

Characteristics of cordierite ceramics filled with alumina platelets

Sang-Jin Lee[†] and Kyeong-Sik Cho*

Department of Advanced Materials Science and Engineering, Mokpo National University, Muan 534-729, Korea

*Department of Materials Science and Engineering, Kumoh National University of Technology, Kumi 730-701, Korea

(Received October 23, 2002)

(Accepted November 11, 2002)

Abstract Densified cordierite matrixes added alumina platelets were studied as a ceramic substrate material having a low thermal expansion coefficient, low dielectric constant and proper strength. Amorphous-type cordierite powders were filled with four kinds of alumina platelet powders in various compositions. All samples were sintered at 1300°C for 2 h in an air atmosphere. Improved flexural strength of about 80 MPa, low dielectric constant of 5.0 at 1 MHz and low thermal expansion coefficient of $3.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ were obtained by the control of the microstructure. Isolated micropores were formed in the matrix and the porosity was dependent on the platelet content and size. In the 10 vol% of alumina platelet content, the isolated micropores were 3~8 μm in size, and an increase in dielectric constant by adding alumina platelet filler was inhibited by the micropores.

Key words Cordierite, Alumina platelet, Ceramic substrate, Microstructure, Dielectric constant

판상형 알루미나 첨가에 의한 코디어라이트의 미세구조 및 물성 변화에 대한 고찰

이상진[†], 조경식*

목포대학교 신소재공학전공, 무안, 534-729

*금오공과대학교 재료공학과, 구미, 730-701

(2002년 10월 23일 접수)

(2002년 11월 11일 심사완료)

요 약 비정질 코디어라이트에 판상형 알루미나를 첨가하여 미세구조를 제어함으로써 저 유전율과 저 열팽창계수를 갖는 세라믹 기판재료를 연구하였다. 판상형 알루미나는 4종류의 크기를 갖는 분말을 사용하였으며, 그 첨가량을 달리하며 각 조성의 기계적 성질, 유전상수, 및 열팽창계수의 거동을 고찰하였다. 슬립 캐스팅 후 1300°C에서 2시간 동안 소결된 시편은 순수한 코디어라이트에 비하여 80 MPa의 향상된 강도치를 보였으며, 실리콘 칩의 열팽창계수에 접근하는 $3.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 의 열팽창계수 값을 보였다. 판상형 알루미나의 특성에 의해 형성된 소결체 기지내의 고립기공은 알루미나의 첨가에 의해 발생되는 유전상수의 증가를 억제시켰으며, 1 MHz에서 5.0의 유전상수 값을 나타내었다.

1. 서 론

반도체 IC 칩의 성능을 유지하고 신호전달 속도의 고속화를 위하여, 고기능의 IC 패키지용 세라믹 기판재료는 낮은 유전상수와 낮은 열팽창계수(약 $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)를 필요로 한다[1]. 이 같은 조건을 만족하기 위하여 많은 재료들이 연구되어 왔으며, 그 중의 하나로서 코디어라이트($2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$)를 들 수 있다. 코디어라이트는 낮은 열팽창계수와 낮은 유전상수를 보이고 있으므로

세라믹 기판재료로서 매우 적합한 재료라 볼 수 있다. 열전도도가 낮아 작동 중, 열 방출에 문제가 있으나, 이것은 수냉에 의한 냉각이나 AlN과 같은 heat sink 재료와 병합하여 사용함으로서 문제를 해결할 수 있다[2]. 그러나 이제까지 기판재료로서 단미의 코디어라이트 사용에 제한이 따르는 것은 소결온도 범위가 매우 좁아서 치밀화가 어렵고, 얇은 기판으로 제조 시 강도가 약하여 이에 대한 문제해결이 필수적이라 볼 수 있다[2]. 문제 해결 방안으로 코디어라이트 결정화 유리를 만들어 사용하거나 혹은 제2상을 혼합하여 소결을 촉진시키고, 강도의 증진을 도모하는 방법 등이 있다[3-5]. 이 중에서, 제2상을 혼합하는 방법이 공정 상 간단하며, 제2상의 첨가에 의한 미세조직의 조절에 의하여 강도 증진 외에 부차

*Corresponding author

Tel: +82-61-450-2493

Fax: +82-61-450-2490

E-mail: lee@mokpo.ac.kr

적인 효과를 얻을 수 있어 더욱 효과적이라 본다.

