

# $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ 晶体结构与微波介电性能的研究

张 瑶, 丁士华, 刘杨琼, 段绍英, 肖 鹏, 韩林材

(西华大学 材料学院, 成都 610039)

**摘 要:** 采用固相烧结法, 按化学计量比  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  ( $x=0, 0.05, 0.1, 0.15, 0.3, 0.5$ ) 制备样品, 考察不同  $\text{MgO}$  含量对  $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  系介电材料晶体结构及微波介电性能的影响。结果表明,  $\text{MgO}$  可以降低烧结温度, 促进六方相转变为单斜相, 当添加量  $x \geq 0.15$  时, 相转变可以达到 100%。当  $x \leq 0.15$  时, 适量的  $\text{MgO}$  可以有效地促进单斜钡长石晶粒的长大。在  $0.05 \leq x \leq 0.1$  范围内, 随着  $\text{MgO}$  含量的增加, 单斜钡长石衍射峰增强, 晶粒尺寸增大, 密度、介电常数与  $\tau_f$  均随  $\text{MgO}$  含量的增加而增大。在  $x=0.1$ , 烧结温度为  $1400^\circ\text{C}$  时, 可获得综合性能相对较好的单斜钡长石, 其介电性能  $\epsilon_r=6.44$ ,  $Q \times f=16461 \text{ GHz}$ ,  $\tau_f=-30.6 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ 。

**关 键 词:**  $\text{MgO}$ ; 钡长石; 单斜相; 晶体结构; 微波介电性能

中图分类号: TQ174 文献标识码: A

## Crystal Structure and Microwave Dielectric Property of $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$

ZHANG Yao, DING Shi-Hua, LIU Yang-Qiong, DUAN Shao-Ying, XIAO Peng, HAN Lin-Cai

(School of Materials Science and Engineering, Xihua University, Chengdu 610039, China)

**Abstract:** Barium feldspar  $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  system materials have been studied extensively for application in microwave devices, microwave substrate and packaging in recent years, due to their remarkable dielectric properties. The hexacelsian-celsian transition, relationship between dielectric properties, and structure of  $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  system has attracted widely academic interest.  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  ( $x=0, 0.05, 0.1, 0.15, 0.3, 0.5$ ) ceramics were prepared by solid state sintering processing. The crystal structure and microwave dielectric properties of  $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  with different  $\text{MgO}$  contents were studied. The results show that  $\text{MgO}$  doping reduces sintering temperature and greatly promotes the transition from hexacelsian to celsian at  $x \geq 0.15$ , while the transition reaches 100%.  $\text{MgO}$  doping effectively increases grain size at  $x \leq 0.15$ . The diffraction peak of celsian is enhanced and the grain size gets larger. Moreover, the density, dielectric constant and  $\tau_f$  of  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  ceramics increases with the increase of  $\text{MgO}$  content in the range of  $0.05 \leq x \leq 0.1$ . In addition, the resonant frequency temperature coefficient is negative. The  $\text{Ba}_{0.9}\text{Mg}_{0.1}\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  sintered at  $1400^\circ\text{C}$  exhibits a high  $Q \times f$  value of  $16461 \text{ GHz}$ ,  $\epsilon_r=6.44$  and  $\tau_f=-30.6 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  at  $x=0.1$ . The dielectric constant of  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  ceramics is related with its  $\text{Mg}^{2+}$  polarizability and its structure. The effect of electronegativity, the size of ions and the crystal structure on  $Q \times f$  value of  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  ceramics are also discussed.

