 경향이 다량의 $\text{PbAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ 의 2차상이 생성되었기 때문임을 짐작 할 수 있다.

Fig. 7은 BPS glass를 이용한 glass-ceramic 복합체를 만들어 LTCC로의 응용이 가능한지 Al_2O_3 외에 추가로 MgTiO_3 와 TiO_2 를 filler로 이용하여 600~1000°C에서 2시간 동안 소결한 시편의 수축율을 나타내었다. MgTiO_3 의 경우 Al_2O_3 와 비슷하게 glass T_s 를 지나면서 급격한 glass-ceramic 복합체의 선수축율 변화를 나타내었고, TiO_2 는 일반적인 저온 소결용 ceramic 선수축율 변화를 나타내었다. Fig. 8의 X-선 회절분석 결과로부터 MgTiO_3 를 filler로 사용한 경우, Al_2O_3 의 경우와 마찬가지로 다량의 액상과 함께 유리와의 반응에 의한 2차상이 생성되었지만, TiO_2 의 경우는 2차상을 생성시키지 않았다. 이는 고상과 유리의 액상이 서로 반응을 일으키지 않고, 또한 서로 용해성이 없는 NLPS

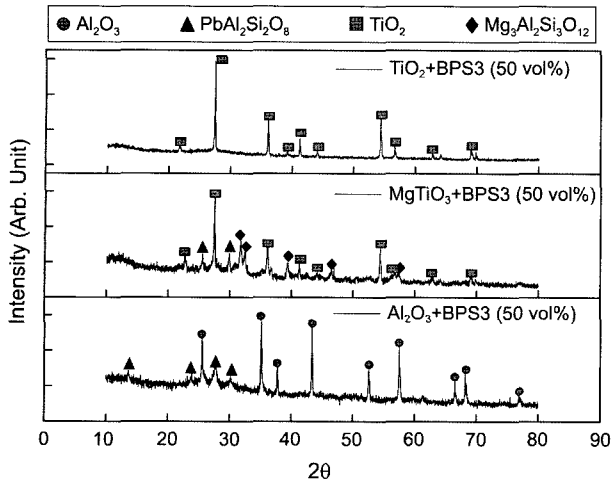


Fig. 8. XRD patterns of sintered glass-ceramic as a function of various ceramic filler with BPS3 glass additions.

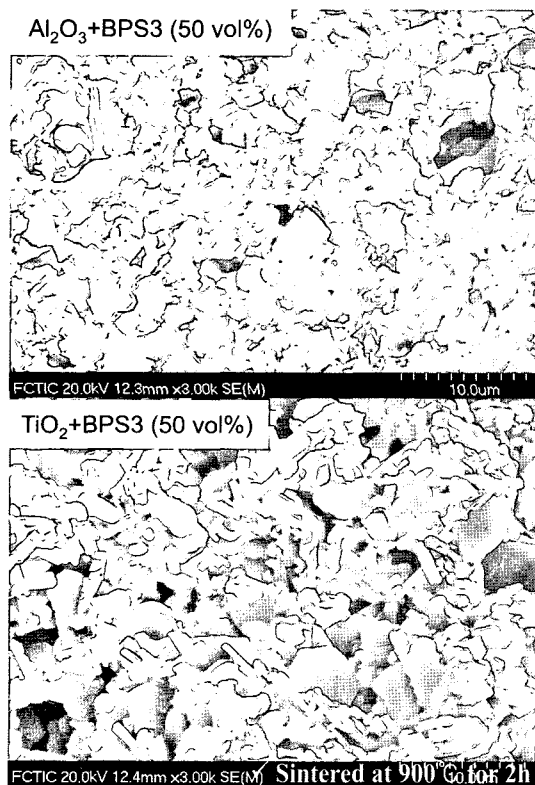


Fig. 9. SEM micrographs of $(\text{Al}_2\text{O}_3, \text{TiO}_2)$ -BPS3 glass composites surfaces by HF acid leached-treatment for 90 sec, 50 vol% glass contents.

(Non-reactive Liquid Phase Sintering) 소결에 의해 glass가 액상에 의한 기공 채움과 입자 재배열의 역할만 한 것으로 사료된다.⁸⁻¹⁰⁾ 이를 확인하기 위해 Al_2O_3 와 TiO_2 시편의 파단면을 잘 연마한 후 불산(HF)으로 화학 부식(Chemical etching)한 후 미세구조를 관찰하였다.