본 연구에서는 새로운 재료의 복합체로서 비정질 상태의 코디어라이트 분말과 제2상으로서 판상형의 알루미나 분말을 충진재로 사용하여 미세구조를 조절함으로써, 저 유전율을 갖는 향상된 새로운 코디어라이트 세라믹 기판 재료를 연구하고자 한다. 코디어라이트의 소결성을 높이기 위하여 본 연구에서는 소결성이 뛰어난 비정질 상태의 코디어라이트 분말을 사용하는 것이 특이한 점이라 볼 수 있으며, 이것은 PVA 폴리머를 이용한 용액-증합법에 의한 분말합성 방법에 의하여 제조가 가능하다[6, 7]. 이것은 물에 쉽게 용해되는 폴리머인 PVA를 이용하여 용액내의 금속 양이온들의 분산을 극대화하여 균질하고 안정된 코디어라이트 전구체를 얻을 수 있으며, 하소온도 또한 낮출 수 있다는 장점이 있다. 하소 된 분말도 매우 미소하고 좁은 입도 분포를 보이며, 하소과정 시 PVA의 뛰어난 열분해 성질에 의하여 낮은 온도에서 폴리머의 탈지가 가능함으로 하소 후 다공성의 soft한 비정질의 분말을 얻을 수 있다는 장점이 있다. 이 경우 적절한 밀링 과정을 거쳐 나노크기에 가까운 분말을 얻을 수 있다. 이 같은 미세한 입자의 비정질 코디어라이트 분말은 매우 낮은 결정화 온도와 소결온도를 가능케 하였다[8]. 이와 같이 소결성을 향상시킨 코디어라이트 분말에 제2상으로서 판상형의 알루미나를 첨가함으로써 코디어라이트의 강도를 향상시키고, 코디어라이트 분말에 비하여 상대적으로 조대한 판상형의 알루미나 효과에 의하여 소결과정 중 미세한 고립기공이 기지내에 발생되리라 기대된다. 지르코니아에 판상형 알루미나를 첨가한 이전의 실험에서도 이 같은 고립기공을 갖는 미세구조가 얻어졌고[9], 이 같은 거동은 비정질 분말의 코디어라이트를 사용할 경우 기공 형성에 따른 독특한 소결 메카니즘을 보일 것으로 판단된다. 이러한 기공의 효과에 의하여 알루미나 첨가에 의한 유전율의 증가를 상쇄하여 코디어라이트의 낮은 유전율을 유지할 수 있을 것으로 예측된다. 또한 IC 칩의 열팽창계수인 $3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 보다 낮은 코디어라이트의 열팽창계수를 알루미나의 첨가 효과에 의하여 IC 칩의 열팽창계수에 근접한 값을 갖도록 조절할 수 있다.

본 연구에서는 코디어라이트에 판상형 알루미나 분말의 첨가에 따른 소결 후 미세조직의 제어에 의하여 세라믹 기판용으로 사용이 가능한 새로운 코디어라이트 복합체 재료를 제조하고, 그 특성을 고찰하는데 본 연구의 목표가 있다. 판상형 알루미나 분말의 크기와 혼합량, 소결온도, 이에 따른 복합체의 강도, 열팽창계수, 그리고 유전상수의 변화를 고찰한다. 그리고 기지내에 미세한 고립기공의 생성을 유도하여 이로 인한 재료의 특성변화를 알아보고, 이러한 복합체의 소결거동 특성에 관한 연구를 행한다.

2. 실험 방법

비정질 코디어라이트 분말은 PVA 용액-증합법에 의해 준비하였다[8]. Aluminum nitrate(reagent grade, Aldrich Chemical Co., Milwaukee, WI)와 magnesium nitrate(reagent grade, Aldrich Chemical Co., Milwaukee, WI), 그리고 silica source로서 Ludox SK(25 wt% suspension in water, Du Pont Chemicals, Wilmington, DE)를 각각 코디어라이트의 화학양론 조성에 맞추어 물에 완전히 용해시킨 후, PVA 폴리머를 혼합한다. PVA는 종류수와 혼합하여 5 wt%의 용액을 만든 후, 이를 혼합한다. 혼합된 용액은 약 100°C 에서 건조과정을 거치며, 강하게 휘저어 준다. 최종적으로 건조된 전구체(precursor)는 다공성의 매우 가벼운 gel 상태를 보이게 되며, 800°C 1시간 동안 하소한 후 1시간 동안 attrition 밀링을 행하였다. 이렇게 제조된 비정질 코디어라이트의 특성과 소결된 상태의 물성치를 Table 1에 나타내었다[8]. 열팽창 계수, 곡강도, 유전상수는 1300°C 에서 2시간 소결된 polycrystalline 코디어라이트 시료로부터 측정하였다. 비정질 분말은 소결 후 α -코디어라이트로 완전하게 결정화되었다.