**Key words:** magnesium oxide; feldspar; celsian; crystal structure; microwave dielectric properties

收稿日期: 2016-04-19; 收到修改稿日期: 2016-06-08

基金项目: 国家自然科学基金(11074203); 西华大学研究生创新基金(ycjj2015217, ycjj2015218, ycjj2015113)

National Natural Science Foundation of China (11074203); Graduate Innovation Foundation of Xihua University (ycjj2015217, ycjj2015218, ycjj2015113)

作者简介: 张 瑶(1990-), 女, 硕士研究生. E-mail: 826236023@qq.com

随着移动通信和军用雷达等微波通讯技术的发展, 具有低介电常数( $\epsilon_r < 10$ )、高品质因数(介电损耗  $\tan \delta < 10^{-4}$ )和近零谐振频率温度系数( $\tau_f \approx 0$ )的电介质陶瓷材料, 在微波毫米波通信系统中作为谐振器、滤波器、微波导线与微波基板等元器件的应用研究备受关注。

BaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>(BAS)系材料熔点高(1760℃), 机械强度和耐热温度(>1590℃)高, 有良好的抗氧化性能和抗碱蚀能力, 化学稳定性好, 膨胀系数可调, 与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、SiC、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 和莫来石等具有较好的化学相容性<sup>[1]</sup>。因此, BAS 系介电材料是研究热点之一, 有可能成为 1200℃ 以上工作的陶瓷复合材料基体。

BAS 系材料的主晶相为钡长石(BaAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>), 主要有三种晶型: 六方钡长石、单斜钡长石和正交钡长石。六方钡长石的热膨胀系数为  $8 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$  (300~1000℃)<sup>[2]</sup>, 比大多数陶瓷增强相的热膨胀系数大, 当温度低于 1590℃ 时呈亚稳定状态存在。此外, 在 300℃ 左右, 六方钡长石与正交钡长石将发生可逆转变, 转变过程中伴随着 3%~4% 的体积变化, 这可能会导致微裂纹的形成<sup>[3]</sup>。单斜钡长石的热膨胀系数为  $2.29 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ <sup>[4]</sup>, 1590℃ 下稳定存在, 与多种增强相有良好的热匹配和化学相容性, 单斜钡长石的电绝缘性和介电性能较好, 介电常数小( $\epsilon_r < 10$ ), 介电损耗低于  $50 \times 10^{-4}$  (<1200℃)<sup>[5]</sup>。因此, 一般希望得到以单斜钡长石为主晶相的 BAS 系介电材料。

研究表明, 在以钡长石(BaAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>)为主晶相的 BAS 系材料的制备过程中, 往往会优先析出六方钡长石, 先析出的晶相将显著提高玻璃的粘度, 这对质点扩散的阻碍作用又限制了结晶速度<sup>[6]</sup>, 导致后析出的单斜钡长石结晶非常困难, 高温时单斜钡长石从亚稳的六方钡长石缓慢析出<sup>[5, 7]</sup>, 并且需要高温下长时间保温。Chen 等<sup>[8]</sup>利用溶胶-凝胶法在 1320℃ 保温 28 h 才实现了六方钡长石向单斜钡长石的完全转变; Bahat 等<sup>[9]</sup>用烧结法在 1200℃ 保温 90 h 才实现晶型的完全转变。因此, 寻求一种加快六方钡长石向单斜钡长石转变的方法, 达到晶型的转变与性能的可控具有重要意义。

促进六方钡长石向单斜钡长石转变的方法主要有<sup>[10-11]</sup>: 冷等静压/热处理法, 加入 Li<sub>2</sub>O、SrO 等晶核剂和加入单斜晶种等。本实验利用固相烧结法在 BaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>(BAS)中以一定化学计量比 Ba<sub>1-x</sub>Mg<sub>x</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>添加 MgO, 考察不同 MgO 含量对 BaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> 系介电材料晶体结构及介电性能的影响。

## 1 实验方法

以分析纯 BaCO<sub>3</sub>、MgO、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、SiO<sub>2</sub> 为原料, 按化学计量比 Ba<sub>1-x</sub>Mg<sub>x</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> ( $x=0, 0.05, 0.1, 0.15, 0.3, 0.5$ ) 准确称量。称量好的原料置于球磨罐中, 以去离子水和锆球为球磨介质球磨 8 h, 烘干过筛, 压制成大块在箱式高温炉中以 900℃ × 2.5 h 进行预烧, 然后二次球磨, 球磨时间 8 h, 烘干, 加入一定量的 PVA 粘结剂进行造粒, 压制成型, 然后在 1325~1425℃ 下进行烧结, 保温 5 h 后随炉冷却, 即制得样品。

