

알루미나를 첨가한 코디어라이트계 결정화 유리의 소결거동 및 결정화 특성

박정현 · 노재호 · 성재석* · 구기덕*

연세대학교 세라믹공학과

*전자부품종합기술연구소

(2998년 1월 13일 접수)

The Sintering Mechanism and Crystallization Characteristics of Alumina-filled Cordierite-type Glass-ceramics

Jeong-Hyun Park, Jae-Ho Roh, Jae-Suk Sung* and Ki-Duk Ku*

Dept. of Ceramic Eng., Yonsei Univ.

*Korea Electronics Technology Institute

(Received January 13, 1998)

요 약

코디어라이트계 결정화유리의 소결거동 및 결정화 특성을 알아보기 위하여 MgO-Al₂O₃-SiO₂계 유리분말과 알루미나 분말을 혼합하여 성형체를 제조하였고 이것을 여러 온도에서 열처리하여 물성을 측정, 분석하였다. 평균입경 8.27 μm의 유리 분말을 0~40 vol%의 알루미나 분말과 혼합한 후, 850~1350°C에서 3시간 열처리하였다. 주 소결 기구는 750°C부터 일어나는 액상의 재분배와 850~950°C 사이에서 일어나는 점성유동이었다. 이러한 소결기구는 알루미나와 유리분말의 혼합비, 결정상의 생성정도, 소결온도에 따라 큰 영향을 받았다. 유리분말과 알루미나 분말의 반응에 의한 제 2상은 발생하지 않았으며, 이를 X-선 회절분석 및 물성 측정에 의해 확인할 수 있었다. 제조된 복합체의 밀도는 2.30~3.26 g/cm³, 유전상수는 5.8~7.38, 절연저항은 1.23~4.70×10⁷ Ω·m이었다.

ABSTRACT

The MgO-Al₂O₃-SiO₂ system containing alumina powder was fabricated, sintered at various temperature and analyzed in order to study the sintering mechanism and crystallization characteristics. The specimen composed of glass powder with average particle size of 8.27 μm and 0~40 vol% alumina powder were sintered for 3 hrs at the temperature between 850°C and 1350°C. The sintering mechanism consists of the redistribution of particles occurring at 750°C and the viscous flow at 850~950°C. The degree of crystallization and sintering temperature were dependent upon the ratio of glass/alumina. The second phase from the reaction between glass and alumina was not observed, which was confirmed by XRD and properties analysis. The density, dielectric constant and specific resistivity of specimen were 2.30~3.26 g/cm³, 5.8~7.38 at 1 GHz and 1.23~4.70×10⁷ Ω·m respectively.

Key words : Cordierite, Glass-ceramics, Crystallization, Dielectric constant

1. 서 론

최근 정보화와 멀티미디어의 사회적 추세는 각종 정보화기기의 발전, 특히 이동 통신용 기기류의 급속한 보급을 가져왔고, 이에 따라 각종 이동 통신용 기기뿐 아니라 부품에 있어서도 연구개발이 매우 빠르게 진행되고 있다.^{1,2)}

전자기기의 디지털화, 고주파화, 소형 경량화가 진행

될수록 이에 수반된 전자부품의 고집적화, 경박단소화, 고기능화가 필수적이다. 이러한 경향에 따라 전자부품의 MCM(Multi-chip module)화, 표면실장(SMD: Surface mounting device)화가 빠르게 진행되고 있다. 부품을 MCM화 하기 위해서는 기판의 제조가 필수적이며, 최근의 고주파용 전자부품의 다양성에 부합하기 위해 glass-ceramics를 기반으로 한 저온소성기판(LTCC: Low-temperature cofired ceramic)이 기존의 알루미

나 기판을 대체하고 있다.^{3,4)}

저온소성기판은 몇 가지로 구분할 수 있는데, 유전율과 열팽창계수가 낮은 유리분말에 알루미나와 같은 세라믹스 분말을 혼합하여 유리기지내에 세라믹스가 충전제로 혼합된 기판, 결정화가 가능한 조성을 갖는 유리분말을 기판으로 성형한 후 열처리를 거치면서 결정화시켜 제조된 기판, 그리고 유리분말과 세라믹스 분말을 혼합하여 열처리과정을 거치면서 유리와 세라믹스가 반응하여 열팽창계수가 낮은 제 2의 결정상을 생성시켜 제조되는 기판 등이 있다.^{5,6)}

저온소성기판의 제조에 사용되는 유리와 세라믹 충전재에는 붕규산염 유리(borosilicate glass), 알루미나(alumina) 등 많은 종류가 있지만, 낮은 유전상수와 열팽창계수를 갖는 코디어라이트(cordierite)가 최근 기판의 재료로써 많이 연구되고 있다. 코디어라이트는 이와 같이 좋은 열적, 유전적 특성을 갖고 있는 반면, 유리 분말 제조시 용점이 매우 높고, 다른 유리분말과 비교해서 점도가 매우 높아 난소결성 재료로써 알려져 있다. 따라서 이를 기판재료로 사용하기 위해서는 소결특성 및 결정화 거동에 대한 고찰이 선행되어야 한다.^{7,9)}

본 연구는 코디어라이트계 유리의 소결거동과 결정화 경향을 고찰하는 것이 목적이다. 이를 위해 MgO-Al₂O₃-SiO₂계 유리를 제조하고, 이를 알루미나와 혼합 후 성형하여 복합체를 제조하고, 이를 여러 온도에서 열처리한 후, X선 회절 분석 및 주사 전자 현미경을 이용하여 소결 및 결정상을 분석하였고, 이것과 열적, 전기적 물성과의 관계를 고찰하였다.