판상형 알루미나 분말(Atochem, Pierre-Benite, Trance)은 $3\sim 5 \mu\text{m}$, $5\sim 10 \mu\text{m}$, $10\sim 15 \mu\text{m}$, $15\sim 25 \mu\text{m}$ 크기의 4 가지 형태를 사용하였다. 사용된 판상형 알루미나 분말의 전자현미경 사진을 Fig. 1에 나타내었다. 판상형 분말은 육각결정을 나타내고 있으며, 판상의 표면은 대체로 매끄러우며, 중앙부분에 약간의 결함이 관찰되었다.

비정질 코디어라이트와 판상형 알루미나의 혼합은 슬립상태로 혼합 되어졌다. 판상형 알루미나의 첨가량은 0~30 vol%로 변화 시켰으며, 0.2 wt% 에틸셀룰로오즈를 해고제와 바인더로써 슬립과 혼합하였다. 슬립의 응집을 방지하고, 균일하게 혼합하기 위해 수분동안 초음파 진동을 행하였다. 초음파 진동을 행한 후, 슬립은 pore를 제거하기 위해 진공 하에서 약 10분간 방치한 후, 여러 가지 특성분석을 위한 시편을 제조하기 위해 석고몰드에 의한 슬립 캐스팅을 실시하였다. 슬립 캐스팅 후 얻어진 시편은 곡강도 테스트의 경우 $4 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ 의

Table 1
Properties of amorphous-type cordierite powder and its sintered sample made by the PVA solution-polymerization method

BET specific surface area after milling (m^2/g)	181
Average particle size after milling (nm)	30
Sintered bulk density (g/cm^3)	2.50
Thermal expansion coefficient ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)	2.1
Flexural strength (MPa)	75
Dielectric constant at 1 MHz	5.3

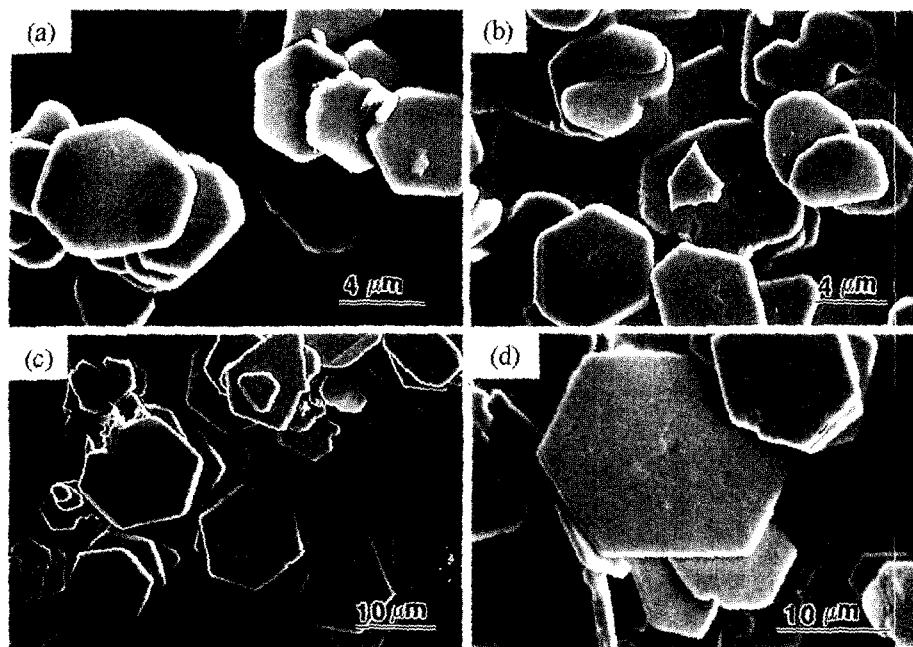


Fig. 1. SEM micrographs of alumina platelets of (a) 3~5 μm , (b) 5~10 μm , (c) 10~15 μm and (d) 15~25 μm in size.

크기로, 열팽창계수 측정의 경우 $\phi 7 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ 로, 유전상수 측정의 경우는 $\phi 12 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ 의 크기로 각각 제조하였다. 각각의 성형체는 완전건조 후 공기 분위기 하에서 1300°C 에서 2시간 동안 소결하였다.