采用阿基米德排水法测量样品密度。采用 x'Pert 型转靶 X 射线衍射仪(Cu K $\alpha$ ,  $\lambda=0.15406 \text{ nm}$ )对陶瓷样品晶相进行分析, 扫描速度为 3°/min, 测试角度范围为 20°~80°。采用 Hitachi 的 S-3400 扫描电子显微镜(scanning electron microscope, SEM)观察样品显微形貌。采用 Agilent 网络分析仪(型号 N5230A)测试样品介电常数和品质因数, 测试频率 11GHz 左右。采用小型高低温试验箱(型号 MC-710P)分别测试样品在 25~85℃ 下的中心谐振频率, 利用谐振频率温度系数公式进行计算:

$$\tau_f = \frac{f_{85} - f_{25}}{f_{25} \times 60} / ^\circ\text{C} \quad (1)$$

这里,  $f_{85}$ 、 $f_{25}$  分别为 85℃ 和 25℃ 下玻璃陶瓷样品的中心谐振频率。

## 2 结果和讨论

### 2.1 烧结特征曲线分析

图 1 为 Ba<sub>1-x</sub>Mg<sub>x</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> 样品的密度与烧结温度的关系曲线, 从图中可以看出, 当  $0 \leq x \leq 0.1$  时, 1400℃ 烧结样品的密度达到最大值; 当  $0.15 \leq x \leq 0.3$  时, 1375℃ 烧结样品的密度达到最大值; 当  $x = 0.5$  时, 1350℃ 烧结样品的密度最大。因此, 取样品烧结密度最大时对应的温度为烧结温度进行研究, 如表 1 所示。

通过表 1 可以看出: 随着  $x$  值的增加, 烧结温度从 1400℃ 降低到 1375℃, 当  $x=0.5$  时, 烧结温度降低至 1350℃。这说明添加 MgO 可以促进烧结, 降低烧结温度。对比不同  $x$  值的最大烧结密度可以看出, 当  $x=0$  (不添加) 时, 纯 BAS 样品的密度为 2.8929 g/cm<sup>3</sup>, 随着  $x$  值的增大, 烧结密度增加, 当  $x$  增大到 0.1 时, 密度达到最大值 2.9889 g/cm<sup>3</sup>, 继续增大  $x$  值, 密度降低, 可见 MgO 添加量过大反而不利于材料的致密化。MgO 对烧结的影响首先是由于 Mg<sup>2+</sup> 与 Ba<sup>2+</sup>

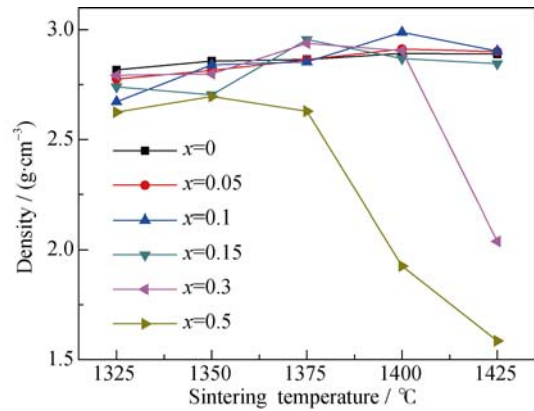


图 1 Ba<sub>1-x</sub>Mg<sub>x</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> 样品密度与烧结温度的关系曲线  
Fig. 1 Relationship between density and sintering temperature of the Ba<sub>1-x</sub>Mg<sub>x</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>

表 1 Ba<sub>1-x</sub>Mg<sub>x</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> 随 MgO 含量变化的烧结情况  
Table 1 Sintering conditions of the samples  
Ba<sub>1-x</sub>Mg<sub>x</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> with different MgO amounts