2. 실험방법

2.1. 유리 분말의 제조

2.1.1. 출발물질

본 실험에 사용한 유리의 조성은 13.1 wt% MgO, 26.1 wt% Al₂O₃, 47.8 wt% SiO₂, 8.7 wt% B₂O₃, 4.3 wt% TiO₂로 하였다. 배치 조합은 조성에 맞도록 1급 시약용 MgCO₃(Yakuri pure chemicals co., Japan), SiO₂(Junsei chemical co., Japan), Al₂O₃(AES-11, Sumitomo, Japan), H₃BO₃(Duksan chemical co., Korea), TiO₂(Junsei chemical co., Japan)를 각각 칭량한 후 알루미나 불을 이용하고 에탄올을 용매로 사용하여, 폴리에틸렌 용기에서 24시간 불밀링하여 균일 혼합하였다. 혼합된 분말은 백금도가니를 이용하여 1550°C에서 2시간 동안 열처리하여 용융시킨 후, 서냉과정을 거쳐 유리를 제조하였다. 제조된 유리는 알루미나 유발을 이용하여 1차 분쇄한 후 체질하여 270 mesh와 325 mesh 사이에서 분급과정을 거쳐 약 50~40 μm 크기의 분말을 얻

은 후, 2차 분쇄 과정인 attrition 밀링을 3시간 동안 실시하였다.

2.1.2. 유리의 물성분석

용융된 유리를 흑연 몰드에 부은 후 약 670°C 부근에서 서냉과정을 거친 다음 TMA(TMA-50 Shimadzu, Japan)를 사용하여 전이점, 연화점 및 열팽창계수를 측정하였다. 결정화온도는 시차열 분석장치(TG-DTA 2000, Mac Science, Japan)를 이용하여 측정하였다. 유전상수는 RF impedance/material analyzer(HP 4291A, Hewlett Packard, U.S.A.)를 이용하여 1 GHz 범위에서 측정하였다.

2.2. 코디어라이트계 결정화 유리의 성형 및 열처리

2.2.1. 성형체 제조

유리분말의 충전재료는 알루미나 분말(ALM-43, Sumitomo, Japan)을 사용하였다. 유리분말과 알루미나 분말은 100:0에서 60:40까지 10 vol% 단위로 변화시켜 혼합하였다. 유리분말과 알루미나 분말의 혼합을 위해서 용매로 이소 프로필 알콜을 사용하였으며, 알루미나 불을 사용하여 폴리에틸렌 용기에서 2시간 습식밀링하였다. 혼합 후 건조된 분말을 각각 3 g씩 칭량하여 지름 15 mm인 원형몰드를 이용해서 80 kg/cm²의 일정한 압력으로 일축가압성형하였다.

2.2.2. 열처리

공기중 상압하에서 4°C/min의 승온속도로 열처리하였다. 온도범위는 850°C에서 1350°C까지 100°C 간격으로 열처리하였으며, 각각 최종온도에서 3시간씩 유지후로냉하였다.

2.3. 측정 및 분석

2.3.1. 입도 분석

출발원료인 유리 분말의 입도 분석을 위하여 입도분석기(PAR-III, Otsuka, Japan)를 사용하여 분말의 입자 크기를 분석하였다.

2.3.2. 수축률 측정

소결시 수축률 변화를 알아보기 위하여 각 온도에서 열처리 한 후, 원형시편의 지름을 버니어 캘리퍼스를 이용하여 측정하였다. 각 온도별로 5개씩의 시편을 측정한 후, 유사한 값의 평균값을 택하였다.

2.3.3. 밀도, 기공률 측정

성형체의 밀도는 부피와 질량을 측정하여 구하였고, 소결체의 밀도와 기공률은 KS L3114(내화벽돌의 기공률, 흡수율 및 비중측정 방법)에 준하여 측정하였다.

2.3.4. 열적, 전기적 특성 측정

소결체의 열팽창계수와 유전상수는 TMA와 impedance/material analyzer를 이용하여, 유리의 물성

측정과 동일하게 실시하였고, 절연저항은 시편양쪽에 Ag 페이스트를 코팅한 후, 500°C에서 열처리하여 Ohmic-contact을 형성하여 High resistance meter (HP 4339B, Hewlett Packard, U.S.A.)를 이용하여 전압 100 V, 전류 500 μ A에서 측정하였다.

2.3.5. 상변화 관찰

소결 후 상의 변화를 관찰하기 위하여 X선 회절 분석기(Rint-2000, Rigaku, Japan)를 이용하여 $9^\circ \leq 2\theta \leq 60^\circ$ 범위에서 scan speed는 $4^\circ/\text{min}$ 으로 분석하였다.