소결 후 결정상 확인은 X-ray diffractometry(Rigaku, DMAX 2200, Tokyo, Japan)를 이용하여 $\text{Cu-K}\alpha$, 40 kV, 30 mA의 조건으로 측정하였다. 열팽창계수는 $5^\circ\text{C}/\text{min}$ 의 속도로 1100°C 까지 dilatometer(Netzsch Dilatometer, 402E, Germany)를 이용하여 측정하였다. 꼭강도는 4점 꺾임강도 측정법에 의하여 측정하였다. 이것은 $0.1 \text{ mm}/\text{min}$ 의 crosshead 속도로 span 길이는 각각 10 mm와 20 mm로 하여 universal testing machine(model 4502, Instron Corp., Canton, USA)를 이용하여 측정하였다. 최소 10 개의 시편을 각 조성별로 실시하였고, 최대값과 최소값을 제외한 평균값을 데이터로 사용하였다. 유전상수 측정은 전극형태를 위해 silver paste로 양면을 코팅하여 열처리 한 디스크 타입의 시편을 HP4275A impedance analyzer를 사용하여 1 MHz의 영역에서 측정하였다. 소결체의 미세구조는 각 시편의 표면을 연마한 후, Ag 코팅처리 하여 주사전자현미경(SEM, Hitachi S530, Hitachi, Japan)을 이용하여 관찰하였다. 소결체의 기공률은 아르카메데스법으로 측정하였다.

3. 결 과

1300°C 에서 2시간 소결된 시편들의 XRD 고찰에 의

한 결정상은 α -코디어라이트와 α -알루미나 결정상이 관찰되었다. 두 물질간의 반응에 의한 제3의 결정상은 XRD 상으로는 관찰되지 않았으며, 비정질 상은 그 정량적 고찰이 명확치는 않으나, 낮은 base line과 피크의 결정성 등으로 보아 그 양이 매우 적을 것으로 판단되었다.

3.1. 기계적 강도 고찰

판상형 알루미나 분말의 크기와 첨가량에 따른 코디어라이트의 꺾임강도 값의 변화를 Fig. 2(a)에 나타내었다. 모든 경우에서 꺾임강도는 10 vol%의 판상형 알루미나를 첨가할 때까지 증가하였다. 3~5 μm 크기의 판상형 알루미나를 첨가한 경우 약 10 vol%의 첨가량에서 최고 85 MPa의 꺾임 강도치를 나타내었다. 그러나 첨가량이 증가함에 따라 강도는 10 vol% 첨가량 부근에서 최대에 도달한 후 점진적으로 감소하였다. 가장 큰 15~25 μm 크기의 판상형 알루미나에서, 꺾임강도는 더 큰 (-)기울기를 기로 감소하였다. 일반적으로 세라믹 기관으로 사용하기 위하여 70~75 MPa 혹은 그 이상의 강도가 최소 강도로 필요로 하기 때문에 15~25 μm 크기의 판상형 알루미나를 포함한 코디어라이트-알루미나 복합체는 기관재료로 부적합하다고 보여지며, 따라서 이 후의 실험인 유전상수 측정과 열팽창 계수의 고찰은 15~25 μm 크기의 판상형 알루미나를 첨가한 조성을 제외한 다른 3가지 분말(3~5 μm , 5~10 μm , 10~15 μm 의 판상형 알루미나)로 실험한 데이터만을 고찰하였다.