Ba <sub>1-x</sub> Mg <sub>x</sub> Al <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> O <sub>8</sub>	Sintering temperature/°C	Density/(g·cm <sup>-3</sup> )	Main crystalline phase
x=0	1400	2.8929	Hexacelsian
x=0.05	1400	2.9129	Celsian
x=0.1	1400	2.9889	Celsian
x=0.15	1375	2.9556	Celsian
x=0.3	1375	2.9385	Celsian
x=0.5	1350	2.6964	Celsian

的电负性不同, Mg-O 静电作用力小于 Ba-O 静电作用力, Mg-O 键断裂所需的能量更少。此外, Mg<sup>2+</sup> 的半径小于 Ba<sup>2+</sup> 半径, 在固相反应过程中, Mg<sup>2+</sup> 的扩散速率大于 Ba<sup>2+</sup>, 有利于烧结传质, 反应速度增加, 所需烧结温度降低, 因此加入 MgO 后烧结温度适度降低。在 0.05≤x≤0.1 范围内, 随着 MgO 含量的增加, 单斜钡长石晶粒不断长大, 使样品致密度增加。在 x=0.15 时, 大量的 MgO 使晶粒过度长大, 导致密度下降。在 x≥0.15 时, 单斜钡长石中 Mg-O 静电作用力小于 Ba-O 静电作用力, Mg-O 间的键长大于 Ba-O 间的键长, 并且 Mg 原子量比 Ba 小, 导致密度随 MgO 的增加而降低。

2.2 MgO 对晶体结构的影响

在表 1 对应温度下烧结样品的 XRD 图谱如图 2 所示, 生成的物相如表 1 所列。从 XRD 图谱可知, 不添加 MgO 时, 结晶相为单一的六方相钡长石 (JCPDS 77-0185); 添加 MgO 后, 六方钡长石开始转变为单斜钡长石 (JCPDS 38-1450), 且随着 MgO 含量的增加转变量增多, 当 x≥0.15 后, 转变几乎达到 100%。加入 MgO 使部分 Ba<sup>2+</sup> 被 Mg<sup>2+</sup> 取代, Mg<sup>2+</sup> 作为异质成核的中心, 促进单斜钡长石的形核与长

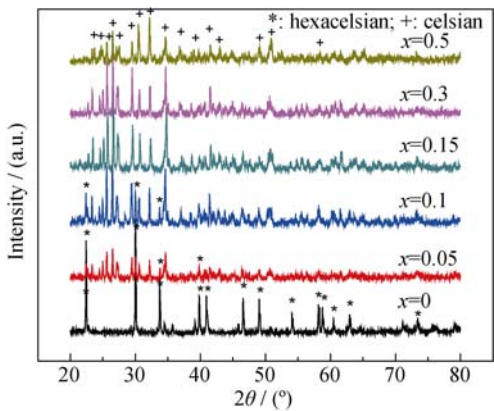


图 2 Ba<sub>1-x</sub>Mg<sub>x</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> 样品的 XRD 图谱  
Fig. 2 XRD patterns of the Ba<sub>1-x</sub>Mg<sub>x</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> samples

大。对比单斜相衍射峰强度可以发现, 在 0.05≤x≤0.15 范围内, 随着 MgO 含量的增加, 单斜相晶体对应的衍射峰强度增强, 说明结晶度增加; 当 0.3≤x≤0.5 时, 随 MgO 含量的增加衍射峰强度减弱, 说明结晶度减小。