2.3.6. 미세구조 관찰

소결체의 파단면을 관찰하기 위하여 주사전자현미경(S-2700, Hitachi, Japan)을 사용하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 유리 분말의 제조

3.1.1. 모유리의 특성

본 실험에서 사용된 모유리의 $T_g(\eta=10^{13} \text{ dPa}\cdot\text{s})$ 는 757°C , $M_g(\eta=10^{11}\sim 10^{12} \text{ dPa}\cdot\text{s})$ 는 864°C , 결정화 온도는 920°C 이었다. 열팽창계수는 $4.54 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ 를 나타내었고, 유전상수는 1 GHz에서 약 5.75로 나타내었다. 본 실험에서 제조한 유리는 Si의 열팽창계수인 $3.0 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ 에 접근하며, 알루미늄 기판의 $7.2 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ 보다 우수한 특성을 보인다. 유전상수의 경우에도 회로기판의 빠른 신호전달을 위해서 연산속도가 고속화된 소자의 경우 유전상수가 낮을수록 유리하다.¹⁰⁾ 이러한 측면에서 본 실험에서 사용된 유리의 유전상수는 약 10 정도의 유전상수를 갖는 알루미늄 기판과 비교해서 우수하다고 볼 수 있다.

3.1.2. 유리분말의 입도 분석

본 실험에 사용된 유리 분말의 입도 분포는 Gaussian distribution을 나타냈으며, 평균 입경은 $8.27 \mu\text{m}$ 이었다. MacDowell 등¹¹⁾은 코디어라이트계 결정화유리를 제조할 경우, $1\sim 10 \mu\text{m}$ 정도의 입도가 되면 테입 캐스팅으로 성형하기 적당하다고 보고하고 있고, 입도가 큰 것을 사용하면 치밀화는 잘 이루어지지만, 결정화도가 낮고 입도가 작은 것을 사용하면 그 반대의 경우가 예상되므로, 본 실험에서는 평균 입경이 $10 \mu\text{m}$ 이하이고 입도 분포가 균일한 분말을 사용하였다.

3.2. 코디어라이트계 결정화 유리의 소결거동

3.2.1. 물성과 소결거동과의 관계

Fig. 1에 사용된 코디어라이트계 유리 and 알루미늄 분말을 혼합한 시편의 알루미늄의 첨가량에 따른 수축률의 변화를 나타내었다. 전이온도 부근인 약 750°C 부터 수축이 시작되었고, 첨가된 알루미늄의 양에 상관없이

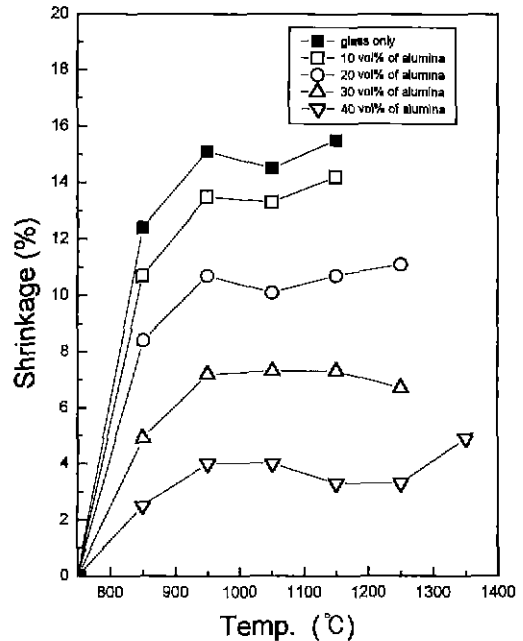


Fig. 1. Shrinkage behavior of alumina-filled cordierite-type glass at various alumina content as a function of sintering temperature.

수축 시작온도는 비슷하였다. 950°C 까지 수축이 계속되었고, 이후에는 수축률의 변화가 거의 없었다. 첨가된 알루미늄의 양이 각각 0, 10 vol%인 시편은 1250°C 에서 변형이 발생하였고, 20, 30 vol% 첨가된 시편은 1350°C 에서 변형이 발생하였다. 비반응성 액상소결(non-reactive liquid phase sintering)에서 유리의 점성 유동에 영향을 미치는 인자는 알루미늄과 유리의 혼합 비율, 입자크기, 온도의 변화 등이다. 수축 시작온도가 알루미늄의 양에 관계없이 거의 일정한 것은 소결의 초기단계가 액상의 재분배과정이기므로 유리 전이점 부근에서 액상의 재분배 과정이 시작되기 때문이다. 이후 950°C 이후에서 수축률이 일정한 것은 결정화가 시작되어 액상 내의 교상의 양이 증가하므로 액상의 점도가 높아져서 소결의 구동력이 감소하기 때문이다. 즉 알루미늄의 양이 많아질수록 점도가 증가하므로 액상의 유동성이 감소하여 소결의 구동력이 낮아지기 때문이다. 알루미늄을 40 vol% 첨가한 시편에서는 알루미늄과 결정상이 소결에 참여하기 시작되는 1250°C 이후에 다시 수축률이 증가하는 현상을 나타내었다. 알루미늄의 양이 40 vol%보다 낮은 시편에서는 연화점보다 소결온도가 훨씬 높아짐에 따라 액상의 유동성이 크므로 시편의 변형이 발생하였다.

