

공통의 Glass를 이용한 LTCC 이종소재의 우수축 접합

장의경, 신호순, 여동훈, 김종희
 요업기술원 시스템모듈사업단

Bonding of Different Materials Using Common Glass in Zero Shrinkage LTCC

Ui-kyeong Jang, Hyo-soon Shin, Dong-hun Yeo, Jong-hee Kim
 System Module Group, Kor. Institute Ceramic, Engineering and Technology

Abstract : 공통의 glass를 이용한 LTCC 이종소재의 우수축 접합 가능성을 확인하기 위하여 2종의 상용 glass를 이용하여 소결온도를 변화시키면서 미세구조 및 결정구조, x-y축 방향의 수축율을 관찰하였다. 실험 결과 GA-12 glass는 강유전체 BaTiO₃와 glass의 composite개념을 이용한 접합에 적절하지 않은 것으로 판단되었으며, GA-1 glass의 경우는 750℃와 800℃ 사이에서 glass의 충분한 침투조건이 확인되며, 결정구조에서도 glass/BaTiO₃ composite이 형성되므로 layer간의 delamination은 발견되지만 x-y축 방향의 우수축 접합의 가능성이 확인되었다.

Key Words : LTCC, Glass Infiltration, 이종접합

1. 서론

Low Temperature Co-fired Ceramic(LTCC) 기술은 기존의 High Temperature Co-fired Ceramic(HTCC) 전극 재료가 갖는 높은 저항에 의한 도체 손실에 비하여 낮은 도체손실 및 낮은 유전체 손실 등의 특징을 가지고 있다. 최근 이동통신기술의 발달 및 시장 확대에 따라 이동통신 부품에의 적용 및 자동차 전장 등의 응용 등으로 그 적용범위를 넓히고 있으며 Embedded passive 에 대한 기술적 요구로 인하여 많은 연구와 관심이 모아지고 있는 분야이다.^[1]

상용의 glass를 이용한 LTCC 이종소재 접합에 관한 Shin^[2] 등의 연구결과는 GA-1 glass 와 GA-12 glass는 900℃ 조건에서 BaTiO₃와 반응하여 상변화가 일어나는 것을 보고한 바 있다. 그러나 900℃이하 저온에서 상변화 온도 영역에 대한 정확한 결과를 보고하지 못했다. 따라서 900℃ 이하온도에서의 x-y축 방향의 공통의 glass를 이용한 우수축 접합 가능성을 명확히 확인할 필요가 있다.

따라서 본 연구에서는 소결온도 변화에 따른 GA-1 glass와 GA-12 glass를 이용한 BaTiO₃ 와 Al₂O₃ Layer 우수축 접합에서 미세구조와, 결정구조, x-y축 방향의 수축율의 변화를 관찰하고 공통의 glass를 이용한 이종접합의 가능성을 확인하고자 한다.

2. 실험 방법

재료의 특성은 표1에 나타내었다. 각 파우더와 glass는 결합제와 가소제, 그리고 분산제를 혼합하고 24시간 밀링 하였다. 제조된 슬러리는 tape caster를 이용하여 성형속도 4m/min, 건조온도 80℃로 두께가 약 30μm인 균일한 green sheet를 제조하였다.

각각의 sheet는 laminator를 사용하여 열간 압착하였으며, 250bar로 isostatic press를 가하였고 15*15mm의 일정한 크기로 절단하였다. 제조된 sheet는 450℃에서 24시간 binder burn-out한 후 650℃, 700℃, 750℃, 800℃, 850℃

에서 각각 15분간 소결하였다. 소결한 시편은 소결전후의 x-y축 방향의 수축율을 비교하였고, FE-SEM(Field Emission Scanning Electron Microscope, JEOL, Japan)을 이용하여 접합유무와 미세구조를 확인하였다. 결정구조는 X-ray diffraction analyzer(M03XHF22, Mac Sci. Co. Ltd., Japan)를 이용하여 BaTiO₃상의 변화를 확인하였다.