XRD 图谱扣除背底 Rietveld 精修后, 计算出的 BAS 系样品主晶相的晶格常数与晶胞体积, 如表 2 所示。从表 2 可以看出, 在 0.05≤x≤0.15 范围内, 单斜晶胞体积随 MgO 含量的增加而减小, 当 x=0.15 时, 单斜晶胞体积最小 (V=0.73038 nm<sup>3</sup>)。继续增大 MgO 含量, 单斜相钡长石晶胞体积增大。添加 Mg<sup>2+</sup> 时, Mg<sup>2+</sup> 进入 BaAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> 基质晶体结构中形成 (Ba,Mg)Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> 固溶体。由于 Mg<sup>2+</sup> 半径 (R=0.72 nm) 远小于 Ba<sup>2+</sup> 半径 (R=1.35 nm), 根据 Vegards 变化规律, 晶胞体积随 MgO 含量的增加而减小。但当 x>0.15 后, 过量的 MgO 反而会使晶胞体积变大, 这可能是由于 Mg-O 键长较 Ba-O 键长大, Mg<sup>2+</sup> 取代 Ba<sup>2+</sup> 引起原子间距增大, 晶格膨胀, 造成晶胞体积变大。

图 3 为 BAS 系样品的 SEM 显微形貌。图 3(a)、(b) 晶粒呈小颗粒状, 晶粒较小 (1 μm 左右), 且含有少量熔融状的玻璃相。从图 3(c)、(d) 可以看出, 增加 MgO 含量, 晶粒明显长大, 呈长条状。从图 3(e)、

表 2 主晶相的晶格常数与晶胞体积  
Table 2 Lattice constant and unit cell volume of the Ba<sub>1-x</sub>Mg<sub>x</sub>Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> samples with different MgO amounts

Ba <sub>1-x</sub> Mg <sub>x</sub> Al <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> O <sub>8</sub>	a/nm	b/nm	c/nm	V/nm <sup>3</sup>
x=0 (Hexacelsian)	0.530506	0.530506	0.779730	0.19004
x=0.05 (Celsian)	0.864706	1.304903	0.722291	0.74016
x=0.1 (Celsian)	0.865584	1.306700	0.721656	0.73998
x=0.15 (Celsian)	0.861000	1.302623	0.718374	0.73038
x=0.3 (Celsian)	0.863250	1.305660	0.720369	0.73588
x=0.5 (Celsian)	0.866638	1.305692	0.722445	0.73898

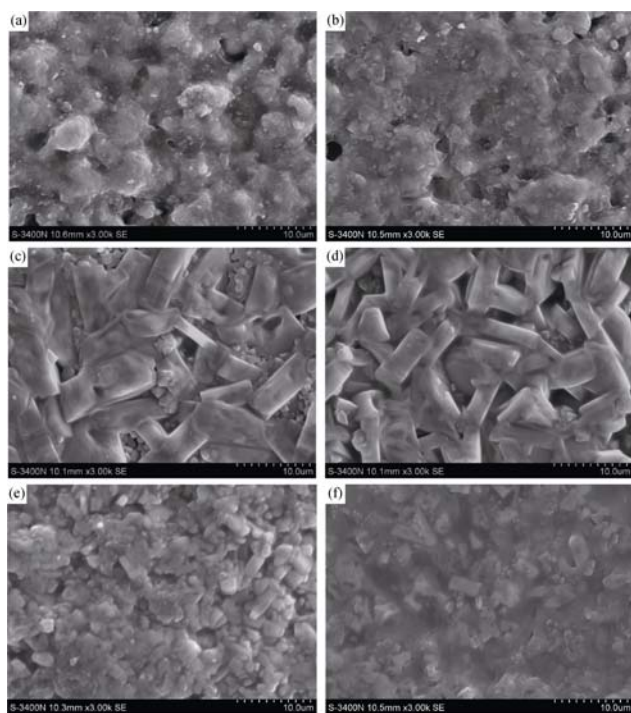


图 3  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  样品的 SEM 照片

Fig. 3 SEM images of the samples with different MgO amounts

(a)  $x=0$ ; (b)  $x=0.05$ ; (c)  $x=0.1$ ; (d)  $x=0.15$ ; (e)  $x=0.3$ ; (f)  $x=0.5$