Fig. 2에는 알루미늄 첨가량에 대한 시편의 밀도의 변화를 각 소결온도에서 나타낸 것이다. 성형체의 밀도는

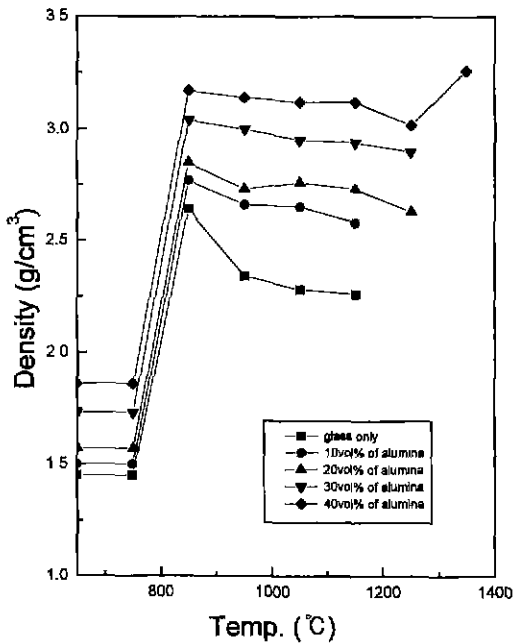


Fig. 2. Density variation of alumina-filled cordierite-type glass at various alumina content as a function of sintering temperature.

알루미나의 양이 증가할수록 증가하였는데, 이는 유리 와 알루미나의 밀도가 각각 2.67 g/cm³과 3.96 g/cm³이므로 밀도가 큰 알루미나의 양이 증가함에 따라서 성형 밀도가 증가하기 때문이다. 750°C에서 850°C 사이에서 급격한 밀도의 증가를 보였는데, 이것은 수축률이 이 온도 범위에서 급격히 증가한 것과 일치한다. 따라서 본 실험에서 사용되는 결정화 유리의 소결은 750°C에서 850°C 사이에서 이루어지고 있는 것으로 볼 수 있다. 수축률은 850°C에서 950°C 사이에서 증가하는데 비해서 밀도는 850°C와 950°C 사이에서 감소하는 현상을 보였다. 이러한 현상은 이 온도 범위에서 소결이 계속되는 동시에 코디어라이트의 결정화가 시작되기 때문이다. 코디어라이트의 밀도는 유리의 밀도보다 낮은 2.52 g/cm³이므로 코디어라이트 결정이 생기기 시작하는 950°C 이상의 온도에서 밀도는 감소하게 된다. 밀도의 감소는 알루미나의 양이 많을수록 적었다. 이것은 유리의 양이 많을수록 코디어라이트 결정의 양이 많이 생기기 때문이다. 40 vol%의 알루미나를 첨가한 시편에서 알루미나와 결정질이 소결에 참여하기 시작하는 1250°C 이상의 고온에서 밀도의 증가를 보이고, 이는 수축률이 증가되는 현상과 일치한다.

Fig. 3은 알루미나의 첨가량이 각각 0, 20, 40 vol%이고, 소결온도가 850°C인 시편의 미세구조 사진이다. (a)와 (b)의 경우처럼 알루미나의 양이 적은 시편에서는 유

리의 연화로 인한 유동성 증가로 인해 유리 입자 성장의 정도가 크지만, (c)의 경우 알루미나가 유리 입자 성장의 장애물로 작용하여 상대적으로 성장의 정도가 작았다. Fig. 4에 소결온도가 950°C인 시편의 알루미나 첨가량에 따른 미세구조의 변화를 나타내었다. Fig. 3에 비해서 액상의 소결의 상당히 진행되었으며, 입자의 재배열이 어느 정도 진행되었음을 알 수 있다. (a)의 경우 기공 사이에 플라이트의 결정상이 관찰되었다. 따라서, 소결은 850°C에서 950°C 사이에서 주로 일어나며, 950°C부터 결정상의 생성이 시작됨을 알 수 있다.

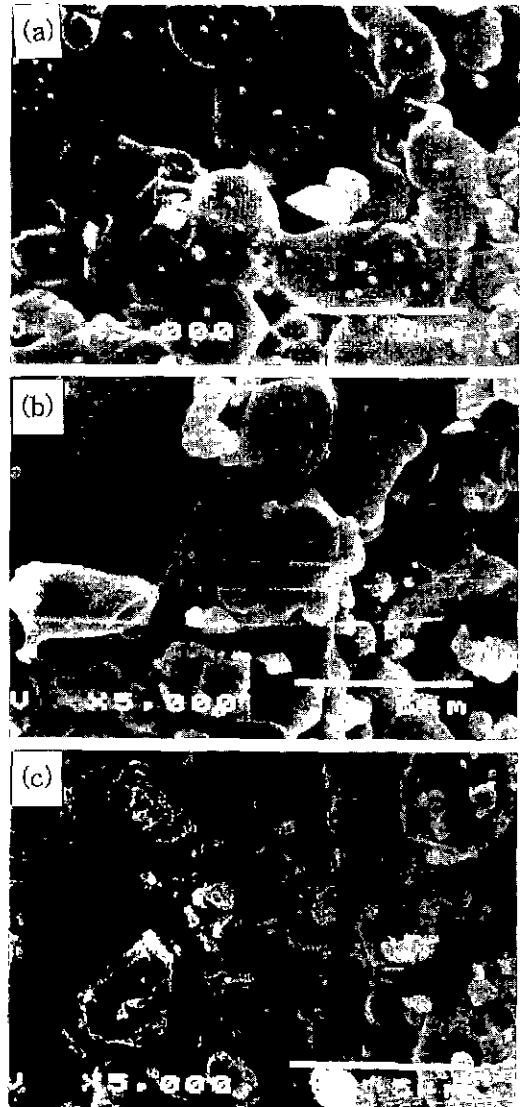


Fig. 3. Microstructural changes of cordierite-type glass at various alumina contents; (a) glass only, (b) 20 vol% and (c) 40 vol%.