Fig. 9는 에칭한 Al_2O_3 와 TiO_2 시편의 파단면의 미세구

조로써, Al_2O_3 의 경우 큰 기공들 사이로 여러 입자들이 neck을 형성하며 뭉쳐져 있는 것을 볼 수 있는데 반해, TiO_2 의 경우는 침상으로 입성장한 입자들을 선명히 볼 수 있다. 두 시편의 이런 차이는 2차상의 존재 유무와 관련 있는 듯 하다. Al_2O_3 의 경우 부분적인 2차상의 생성으로 인해 국부적인 에칭이 이루어지면서 유리질의 경우 큰 기공으로 나타났을 것이며, TiO_2 의 경우는 2차상이 생성되지 않아서 상대적으로 약한 유리질이 모두 에칭되어, 소성 시 입성장한 TiO_2 의 입자들을 뚜렷이 볼 수 있었던 것으로 생각된다.

3.3. Glass-Ceramic의 유전 특성

Al_2O_3 에 각각의 BPS glass를 50 vol%로 혼합하여 900°C 에서 2시간 동안 소결한 시편을 평판 공진법인 Hakki-colemann 법을 이용해 network analyzer를 통해 측정된 결과,¹¹⁾ 유리 자체의 품질계수는 3종류 모두 T_s 에 상관없이 낮았으며, 유전율의 경우는 PbO 함량이 많은 BPS1 glass가 가장 높게 나타났다. 유리성분 중에 분극율이 가장 큰 이온은 산소이온인데, PbO 와 같은 망목수식이온의 첨가에 따라 비가교 산소이온이 형성이 이루어져서 유전율이 높아지게 된다. 따라서 본 연구에서 사용한 glass의 PbO 함량이 증가함에 따라 유리 구조 내에서 자체분극성이 더 커지므로 다른 성분의 첨가보다도 더 유전율이 높아지게 된다.¹²⁾ Glass-ceramic 복합체의 유전 특성은 mixing of rule에 의해 혼합한 유리의 유전율에 따라 PbO 성분이 많은 유리를 사용한 복합체가 가장 높은 유전율을 나타내었다. 그러나 BPS1 glass의 경우 BPS2 glass를 사용한 복합체보다 유전율이 낮게 나타났는데 이는 복합체의 상대밀도가 현저히 떨어지는 것으로 보아 내부기공이 존재하기 때문으로 사료된다. 품질계수의 경우 BPS3의 유리를 사용한 복합체의 경우 $Q \times f_0$ 가 6,000 이상의 높은 값을 보였다. 유리 자체의 품질계수의 경우도 큰 차이는 없지만 BPS3 glass의 경우가 가장 높게 나타났다. 고주파의 경우 유리 와 같은 유전체에서의 에너지 손실은 주로 제 2상의 생성에 따른 계면 손실과 이온이동 손실에 의한 것이다. 이는 이온이동 손실에 있어서 Ba^{+2} , Pb^{+2} 같은 중이온들이 유전손실을 감소시킨다고 보고되고 있다.¹³⁾ 그러나 과량의 PbO 를 함유한 유리의 경우 견고한 망목구조를 형성할 수 없고, 결국 유전손실이 높아지게 되며,¹⁴⁾ 이로 인해 PbO 함량이 가장 높은 BPS1 glass가 낮은 $Q \times f_0$ 값을 가지는 것을 유추할 수 있다.

Table 2는 Al_2O_3 , MgTiO_3 및 TiO_2 에 BPS glass(50 vol%)를 정량적으로 혼합하여 900°C 에서 2시간 동안 소결한 시편의 유전율, 품질계수 및 공진주파수 온도계수 결과를 나타낸 것으로 각각의 유전율은 일반적인 mixing of rule에 의해서 유전율 7을 갖는 BPS3 glass와 ceramic과의 혼합에 의한 특성을 나타내었고, 품질계수는 앞에서

Table 2. Dielectric Properties of Al₂O₃, MgTiO₃, and TiO₂ with BPS3 Glass (50 vol%) Additions at 900°C

Materials	Dielectric properties		
	ϵ_r	$Q \times f_0$	τ_f (ppm/°C)
A	8.5	6,000	-70
M	23.8	4,000	-65
T	31.1	2,500	+80

설명한 것과 같이 중이온에 의한 유전손실 특성을 나타내었다.

위의 실험을 통해 900°C에서 소성이 가능한 LTCC용 기판 재료 및 유전체로 응용이 가능함을 확인할 수 있었다.