(f)发现,再继续增加 MgO 含量,晶粒减小。对比图 3(b~f),在  $0.05 \leq x \leq 0.15$  范围内,晶粒长大,当  $x=0.15$  时,晶粒最大,全部为均匀分布的长条状,说明适量增加 MgO 可以促进单斜晶粒的长大。然而,在  $0.3 \leq x \leq 0.5$  范围内,随着 MgO 含量增加,晶粒反而逐渐减小,说明过量的 MgO 反而会抑制晶粒的长大。单斜晶粒大小随  $x$  值的变化趋势与图 2 中 XRD 衍射峰强度随  $x$  值的变化趋势一致。

### 2.3 MgO 对介电性能的影响

图 4 为介电常数与 MgO 含量的关系曲线。当  $x=0$ (不添加)时,样品的介电常数为 6.10,随着  $x$  值的增大,样品的介电常数增大,当  $x=0.1$  时,介电常数达到最大值 6.44,随着  $x$  值的继续增大,介电常数逐渐减小。根据 XRD 及 SEM 分析结果,在  $x=0$  时,样品为六方相,添加少量 MgO 后,有部分六方相转变为单斜相,晶型转变导致介电常数增加。在  $0.05 \leq x \leq 0.1$  范围内,同时存在六方相与单斜相,随着生成的单斜相增多,  $\epsilon_r$  增大。当  $x \geq 0.15$  时,晶相全部转变为单斜相,由于  $\text{Mg}^{2+}$  的极化率( $\alpha=1.32$ )小于  $\text{Ba}^{2+}$  的极化率( $\alpha=6.4$ )<sup>[12]</sup>,因此,  $\epsilon_r$  随着 MgO 含量的增加而减小。同时,介电常数还与样品的密度有关,通常情况下,样品密度越大,介电常数越大。这里介电常数的变化趋势与表 1 中密度随  $x$  值

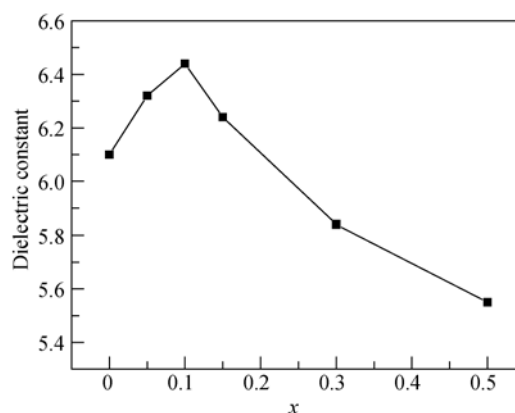


图 4  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  样品的介电常数变化曲线

Fig. 4 Dielectric constant of the samples  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  with different MgO amounts

的变化趋势一致,这说明密度也是影响样品介电常数的主要因素。

图 5 为 BAS 系样品的品质因数( $Q \times f$ )与  $x$  值的关系曲线。当  $x=0$ (不添加)时,样品的  $Q \times f$  值为 12882 GHz;  $x=0.05$  时,样品的  $Q \times f$  值升高到 16943 GHz,达到最大值;当  $x=0.1$  时,品质因数也较高,为 16461 GHz。随着  $x$  值继续增大,  $Q \times f$  值逐渐降低,当  $x=0.5$  时,  $Q \times f$  值降低至 11046 GHz。介电材料品质因数的影响因素主要与晶体结构基元化学键的运动,原子排列有序,晶格缺陷、杂质、晶粒尺寸与分布,晶界与气孔率等因素有关<sup>[13-14]</sup>。六方相向单斜相的转变使  $Q \times f$  值提高。随着 MgO 含量的增加,  $\text{Mg}^{2+}$  增多,而  $\text{Mg}^{2+}$  半径远小于  $\text{Ba}^{2+}$  半径,且  $\text{Mg}^{2+}$  的电负性(1.2)大于  $\text{Ba}^{2+}$  的电负性(0.9)<sup>[15]</sup>,  $\text{Mg}^{2+}$  与  $\text{O}^{2-}$  间的作用力加强,使  $(\text{Si,Al})\text{O}_4$  四面体网络空间发生变化,这可能是导致  $Q \times f$  值减小的原因。同时,从密度的角度来看,如前所述当  $x > 0.1$  后,密度降低,而且随 MgO 的增加结晶度减小,这也是造成样品  $Q \times f$  值减小的原因。