Fig. 4. Microstructural changes of cordierite-type glass sintered at 950°C for 3 hrs at various alumina contents; (a) glass only, (b) 20 vol% and (c) 40 vol%.

Fig. 4(b), (c)의 경우 점성유동의 구동력이 충분하지 못하므로, 고립기공은 완전히 제거되지 못하였다. Fig. 1에서 볼 수 있듯이 수축률이 950°C부터 1150°C 사이에서 변화가 없으므로 미세구조의 뚜렷한 변화도 관찰되지 못하였고, 이 온도 영역에서 미세구조 사진을 생략하였다. Fig. 5에 변형되기 직전의 온도에서 소결한 시편의 미세구조의 변화를 나타내었다. (a), (b)의 경우 이전의 시편과 비교해서 미세구조의 변화가 관찰되지 않았다. (b)의 경우 기공 내에서 불라이트 결정상이 관찰되었다. 그러나, (c)의 경우 소결이 진행됨을 알 수 있다. 이것은

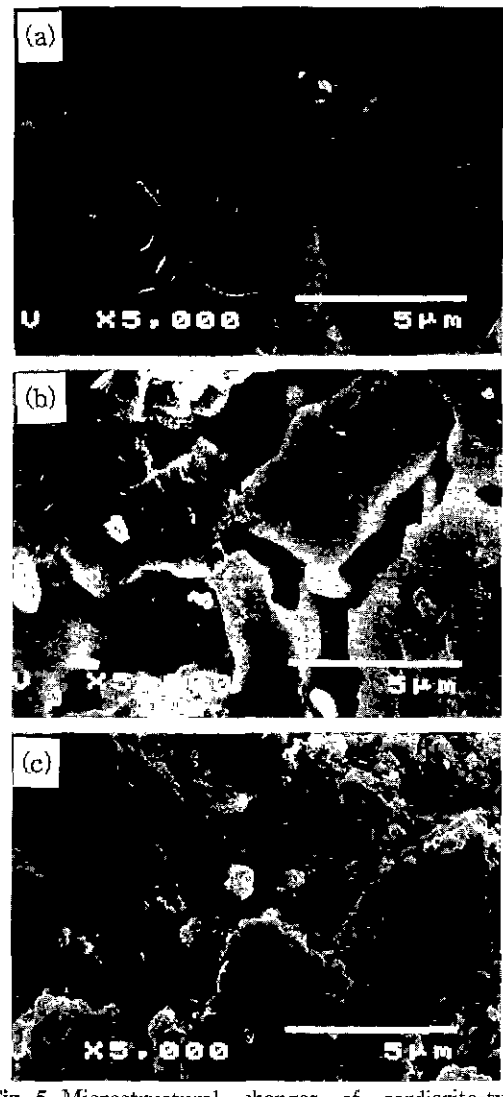


Fig. 5. Microstructural changes of cordierite-type glass as a function of sintering temperature and alumina contents; (a) glass only, (b) 20 vol% and (c) 40 vol%.

앞에서도 설명되었듯이 1350°C에서 알루미늄과 결정화된 코디어라이트의 소결이 시작되기 때문이다. 다른 시편들은 결정상이 소결되기 이전에 잔류 액상에 의해 변형이 발생하지만, (c)의 경우 알루미늄 분말의 양이 많기 때문에 시편의 변형 없이 소결이 진행할 수 있었다.

3.2.2. 물성과 결정화 거동과의 관계

Fig. 6에 알루미늄을 첨가하지 않은 시편의 소결온도에 대한 결정화 거동을 나타내었다. 850°C에서는 결정화 피크가 거의 나타나지 않았지만, 950°C에서 급격하게 결정화 피크가 증가하였다. 소결온도가 증가함에 따라

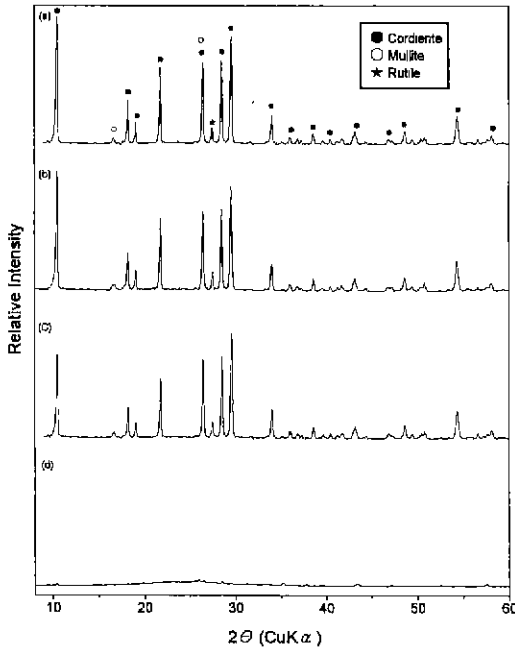


Fig. 6. Crystallization behavior of cordierite-type glass as a function of sintering temperature (glass only); (a) 1150°C, 3 hr, (b) 1050°C, 3 hr, (c) 950°C, 3 hr, (d) 850°C, 3 hr.

