

유기물 조성에 따른 LTCC 테이프 특성 연구

임 옥, 강 병 환, 유 찬 세, 이 영 신, 조 현 민, 이 우 성, 강 남 기
전자부품연구원 통신부품연구센터 고주파 재료 그룹
451-860, 경기도 평택시 진위면 마산리 455-6

LTCC Tape Characterization as Organic Formulation

W.Lim, B.H.Kang, Y.S.Yoo, Y.S.Lee, H.M.Cho, W.S.Lee, N.K.Kang
Telecommunication Component Research Center, Microwave Material Group,
Korea Electronics Technology Institute(KETI)
451-860, PyungTaek, Korea

초 록

테이프 캐스터를 이용하여 바인더/가소제, 분말함량 비율이 다른 LTCC 테이프를 제작한 후 특성평가를 하고자 하였다. 슬러리 조성은 서로 다른 바인더/가소제 그리고 분말함량에 따라 각각 4개 조성으로 구성하였다. 모든 슬러리에서 발포나 핀홀이 없는 미려한 표면을 갖는 테이프를 얻을 수 있었다. 가장 우수한 기계적 특성 특성은 B/P=3.0, 분말함량 70vol%인 두께 52 μ m인 테이프에서 인장강도 4.6MPa, 신율 29.5%의 특성을 얻을 수 있었다.

Abstract

Non-aqueous tape casting of LTCC with PVB binder has been studied in a continuous tape casting machine. The aim of the study was to evaluate this type of system in the different Binder/Plasticizer and solid content compositions. Each four slurry compositions were used in the experiments with varied binder/plasticizer and solid content. All the slurries gave good quality tapes with smooth surfaces without blisters or pinholes. The highest mechanical properties was obtained for the B/P=3.0, powder content 70vol% composition from 52 μ m green tapes, a tensile strength of 4.6 MPa and a linear extension of 29.5%.

1. 서론

Multi-layer로 chip화하기 위해서는 doctor blade법에 의한 tape의 제조가 필수 불가결하다. 이때 tape casting 법에 의한 제조된 sheet의 특성에 따라 punching성, screen printing, shrinkage, 사용 전극과의 matching성 등에 크게 영향을 미친다. 특히 현재의 칩 부품은 사용 주파수의 고주파화와 소형화, 그리고 모듈화의 진행에 따라 공정시 용량 tolerance의 관

리가 매우 중요한 문제로 대두되고 있다.

따라서 현재 slurry제조에 많이 사용되고 있는 organic vehicle을 이용하여 plasticizer/binder의 비율을 변화시켜서 punching성이 우수하고 적당한 기계적 강도를 갖는 조성을 선택하고, organic vehicle의 자체 formulation은 고정하고 powder의 solid loading을 vol%로 변화시켜 우수한 green density와 shrinkage를 갖도록 하고자 하였다.

2. 실험 방법

Alumina tape 제조 등의 문헌을 기초로 하여 dupont 9599 powder의 vol%을 70으로 고정하고(solid:organic vehicle=70:30vol%), dispersant는 SN 9228의 첨가량 변화 실험을 실시하여 그 중에서 분산효과가 가장 우수했던 0.05wt%로 고정하였다. 이때 slurry제조를 위해 organic vehicle은 plasticizer(DBP, Dibutyl Phthalate), binder는 PVB(B-79), solvent는 binder 용해능이 우수하고 조성변화가 없는 toluene과 ethanol이 공비조성(toluene: ethanol=32:68)을 사용하였다. 1차 Ball milling은 powder, dispersant, solvent을 이용하여 24 시간 실시하였고, 2차 Ball milling은 organic vehicle의 자체 formulation을 plasticizer/binder= 1.5, 2, 2.5, 3로 변화시키면서 18시간 이상 실시하여 tape 특성 변화를 연구하였다. Dupont 9599 powder의 vol%을 solid:organic vehicle= 70:30 vol%로 고정하고 plasticizer/binder 비는 2.5로 고정한 후 solid/organic vehicle을 75, 72.5, 67.5, 65 vol%로 변화시켜 실험하였다. Solid loading 이외의 다른 조성은 organic formulation 실험과 동일하게 첨가하였다.

3. 결과 및 고찰

적층압력의 변화에 따른 두께 수축율을 측정한 경우 적층압력이 증가함에 따라 수축율이 증가함을 알 수 있다. B/P=1.5와 B/P=2.0과의 경우를 제외하고는 성형성에 관여하는 binder의 함량이 증가함에 따라 수축율이 증가함을 알 수 있다. 적층압력의 변화에 따른 green density 변화를 측정한 경우 적층압력이 0인 경우는 green sheet 자체의 sheet green density로 B/P=2.5일 때 2.0 g/cm³으로 최대값을 나타내다가 B/P 비를 비율이 증가하면 오히려 감소하는 경향을 보이고 있다. 또한 적층압력이 증가해도 그러한 경향을 나타내는데 이와 같은 이유는 본 실험에서 사용하는 유기 시스템에서 B/P=2.5일 때 유기 첨가제와 9599 powder와 가장 적절한 packing이 이루어지고 그 이상으로 binder가 증가하면 오히려 powder와 유기 첨가물간에 packing을 방해하기 때문이라고 판단된다. B/P 비 변화를 시키면서 적층압력 증가에 따라 수축율 변화를 측정한 경우 B/P 비가 증가함에 따라 수축율이 감소함을 알 수 있고 B/P=3.0이상에서는 13.2~13.4%로 일정한 값을 가지며 951AT sheet 수축율 12.7% 보다는 약간 높은 수축율을 나타낸다. 소결한 시편에 대한 두께방향의 수축율 변화는 B/P 비가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내었는데 두께방향의 수축율은 B/P=2.0과 951AT 시편과 비슷한 15.4%의 수축율을 나타내었다.