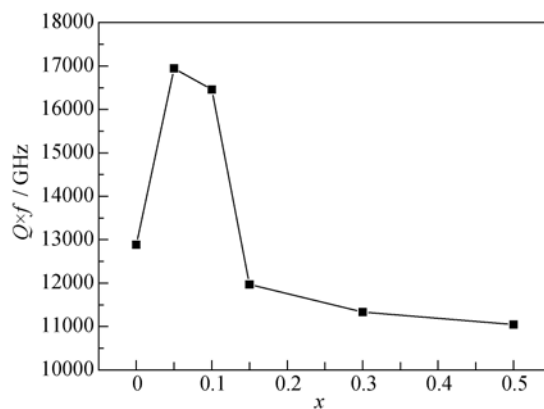


图 5  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  样品的品质因数曲线

Fig. 5  $Q \times f$  of the samples  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  with different MgO amounts

图 6 为 BAS 系样品的谐振频率温度系数( $\tau_f$ )曲线图。BAS 系介电材料含有负的  $\tau_f$  值。在  $0.0 \leq x \leq 0.1$  范围内,  $\tau_f$  随 MgO 含量的增加而增大, 在  $x=0.1$  时,  $\tau_f$  取最大值  $\tau_f = -30.6 \times 10^{-6} \text{K}^{-1}$ 。当  $x > 0.1$  后, 随着 MgO 的增加,  $\tau_f$  减小。

根据公式  $\tau_f = -0.5\tau_\varepsilon - \alpha$  可知, 谐振频率温度系数与介质陶瓷材料的热膨胀系数和介电常数温度系数有关, 对于电子陶瓷材料  $\alpha$  一般取  $10 \times 10^{-6} \text{K}^{-1}$  左右, 相差不大。又由于  $\tau_\varepsilon = -\alpha\varepsilon_r$  [16], 因此,  $\tau_f$  与  $\varepsilon_r$  成正相关。此处, 谐振频率温度系数随 MgO 含量变化的趋势恰好与图 4 介电常数随 MgO 含量的增加而增加, 在  $x=0.1$  时,  $\varepsilon_r$  最大, 继续增加 MgO,  $\varepsilon_r$  减小的变化趋势吻合, 说明影响材料  $\tau_f$  的主要原因可能与  $\varepsilon_r$  有关。

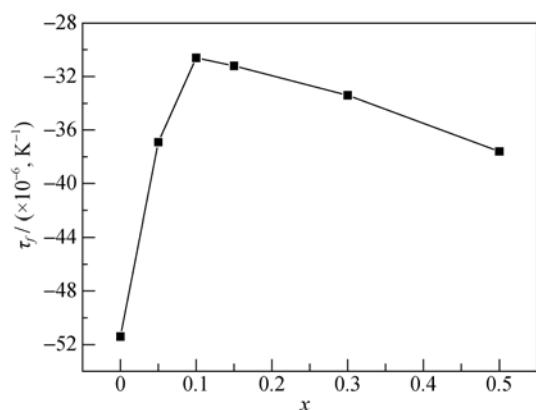


图 6  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  样品的谐振频率温度系数曲线  
Fig. 6  $\tau_f$  of the sample  $\text{Ba}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  with different MgO amounts

### 3 结论

1) MgO 可以降低 BAS 系材料的烧结温度, 提高烧结密度。MgO 对钡长石晶型转变有非常好的促进作用, 能使钡长石从六方相迅速转变成单斜相, 当添加量  $x \geq 0.15$  时, 六方相向单斜相的转变几乎达到 100%。