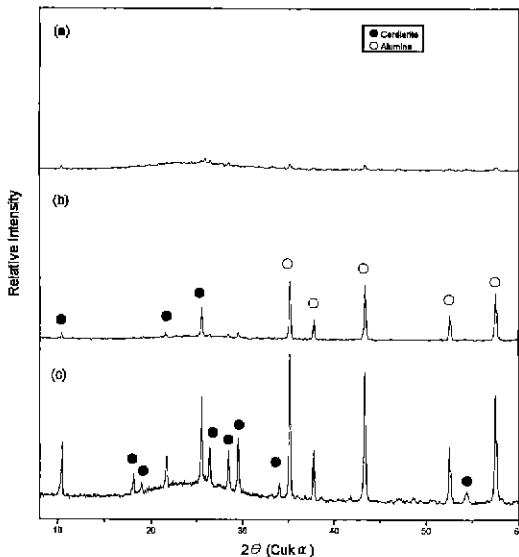


Fig. 7. Crystallization behavior of alumina-filled cordierite-type glass at various alumina content; (a) glass only, (b) alumina content: 20 vol% and (c) alumina content: 40 vol%.

결정화 피크도 증가하지만, 그 변화는 크지 않았다. 대부분이 코디어라이트 결정이었지만, 소량의 몰라이트

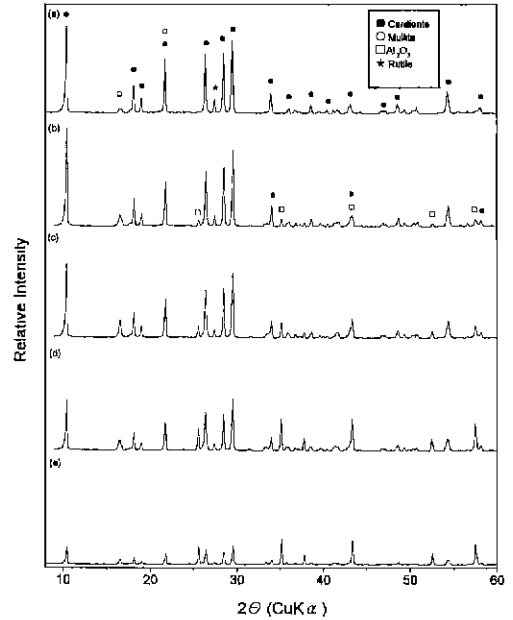


Fig. 8. Crystallization behavior of alumina-filled cordierite-type glass at various alumina content (sintering temperature: 1050°C); (a) glass only, (b) alumina content: 10 vol%, (c) alumina content: 20 vol%, (d) alumina content: 30 vol% and (e) alumina content: 40 vol%.

결정상도 관찰되었다. Fig. 7에 850°C에서 열처리한 시편의 알루미나의 양에 대한 결정화 거동을 나타내었다. 알루미나의 양이 증가할수록 코디어라이트 결정상 피크의 크기는 증가하였다. P. Amista²¹⁾에 의하면 코디어라이트계 결정화유리의 결정상은 화학양론적인 조성에서 과도하게 포함되어 있는 성분에 의존하며, 특히 알루미나의 양이 과도하면 코디어라이트 결정상의 생성온도가 낮아진다고 했다. 따라서 이번 실험에서 알루미나의 양이 증가할수록 코디어라이트 결정상의 생성온도가 낮아졌고, Fig. 7에서 이를 확인할 수 있었다. Fig. 8은 1050°C에서 열처리한 시편의 알루미나 양에 대한 결정화 거동을 나타낸 것이다. 알루미나의 양이 적을수록 코디어라이트 결정상의 피크는 증가하였다. 또한 알루미나 피크의 크기는 첨가된 알루미나의 양에 많을수록 증가하였다. 이것은 첨가된 알루미나가 코디어라이트계 유리의 결정화에 아무런 영향을 미치지 않았기 때문이다. Imanaka¹⁸⁾에 의하면 불규산염 유리 내에 Al³⁺ 이온을 함유한 Al₂O₃, AlN, 몰라이트와 같은 충전제를 첨가하면 충전제로부터 Al³⁺ 이온이 유리 내로 확산되어 들어가기 때문에 유리의 결정화가 방지된다고 했다. 그러나, 코디어라이트계 유리에서 알루미나는 결정화 방지에 어떤 영향을 미치지 못하는 것으로 생각된다. 이러한 알루미

나가 코디에라이트계 유리의 결정화에 미치는 영향을 자세히 알아보기 위해 각 소결온도에서 알루미늄의 양에 따른 결정화도를 알아보았다. 결정화도는 Ohlberg 등¹⁰⁾이 제안한 다음의 식을 사용하여 계산하였다.

$$\text{Percent Crystallinity} = 100 \frac{(I_g - I_x)}{I_g}$$

여기서, I_g : 일정각(2θ)에서의 모유리의 산란강도,
 I_x : 일정각에서의 결정화된 유리의 산란강도,
 I_0 : 모유리와 화학적으로 동일한 조성의 결정질 물질의 산란강도

Fig. 9에 계산된 결정화도를 나타내었다. 결정화도는 소결온도가 증가함에 따라서 증가하였으며, 850°C와 950°C 사이에서 가장 큰 증가를 보였는데 이것은 Fig. 6의 피크 증가와 일치하는 결과이다. 또한 Fig. 10에는 일정한 소결온도에서 알루미늄의 양에 대한 결정화도를 나타내었다. 결정화도는 알루미늄의 양에 상관없이 거의 일정하였다. 이것으로 보아 알루미늄의 양은 코디에라이트계 결정화 유리의 결정에 영향을 미치는 인자로 볼 수 없다.