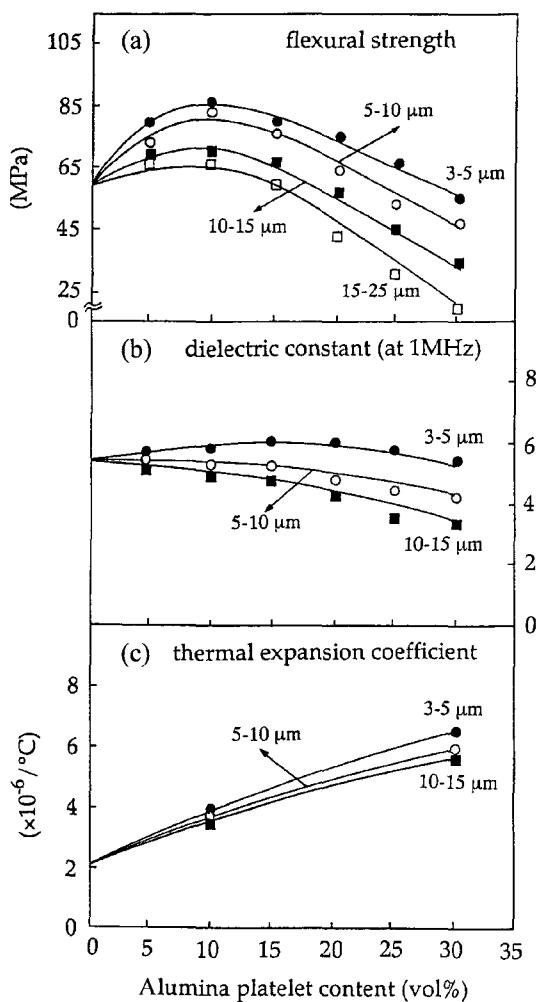


Fig. 2. Variation of (a) flexural strength, (b) dielectric constant and (c) thermal expansion coefficient of cordierite-alumina platelet composites at various mixing contents of alumina platelets.

3.2. 유전상수 변화

판상형 알루미나 분말의 크기와 첨가량에 따른 유전상수 값의 변화를 Fig. 2(b)에 나타내었다. 3~5 μm 크기의 판상형 알루미나 분말을 10 vol% 포함한 조성의 경우 유전상수는 20 vol%까지 다소 증가하였다. 6에 가까운 낮은 유전상수를 보였으며, 첨가량이 증가할수록 5까지 유전상수는 감소하였다. 5~10 μm와 10~15 μm 판상형 알루미나 분말을 포함한 조성의 경우는 알루미나 첨가량이 증가함에도 불구하고 유전상수가 점진적으로 감소함을 보였다. 이 같은 현상은 판상형 알루미나 첨가에 의한 코디어라이트-알루미나 복합체의 기지내에 유전상수 값을 감소시키는 다수의 기공이 존재하기 때문으로 생각되며, 이러한 기공의 영향은 기계적 강도의 고찰면에서도, 판상형 알루미나의 첨가량이 10 vol% 이상 첨가될 경우 강도값이 급격히 감소하기 시작하는 현상과도 연관지어 설명할 수 있을 것이다.

3.3. 열팽창계수 고찰

판상형 알루미나 분말의 크기와 첨가량에 따른 열팽창계수값의 변화를 Fig. 2(c)에 나타내었다. 10 vol% 판상형 알루미나 첨가량에 대한 열팽창 계수는 모든 경우에서 $3.5\sim4.0\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 를 보였다. 코디어라이트는 $2.1\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 의 낮은 열팽창 계수를 가지나, 알루미나 혼합의 영향에 의해 실리콘의 열팽창계수($3.0\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)에 가깝게 증가되었다. 이후 판상형 알루미나의 첨가량이 증가할수록 열팽창계수는 계속적으로 증가하였으며, 이것은 상대적으로 열팽창계수가 높은 알루미나의 증가에 의해 나타나는 예측할 수 있는 결과라 볼 수 있다.

3.4. 미세구조 관찰

Fig. 3은 코디어라이트-판상형 알루미나 조성의 소결된 시편의 표면 미세구조의 변화를 판상형 알루미나의 첨가량과 크기에 따라 나타내고 있다. 모든 경우에 있어서, 10 vol% 첨가에서의 미세구조는 판상형 알루미나의 입자크기에 관계없이 서로간에 그다지 큰 차이를 보이지 않고, 약 3~8 μm의 고립기공이 기지내에 분포된 미세구조를 나타내었다. 그러나 30 vol% 첨가의 경우는 첨가된 판상형 알루미나의 입자크기가 클수록 그 미세구조가 10 vol%의 경우와 많은 차이를 보였다. 특히 10~15 μm 와 15~25 μm 크기의 판상형 알루미나의 경우, 30 vol%에서 연속적인 거대기공이 관찰되었고, 이것은 Fig. 2(a)에서 보이는 겹임강도의 급격한 감소를 초래하는 충분한 원인이 될 것이다. 이러한 기공은 또한 유전상수의 변화 결과[Fig. 2(b)]를 볼 때, 알루미나의 첨가에 의해 증가된 유전상수를 감소시키는 역할을 하였다고 판단된다. 일반적인 mixing rule에 의한 코디어라이트-알루미나 복합체에서 알루미나의 첨가에 의해 유전상수가 증가되는 것은 예상되는 일이나, 본 연구의 경우 기공의 영향으로 유전상수의 증가보다는 유지, 혹은 감소현상을 볼 수 있었다. 열팽창계수의 거동[Fig. 2(c)]에서는 알루미나의 첨가에 의해 열팽창계수가 꾸준히 증가하는 것으로 보아, 다른 물성에 비하여 기공의 영향이 크게 작용하지 않은 것으로 판단된다.