2) 在一定范围内增加 MgO 的含量, 单斜钡长石结晶越多, 晶粒越大。长大的单斜钡长石呈长条状。

3) 在  $0.0 \leq x \leq 0.1$  范围内, 随 MgO 含量的增加, 密度增大, 介电常数增大, 介电常数的变化与晶体结构、离子极化率、密度有关; 在  $0.05 \leq x \leq 0.1$  范围内, 有相对较大的品质因数, 品质因数的大小可能与晶体结构、离子电负性、密度有关; 在  $0 \leq x \leq 0.1$  范围内, 随 MgO 含量的增加, 谐振频率温度系数增大。

### 参考文献:

- [1] YANG JUE-MING, ZHOU WAN-CHENG, ZHANG LI-TONG. Effect of celsian seeds on the phase transformation of BAS glass-ceramic. *Journal of Xi'an Institute of Technology*, 1998, **18**(1): 40-45.
- [2] FRETY N, TAYLOR A, LEWIS M H. Microstructure and crystallization behavior of Sol-Gel derived  $1/2\text{SrO}-1/2\text{BaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-2\text{SiO}_2$  glass-ceramic. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 1996, **195**(1): 28-37.
- [3] NAROTTAM P, BANSAL, MARK J, HYAT. Crystallization kinetics of  $\text{BaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$  glasses. *Journal of Materials Research*, 1989, **4**(5): 1257-1265.
- [4] KOBAYASHI Y. Transformation kinetics from hexacelsian to celsian for powders having uniform particle size. *Ceramics International*, 2001, **27**(2): 179-184.
- [5] LU YU-FENG, DU YONG-GUO, XIAO JIA-YU, et al. Effect of  $\text{ZrO}_2$  on crystallization and phase transformation in low-temperature processed  $\text{BaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$  glass-ceramics. *Journal of Inorganic Materials*, 2008, **23**(1): 159-164.
- [6] LU YU-FENG, DU YONG-GUO, XIAO JIA-YU, et al. Crystallization kinetics of  $\text{BaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$  glass-ceramics. *Journal of Inorganic Materials*, 2008, **23**(2): 315-321.
- [7] YE FENG, LIU LI-MENG, ZHANG JING-XIAN, et al. Synthesis of 30wt% BAS/ $\text{Si}_3\text{N}_4$  composite by spark plasma sintering. *Composites Science and Technology*, 2008, **68**(3/4): 1073-1079.
- [8] CHEN M, JAMES P F, LEE W E. Synthesis of monoclinic celsian from seeded alkoxide gels. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 1994, **1**(2): 99-111.
- [9] BAHAT DOV. Kinetic study on the hexacelsian-celsian phase transformation. *Journal of Materials Science*, 1970, **5**(9): 805-810.
- [10] LU YU-FENG, DU YONG-GUO, XIAO JIA-YU, et al. Research progress and applications of  $\text{BaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$  glass-ceramics. *Journal of Materials Science and Engineering*, 2007, **25**(4): 634-643.
- [11] WU JIAN-FENG, DU YONG-GUO, LU YU-FENG, et al. Research progress of phase transformation in  $\text{BaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$  glass-ceramics. *Bulletin of The Chinese Ceramic Society*, 2008, **27**(3): 573-579.
- [12] SHANNON R D. Dielectric polarizabilities of ions in oxides and fluorides. *Journal of Applied Physics*, 1993, **73**(1): 348-366.
- [13] SONG KAI-XIN, YANG YUE-QIANG, ZHENG PENG, et al. Microstructures and microwave dielectric properties of  $(\text{Mg}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{Al}_4\text{Si}_5\text{O}_{18}$  ceramics. *Journal of Inorganic Materials*, 2012, **27**(6): 575-579.
- [14] SEBASTIAN M T, JANTUNEN H. Low loss dielectric materials for LTCC applications: a review. *International Materials Reviews*, 2008, **53**(2): 57-90.
- [15] 周晓莉, 时懂宇. 无机化学. 北京: 化学工业出版社, 2009: 76-77.
- [16] 倪尔瑚. 介质谐振器的微波测量. 北京: 科学出版社, 2006: 2-6.