Fig. 11에는 변형이 일어나지 않는 최고 온도에서 소결한 소결체의 알루미늄의 양에 대한 열팽창계수와 유전상수의 변화를 나타내었다. 알루미늄의 양의 증가함에 따라서 열팽창계수가 직선적으로 증가함을 알 수 있

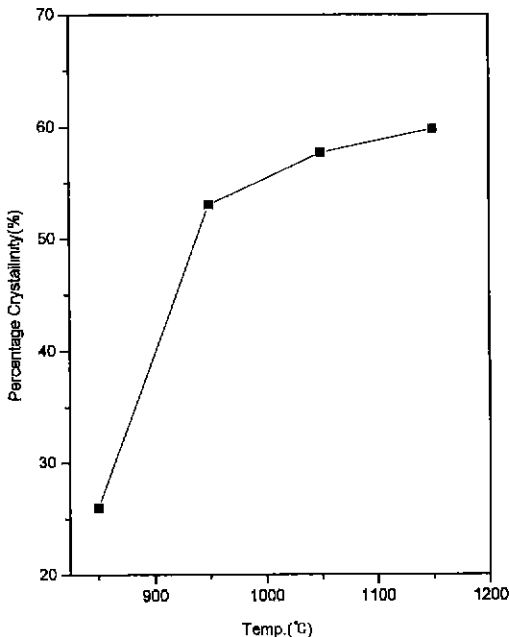


Fig. 9. Percentage crystallinity of alumina-filled cordierite-type glass as a function of sintering temperature.

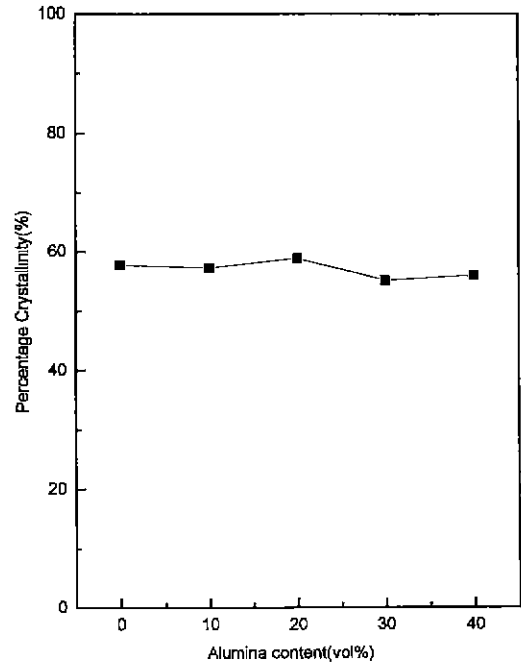


Fig. 10. Percentage crystallinity of alumina-filled cordierite-type glass sintered at 1050°C at various alumina content.

다. 열팽창계수가 직선적으로 변했다는 것은 유리와 알루미늄이 서로 반응해서 제 2상을 생성하지 않고, 코디에라이트와 알루미늄이 균일하게 혼합되어 있는 복합체

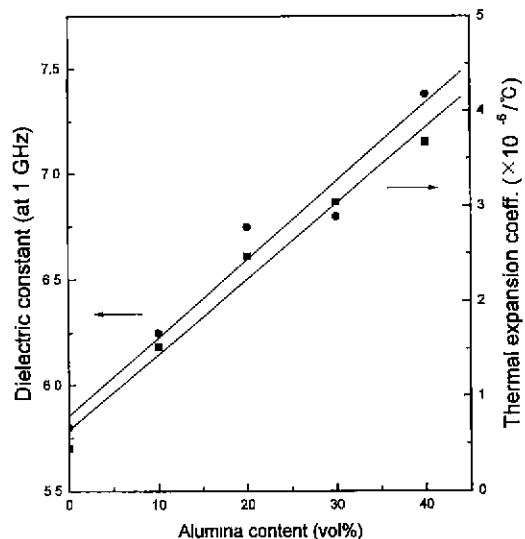


Fig. 11. Dielectric constant & Thermal expansion coefficient of alumina-filled cordierite-type glass at various alumina content.

로서 생각할 수 있다. 유전상수의 경우 소결체에는 기공이 포함되어 있고 소결온도마다 기공율도 모두 다르므로 다음의 식²⁰⁾을 사용하여 시편의 기공율이 0일 때로 보정하여 나타내었다.

$$\kappa' = \frac{v_m \kappa_m' + v_p \kappa_p'}{v_m \left(\frac{2}{3} + \frac{\kappa_p'}{3\kappa_m'} \right) + v_p}$$

여기서, κ' : 유전상수,

κ_m' : 기지(matrix)의 유전상수,

κ_p' : 기공의 유전상수,

v_m : 기지의 부피분율,

v_p : 기공의 부피분율

유전상수도 열팽창계수와 마찬가지로 알루미나의 양에 대해 직선적으로 변화하였으며, 결정화거동에 있어서 앞에서의 결과와 일치함을 알 수 있다.

4. 결 론

코디어라이트계 유리에 알루미나를 충전재로 첨가한 재료의 소결거동, 결정화거동, 물성의 변화를 연구한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 850°C와 950°C 사이에서 코디어라이트 결정상이 생기기 시작하였으며, 결정화도는 알루미나의 양에 관계없이 일정하였다.