4. 고찰

M. Pinero[10] 등의 연구에서는 졸-겔 공정으로 HIP에 의해 소결된 코디어라이트의 기계적 성질을 시험하였다. 코디어라이트는 핵생성제로써 15 wt% TiO₂를 함유하고, 알루미나 fiber와 함께 강화되었다. 이 연구에서는 1200°C에서 1시간 동안 HIP에 의해 소결시켰다. 이 연구에서

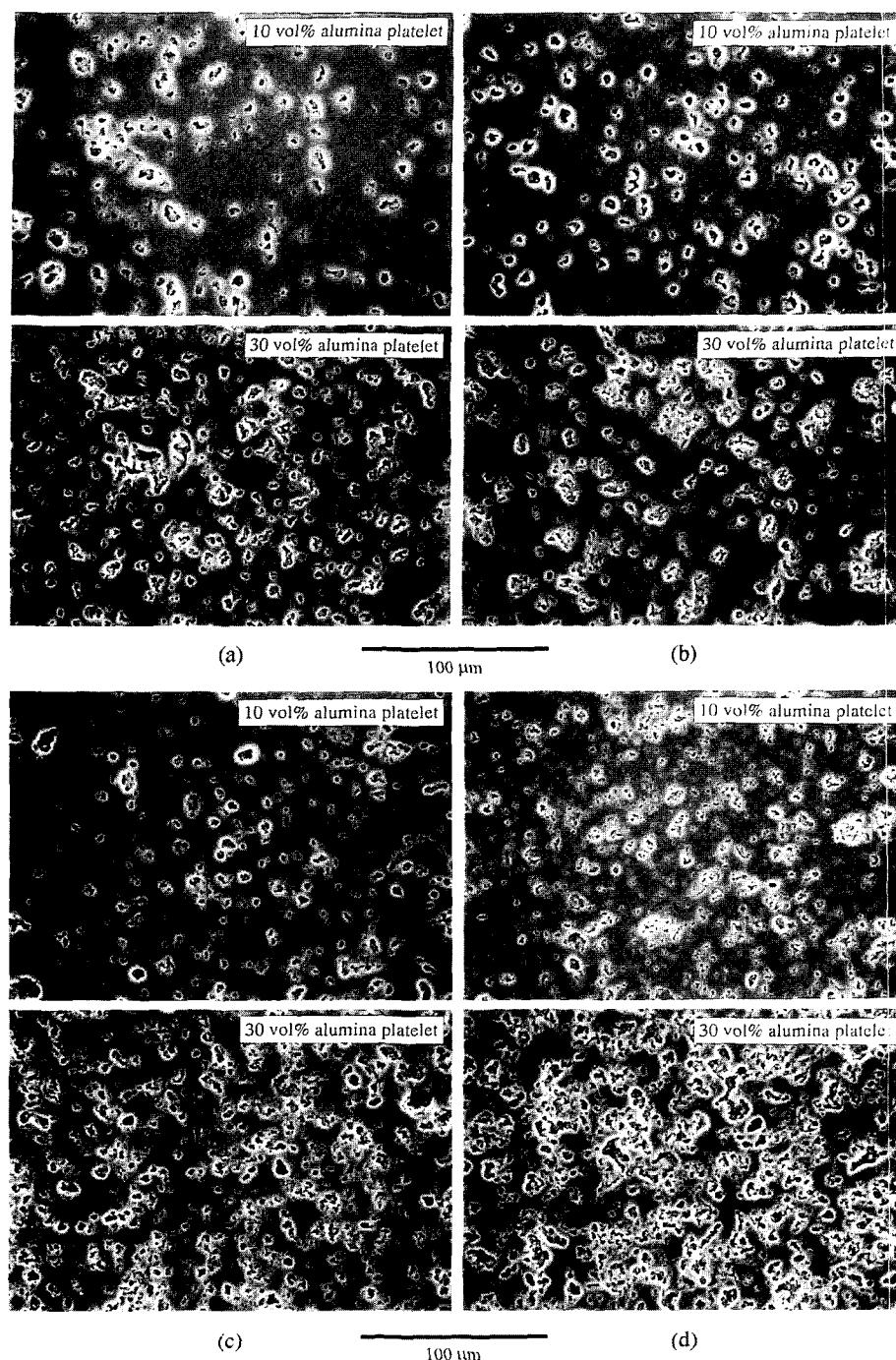


Fig. 3. SEM micrographs of polished surfaces of cordierite-alumina platelet composites sintered at 1300°C for 2 h at various alumina platelet sizes of (a) 3~5 μm , (b) 5~10 μm , (c) 10~15 μm and (d) 15~25 μm .