적층압력 증가에 따른 B/P=1.5, B/P=2.0, B/P=2.5, B/P=3.0의 powder, 유기첨가제, pore들의 상대적인 체적 분율의 변화를 green body의 green density를 이용하여 측정한 경우 powder, 유기첨가제의 상대적 체적 분율은 일정하지만 porosity는 적층압력 증가에 따라

큰 변화없이 10 정도의 vol%를 갖고 있음을 알 수 있다. Powder의 전체 분율은 적층압력이 증가해도 큰 변화없이 55~60 vol%을 나타내었다. 소결한 시편에 대하여 bulk density을 측정하고, 이론밀도 3.2g/cm³에 대하여 측정된 밀도의 상대밀도를 측정하고, 소결된 시편의 closed pore와 open pore를 포함한 porosity 비율을 측정하였다. 이상의 결과로부터 powder 70 vol.%에서는 B/P 비변화와 무관하게 이론밀도에 근접한 소결밀도를 나타냄을 알 수 있었다.

제조한 sheet의 TG을 이용하여 중량감소 변화를 확인하였으며, DTA 열분석 결과를 통하여 유기물의 온도변화에 따른 거동을 확인하였다. B/P 비변화가 증가함에 따라 중량감소가 많아짐을 알 수 있는데 이는 이는 같은 organic 함량을 갖는다 할지라도 B/P 비가 증가함에 따라 분자량이 큰 유기바인더가 증가하므로 중량감소가 크게 된 것으로 판단된다. dupont 951 AT의 중량감소 곡선은 곡률이 여러 번 바뀌면서 중량감소가 일어나고 있음을 알 수 있는데 951AT 경우 이것은 본 실험의 formulation slurry 조성보다 훨씬 복잡한 binder system으로 sheet을 제작하였고 유기첨가제의 vol%가 상대적으로 적게 첨가되었음을 알 수 있다.

또한 유기물 조성의 변화에 따른 인장강도 거동과 그와 관련된 strain을 측정하였다. B/P 비의 비율이 증가함에 따라 인장강도가 증가하고 신율이 감소하는 경향을 나타내는데 이는 유연성을 증가시키는 Plasticizer의 양이 상대적으로 감소하기 때문이며 B/P=3.0에서는 인장강도가 우수한 stress-strain 곡선의 경향을 나타내고 있다.

4. 결론

1. Plasticizer/binder의 비를 변화하여 제조한 테이프의 경우 B/P의 비율이 증가함에 따라 인장강도가 증가하고 신율이 감소하는 경향을 나타내는데 이는 유연성을 증가시키는 가소제의 양이 상대적으로 감소하기 때문이며 기계적인 특성의 경우 B/P=3.0의 경우가 가장 우수한 특성을 나타내었고, 밀도, porosity 등의 경우는 B/P=2.5의 경우가 가장 우수한 것으로 나타났다.
2. Solid loading을 변화시킨 경우 분말 70 vol.%의 경우가 B/P비의 변화와 무관하게 이론 밀도에 근접한 소결밀도를 나타내었다.

참고 문헌

1. E. P. Hyatt, "Making Thin, Flat Ceramics: a Review," Am. Ceram. Soc. Bull., 65(4) pp.637-638 (1986)
2. R. E. Mistler, D. J. Shanefield and R. B. Runk, "Tape Casting of Ceramics," pp.411-448, in Ceramic Processing before Firing, Ed by G. Y. Onoda and L. L. Hench, Wiley, New York, 1978.
3. Ushifusa, N. and Cima, M. J., "Aqueous processing of Mullite-Containing Green Sheet," J. Am. Ceram. Soc., 76 (1993) 2443-2447.
4. Rodrigo Moreno, "The Role of Slip Additives in Tape Casting Technology:Part2-Binder

and Plasticizers", American Ceramic Society Bulletin, 71, no.11, nov (1992)

5. Robert A. Dimilia and James S. Reed. "Dependence of Compaction on the Glass Transition Temperature of the Binder Phase", Am. Ceram. Soc. Bull., 62[4] 484-488 (1983)

6. M. Descamps, G. Ringuet, D. Legerm, B. Thierry, "Tape-casting : Relation Between Organic Constituents and the Physical and Mechanical Properties of Tapes," Journal of European Ceramic Society 15 357-362 (1995)