4. 결 론

1. 저온 동시소성용 glass-ceramics의 소결 경향성 연구를 위해 lead-borosilicate계 glass를 frit화하여 Al₂O₃을 10~50 vol%로 각각 혼합한 후 500~900°C에서 2시간 동안 소결하였다. 그 결과 glass의 연화온도(Ts)가 낮을수록 최대 치밀화 온도가 낮았으며, 반면에 소결밀도는 Ts가 높을수록 높았는데, 이는 glass-ceramics에서의 2차상의 생성 정도와 관계하였다. 따라서 glass-ceramic에서의 소결특성은 glass와 ceramic의 반응성에 의한 2차상 석출 정도에 큰 영향을 받음을 알 수 있었으며, ceramic filler로서 Al₂O₃를 이용하여 900°C에서 소성이 가능하였다.

2. LTCC용 유전체를 제조하기 위해 Al₂O₃, MgTiO₃ 및 TiO₂에 lead-borosilicate계 glass를 50 vol%로 각각 혼합하여 500~1000°C에서 2시간 동안 소결하였다. 900°C에서 소결한 결과 Al₂O₃($\epsilon_r=8.5$, $Q \times f_0=6,000$, $\tau_f=-70$ ppm/°C), MgTiO₃($\epsilon_r=23.8$, $Q \times f_0=4,000$, $\tau_f=-65$ ppm/°C) 및 TiO₂($\epsilon_r=31.1$, $Q \times f_0=2,500$, $\tau_f=+80$ ppm/°C)의 특성을 나타내어 LTCC용 기판재료와 유전체로 응용이 가능하였다.

REFERENCES

1. C. A. Harper, "Handbook of Ceramics, Glasses, and Diamonds," C.H.I.P.S., pp. 323 (2001).
2. K. Watanabe, "Coalescence and Crystallization in Powder High-Cordierite Glass," *J. Am. Ceram. Soc.*, **68** [4] 102-03 (1985).
3. J. H. Lee, "GLAS Natur, Struktur und Eigenschaften," pp. 133-134, Ed. by H. Scholze, Bando Pub. Co., 1989.
4. G. H. Hwang and Y. S. Kim, "Formation of Pores during Sintering of Lead Borosilicate Glass Frits," *J. Kor. Powder Metallurgy Institute*, **9** [1] 38-42 (2002).
5. M. J. Ko, "Sintering and Physical Properties of MO(M=Ca, Mg, Zn)-Modified Aluminoborosilicate Glass-Al₂O₃ Composites(in Korean)," pp. 12-23, M. S. Thesis, Kyungpook National University, Daegu, 1990.
6. J. H. Park, Y. N. Kim, K. H. Song, and J. Y. Yoo, "The Influence of PbO Content on the Crystallization Characteristics and Dielectric Properties of Glass Frit for LTCC(in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **39** [5] 438-45 (2002).
7. F. G. Ewsuk, L. W. Harrison, and F. J. Walezak, "Sintering Glass-Filled Ceramic Composites: Effect of Glass Properties," Vol. 1 [B], pp. 969-77, Ed. by G. L. Messing, E. R. Fuller, Jr., and H. Hausner, *American Ceramic Society*, Westerville, OH, 1988.
8. K. G. Ewsuk, "Ceramic-Filled-Glass Composite Sintering," Vol. 5, pp. 279-95, Ed. by K. M. Nair, R. Pohanka, and R. C. Buchaman, *American Ceramic Society*, Westerville, OH, 1990.
9. K. G. Ewsuk, "Sintering Maps for Ceramic-Filled Glass Composites," Vol. 19, pp. 123-35, Ed. by M. D. Sack, *The American Ceramic Society*, Westerville, OH, 1990.
10. P. W. McMillan, "Glass-Ceramics," pp. 48, Academic Press, New York, 1979.
11. B. W. Hakki and P. D. Coleman, "A Dielectric Resonator Method of Measuring Inductive Capacities in the Millimeter Ranger," *IRE. Trans. on Microwave Theory Tech.*, **MTT-8** 402-10 (1960).
12. J. H. Lee, "GLAS Natur, Struktur und Eigenschaften," pp. 263-264, Ed. by H. Scholze, Bando Pub. Co., 1989.
13. P. W. McMillan, "Glass-Ceramics," pp. 209, Academic Press, New York, 1979.
14. J. H. Lee, "GLAS Natur, Struktur und Eigenschaften," pp. 266-268, Ed. by H. Scholze, Bando Pub. Co., 1989.