90 vol% 코디어라이트/10 vol% 알루미나 조성에 대해 92.4 MPa의 휨강도를 얻었고, 70 vol% 코디어라이트/30 vol% 알루미나 조성에 대해서는 74.6 MPa의 휨강도를 얻었다. 본 연구에서 행하여진 10 vol% 판상형 알루미나 조성의 경우, 5~10 μm 의 판상형 알루미나 첨가 시, HIP에 의해 소결된 시편과 비교해서 기공이 존재함에도 불구하고 80 MPa의 강도값을 보였다. 이것은 비정질 코

디어라이트 분말이 매우 소결성이 좋고, 판상형 알루미나 첨가에 의한 강도증진 기구가 효율적으로 나타났음을 의미한다. 30 vol% 알루미나 조성의 경우, HIP에 의해 소결된 경우, 기압소결에 의해 조절된 기공 때문에 판상형 알루미나를 첨가한 본 연구결과에 비하여 더 큰 강도를 보인것으로 판단된다.

유전적 성질은 기지내의 기공, 평균 기공 크기, 기공

Table 2

Variation of porosity in the alumina platelet filled cordierite composites sintered at 1300°C for 2 h at different alumina platelet size and content

5~10 μm		10~15 μm	
Content (vol%)	Porosity (%)	Content (vol%)	Porosity (%)
10	10	10	11
20	12	20	14
30	15	30	19

크기 분산 등에 의존한다[11]. 5~10 μm 크기의 판상형 알루미나 10 vol%를 포함하는 조성에서 기공이 전혀 존재하지 않는 경우와 기지내 기공이 기공율 10%로 존재하는 경우, 유전상수를 이론적인 식에 의하여 각각 계산하여 보았다. 두 경우 모두 순수한 코디어라이트의 유전상수는 5.3, 순수한 알루미나의 유전상수는 9.9로 하였고, 기공이 존재하지 않는 경우는 rule of mixture[3]를 이용하여 계산하였으며, 기공이 존재하는 경우는 Banno equation [12]을 이용하여 계산하였다. Banno equation의 경우 연속적인 기지상에 고립기공이 존재할 경우에 응용이 가능한 식이다. 측정된 기공률의 경우, 첨가된 판상형 알루미나의 입자크기에 따라서 큰 차이를 보이지는 않았으나, 일반적으로 입자크기가 증가함에 따라 같은 양의 첨가량일 경우 기공률이 증가하는 경향을 보였다. 5~10 μm와 10~15 μm 크기의 판상형 알루미나를 첨가하였을 경우, 그 첨가량에 따른 기공률의 변화를 Table 2에 나타내었다. 5~10 μm 크기의 판상형 알루미나 10 vol%를 포함하는 조성의 경우, 측정에 의해 얻어진 기공률 값은 10%였으며, 이를 Banno equation에 대입하였다. 기공이 없다고 가정한 조성의 경우 계산값은 5.8이었으며, 10 vol% 기공을 포함한 경우는 5.1로 계산되었다. 5.1의 계산된 값은 Fig. 2(b)의 실제 유전상수 측정값과 비교해 볼 때 (5~10 μm 크기의 판상형 알루미나 10 vol%를 포함하는 조성의 경우), 거의 유사한 결과치를 보였다. 이 같은 고찰에 의하여 기공에 의한 유전상수의 감소효과가 확실히 나타났음을 알 수 있었다. 이 같은 기공은 비정질 코디어라이트의 점성유동에 의한 소결거동 중에, 판상형 알루미나 표면에의 불완전한 젖음에 의해 형성되어 진다고 생각된다.