표 1. 사용된 원료 분체 특성 및 Sheet 특성^[2]

Material	Company	Composition	Density (g/cm ³)	Particle Size(μm)	Tg (°C)	Relative Green Density(%)
GA-1	NEG	PbO-B ₂ O ₃ -SiO ₂	4.03	5.64	453	63.3
GA-12	NEG	Na ₂ O-ZnO-B ₂ O ₃	2.95	8.83	454	65.0
BaTiO ₃	Samsung Chemical	BaTiO ₃	6.01	0.35	-	61.0
Al ₂ O ₃	Sumitomo Chemical	Al ₂ O ₃	3.97	1.63	-	55.9

3. 결과 및 검토

그림 1.은 소결온도 변화에 따른 GA-1 glass를 이용한 BaTiO₃ 와 Al₂O₃ Layer 접합의 단면을 관찰한 SEM 사진이다. 그림 1. a)는 소결온도 650℃의 미세구조로 glass층이 그대로 남아있음을 확인할 수 있다. b)는 소결온도 700℃시편의 단면으로 glass가 침투하기 시작하는 온도로 보인다. 특히 Al₂O₃ Layer로의 침투는 침투Layer가 구분되게 나타나고 있다. 그림 c)는 소결온도 750℃로 BaTiO₃ 와 Al₂O₃ Layer 양쪽으로 침투가 일어난 구분된 층이 관찰되며 층간경계 부분을 확대한 그림에서 glass층과 glass/Al₂O₃ 및 glass/BaTiO₃ 복합체 층이 확연히 구분된다. 그림 d)는 소결온도 800℃의 경우 양쪽의 Layer로 glass의 침투가 거의 완전히 이루어 졌음을 확인할 수 있다. 그러나 층간에 접합이 완전히 일어나지 않고 delamination이 관찰된다. c)와 d)의 사진을 비교할 때 GA-1 glass의 경우 750℃와 800℃ 사이에서 최적의 glass 침투조건이 존재할 것으로 판단된다.

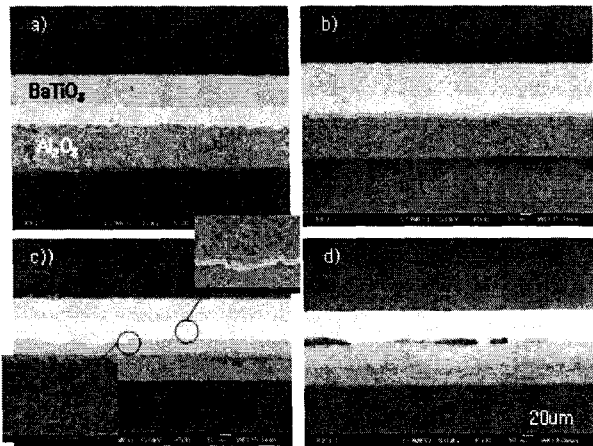


그림 1. 소결온도에 따른 GA-1 glass를 이용한 BaTiO₃ 와 Al₂O₃ Layer 접합면 미세구조
a)650°C, b)700°C, c)750°C, d)800°C.

그림 2는 소결온도 변화에 따른 GA-12 glass를 이용한 BaTiO₃ 와 Al₂O₃ Layer 접합의 단면을 관찰한 SEM 사진이다. 그림 2.a)는 소결온도 650°C로 glass의 침투가 GA-1 glass와는 달리 빠르게 진행되었음을 알 수 있다. 그리고 구형의 pore가 관찰됨으로서 이미 정도가 낮은 유리 용융층이 형성된 것으로 판단된다. b)는 소결온도 700°C의 경우로 glass의 침투가 거의 완료되고 delamination이 관찰된다. 이와 같은 경향은 c)에서도 비슷하며 800°C로 소결온도가 증가했으므로 잔존 glass가 전혀 관찰되지 않았다. 그러나 850°C의 경우인 d)에서는 800°C에서와는 달리 거의 완전하게 접합이 되었다. 접합부위를 확대하여 관찰한 결과 Al₂O₃ Layer는 glass와 복합체가 잘 형성된 것으로 보이지만 BaTiO₃ 층은 큰 grain이 관찰되면서 grain의 급격한 성장이 확인되었다. 이 미세구조로 볼 때 glass GA-12는 850°C조건에서 BaTiO₃와 반응하여 상이 변화했을 것으로 추측된다.