2. 코디어라이트계 결정화 유리에 첨가하는 알루미나의 양을 조절함으로써 유전상수, 밀도, 열팽창계수 등의 물성을 제어할 수 있었다.

3. 열팽창계수와 유전상수는 알루미나의 양에 비례해서 직선적으로 증가하였고, 이것은 유리화 알루미나의 반응에 의한 제 2상의 형성없이 복합체를 이루기 때문이며, 이는 X-선 회절 분석결과로도 확인할 수 있었다.

4. 알루미나의 양이 증가함에 따라 코디어라이트 결정상의 생성온도가 낮아졌으며, 이는 코디어라이트의 화학양론조성보다 과도하게 포함되어있는 알루미나가 코디어라이트 결정상의 생성온도를 낮춘다는 기존의 연구 결과와 일치한다.

REFERENCES

1. M. Kato and S. Nishigaki, "Application of Low Temperature Fired Multilayered Substrates of High Frequency," ISHM'92 Proceedings, 263-268 (1992).
2. B. Schwarz, "Review of Multilayer Ceramics for Mi-

- croelectronic Package," *J. Phys. Chem. Solids*, **45**(10), 1051-1068 (1984).
3. Minoru Takaya, Y. Mochizuki, A. Nakano and H. Kobuke, "Development of Miniaturized DC-DC Converter with Multilayer Ceramic Transformer." ISHM '92 Proceedings, 269-274 (1992).
4. Daniel I. Amey, "Overview of MCM Technologies; MCM-C," ISHM'92 Proceedings, 225-234 (1992).
5. K. Kondo, M. Okuyama and Y. Shibata, "Low Firing Temperature Ceramic Material for Multilayer Ceramic Substrates," pp. 77-87, *Advances in Ceramics*, vol. 19. Edited by J. B. Blum and W. R. Cannon, American Ceramic Society, Westerville, OH, 1986.
6. K. Watanabe, "Coalescence and Crystallization in Powdered High-Cordierite Glass," *J. Am. Ceram. Soc.*, **68**(4), 102-103 (1985).
7. Sarah H. Knickerbocker, Ananda H. Kumar and L. Wynn Herron, "Cordierite Glass-Ceramics for Multilayer Ceramic Packaging," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **72**(1), 90-95 (1993).
8. R. M. Anderson, R. Gerhardt, J. B. Wachtman, Jr., D. Onn and S. Beecher, "Thermal, Mechanical and Dielectric Properties of Mullite-Cordierite Composites," pp. 265-278, *Advances in Ceramics*, Vol. 26, Edited by Man F. Yan, Koichi Niwa, Henry M. O'Bryan, Jr. and Wayne S. Young J. B. Blum, American Ceramic Society, Westerville, OH, 1989.
9. H. Emura, K. Onituka and H. Maruyama, "Multilayered Ceramic Substrate with Low Dielectric Constants," pp. 375-386, *Advances in Ceramics*, Vol. 26, Edited by Man F. Yan, Koichi Niwa, Henry M. O'Bryan, Jr. and Wayne S. Young J. B. Blum, American Ceramic Society, Westerville, OH, 1989.
10. R. R. Tummala, "Ceramic and Glass Ceramic Packaging in the 1990's," *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**(5), 895-908 (1991).
11. J. F. MacDowell and G. H. Beal, "Low K Glass-ceramics for Microelectronic Packaging," *Ceramic Transactions*, **15**, 133-151 (1990).
12. R. M. German, *Liquid Phase Sintering*, Plenum Press, New York, 1985.
13. K. G. Ewsuk, L. W. Harrison and F. J. Walczak, "Sintering Glass-Filled Ceramic Composite; Effects of Glass Properties," *Ceramic Transactions*, **1**(B), 969-977 (1988).
14. D. Danstan and L. R. White, "A Capillary Pressure Method for Measurement of Contact Angle in Powder and Porous Media," *J. Colloid and Interface Sci.*, **11**(1), 60-64 (1986).
15. K. A. Scmalak and F. N. Rhines, "The Rate of Infiltration of Metals," *Trans. Metall. Soc. AIME*, **212**(6), 325-331 (1958).
16. R. F. Fedor, "Relationships Between Viscosity and Concentration for Newtonian Suspensions," *J. Colloid and Interface Sci.*, **40**(3), 545-547 (1974).
17. I. B. Cutler, "Sintering of Glass Powders During Con-

- stant Rates of Heating., *J. Am. Ceram. Soc.*, **52**(1), 14-17 (1969).
18. Y. Imanaka, S. Aoki, N. Knchara and K. Niwa, "Crystallization of Low Temperature Fired Glass/Ceramic Composite," *Yogyo-Kyokai-shi*, **95**(11), 77-79 (1987).
19. S. M. Ohlberg and D. W. Strickler, "Determination of Percent Crystallinity of Partly Devitrified Glass by X-ray Diffraction," *J. Am. Ceram. Soc.*, **45**(4), 170 (1962).
20. W. D. Kingery, H. K. Bowen and D. R. Uhlmann, *Introduction to Ceramics*, 2nd ed., Wiley, New York, 1976.
21. P. Amista, M. Cesari, A. Montenero, G. Gnappi and Luo Lan, "Crystallization behaviour in the system MgO-Al₂O₃-SiO₂," *J. Non-Crystalline Solids*, **193**(12), 529-533 (1995).