5. 결 론

비정질 코디어라이트에 판상형 알루미나를 첨가하여 유전상수, 열팽창 계수, 꺾임강도의 변화를 미세구조의 변화와 연관하여 고찰하였다. 판상형 알루미나의 혼합은 10 vol% 이하에서 기계적 성질과 열팽창 계수를 증가시켜 세라믹 기판재료로서의 응용을 가능하게 하였고, 3~8

μm 크기의 기지내 분포된 고립된 미세기공은 알루미나 첨가에 의해 증가된 유전상수 값을 감소시키는 역할을 하였다. 최종적으로 약 80 MPa의 꺾임강도와 약 5.0의 유전상수, 그리고 약 $3.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 의 열팽창계수를 보이는 기판재료로서의 최적의 조건을 보인 코디어라이트-판상형 알루미나 복합체가 5~10 μm 크기의 판상형 알루미나를 10 vol% 첨가한 조성에서 얻어질 수 있었다. 코디어라이트-판상형 알루미나 조성의 복합체는 낮은 유전상수와 열팽창 계수를 필요로 하는 세라믹 기판 재료로서 그 응용이 기대된다.

감사의 글

이 논문은 2001년도 한국학술진흥재단의 지원에 의하여 연구되었음(KRF-2001-003-E00376).

참 고 문 헌

- [1] K. Niwa, Y. Imanaka, N. Kamehara and S. Aoki, "Low-K and Low-T Sintering Materials for Multilayer Circuit Boards", in Advanced in Ceramics, M.F. Yan, K. Niwa, H.M. O'Bryan and W.S. Young. ed., Vol. 26, (The American Ceramic Society, Inc. Westerville, OH, 1989) p. 328.
- [2] K. Kondo, M. Hattori, Y. Matsuo and Y. Shibata, "Low-Temperature, Cofired, Multilayer Ceramic Packages Containing Copper Conductors and AlN Heat Sinks", in Advanced in Ceramics, M.F. Yan, K. Niwa, H.M. O'Bryan and W.S. Young. ed., Vol. 26 (The American Ceramic Society, Inc. Westerville, OH, 1989) p. 229.
- [3] R.A. Anderson, R. Gerhardt, J.B. Wachtman, D. Onn and S. Beecher, "Thermal, Mechanical, and Dielectric Properties of Mullite-Cordierite Composites", in Advanced in Ceramics, M.F. Yan, K. Niwa, H.M. O'Bryan and W.S. Young. ed., Vol. 26 (The American Ceramic Society, Inc. Westerville, OH, 1989) p. 265.
- [4] K. Watanabe, "Coalescence and Crystallization in Powdered High Cordierite Glass", J. Am. Ceram. Soc. 68 (1985) C-102.
- [5] Y. Shimada, K. Utsumi, M. Suzuki, H. Takamizawa, M. Nitta and T. Watari, "Low Firing Temperature Multilayer Glass-Ceramic Substrate", IEEE Trans. Comp. Hybrids. Manuf. Technol. 6 (1983) 382.
- [6] S.J. Lee and W.M. Kriven, "A Preparation of Ceramic Powders by Solution Polymerization Employing PVA Solution", Ceram. Eng. & Sci. Proc. 19 (1998) 469.
- [7] M.H. Nguyen, S.J. Lee and W.M. Kriven, "Synthesis of Oxide Powders Via a Polymeric Steric Entrapment Precursor Route", J. Mater. Res. 14 (1999) 3417.
- [8] S.J. Lee and W.M. Kriven, "Crystallization and Densification of Nano-Size, Amorphous Cordierite Powder Prepared by a PVA Solution-Polymerization Route", J. Am. Ceram. Soc. 81 (1998) 2605.

- [9] I.K. Cherian, M.D. Lehigh, I. Nettleship and W.M. Kriven, "Stereological Observations of Platelet-Reinforced Mullite and Zirconia Matrix Composites", *J. Am. Ceram. Soc.* 79 (1996) 3273.
- [10] M. Pinero, C.B. Solano, C.J. Solis, L. Esquivias and J. Zarzycki, "Mechanical Properties of Cordierite-Based Composites Obtained by Sol-Gel Techniques", in *Ceramic Transactions*, N.P. Bansal and J.P. Singh. ed., Vol. 74 (The American Ceramic Society, Inc. Westerville, OH, 1996) p. 471.
- [11] W. Cao, R. Gerhardt and J.B. Wachtman, Jr., "Low-Permittivity Porous Silica by a Colloidal Processing Method", in *Advanced in Ceramics*, M.F. Yan, K. Niwa, H.M. O'Bryan and W.S. Young. ed., Vol. 26 (The American Ceramic Society, Inc. Westerville, OH, 1989) p. 409.
- [12] W.A. Yarbrough, T.R. Gururaja and L.E. Cross, "Materials for IC Packaging with Very Low Permittivity via Colloidal Sol-Gel Processing", *Am. Ceram. Soc. Bull.* 66 (1987) 692.