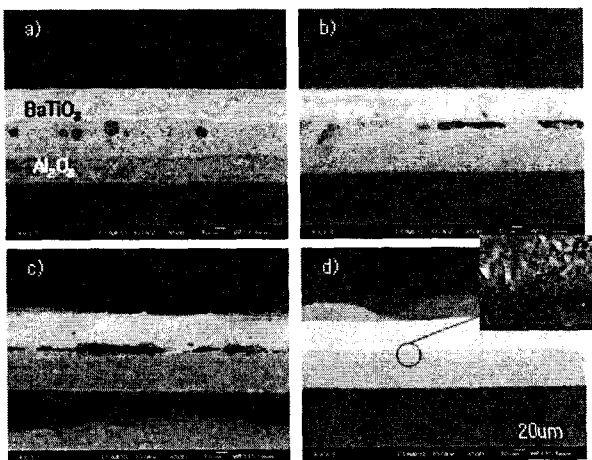


그림 2. 소결온도에 따른 GA-12 glass를 이용한 BaTiO₃ 와 Al₂O₃ Layer 접합면 미세구조
a)650°C, b)700°C, c)800°C, d)850°C

소결 온도와 GA-1 glass, GA-12 glass 조성 변화에 따른 BaTiO₃ Layer의 결정구조 변화를 그림 3에 나타내었

다. 그림에서 GA-1 glass의 경우인 a)는 700°C에서 BaTiO₃ 결정 피크와 glass의 혼합상이 관찰되고 800°C에서 다른 확인되지 않은 결정피크가 나타나고 성장한다. 또한 850°C에서도 glass의 잔존이 확인되고 있다. 그러나 GA-12 glass를 사용한 b)의 경우는 700°C에서 이미 BaTiO₃ 가 아닌 다른 결정상이 나타나고 750°C에서는 glass상도 관찰되나 800°C에서는 glass상의 존재가 확인되지 않고 다시 850°C에서 glass상이 나타나는 등 온도 변화에 따른 상생성의 변화가 크다. 그리고 800°C에서 이미 BaTiO₃ 결정상은 사라진다. 이결과는 그림 2의 BaTiO₃층 grain의 급격한 성장과도 잘 일치되는 현상이며 접합현상이 새롭게 생성되는 850°C glass상에 의한 영향일 가능성이 있음을 보여준다.

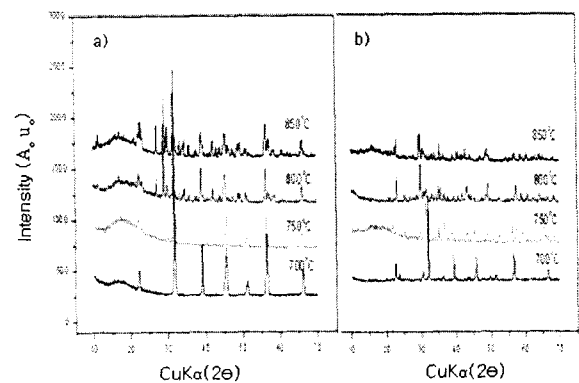


그림 3. 소결온도와 glass GA-1, glass GA-12 조성 변화에 따른 결정구조 변화 a)GA-1 b)GA-12

측정 가능한 샘플의 소결수축을 측정된 결과는 x-y축 방향으로 0.2%이하의 낮은 수축을 보였으며 미세구조 관찰과 결정구조분석 결과를 바탕으로 비교하면 GA-1 glass의 사용에서 BaTiO₃ 가 glass에 일부 용해되어 다른 상이 생성되지만 composite로의 접합이 가능한 후보가 될 수 있을 것으로 보인다.

4. 결론

무수축 이종접합의 가능성을 판단하기 위하여 소결온도를 변화시키면서 미세구조 및 결정구조를 관찰하였다.

GA-12 glass는 온도변화에 따른 상생성의 변화가 복잡하게 나타나 강유전체 BaTiO₃와 glass의 composite개념을 이용한 접합에 있어 적절하지 않은 것으로 판단된다. 반면 GA-1 glass의 경우 750°C와 800°C 사이에서 glass의 충분한 침투조건이 확인되며, 결정구조에서도 glass/BaTiO₃ composite이 형성됨으로서 x-y축 방향의 무수축 접합 가능성이 확인되었다.

참고 문헌

- [1] 문제도, "Zero Shrinkage LTCC 및 Embedded Passive 기술", 세라미스트지, 8권 3호
- [2] H. S. Shin, J. H. Wang and J. H. Kim "Glass infiltration in bonding of BaTiO₃ and Al₂O₃ Layers", Materials Science Forum, submitted