

## Acrylate를 결합제로 사용한 수계 테이프 캐스팅에서 알루미나 슬러리의 분산 및 점성 특성

조유정<sup>†\*\*\*</sup> · 박일석<sup>\*\*\*</sup> · 문주호\* · 김대준\*\*

\*연세대학교 세라믹공학과

\*\*한국과학기술연구원 복합기능세라믹스연구센터  
(2001년 10월 19일 접수; 2001년 11월 26일 승인)<sup>††</sup>

## Dispersion and Rheological Characteristics of Alumina Slurries in Aqueous Tape-casting Using Acrylate Binder

Yu-Jeong Cho<sup>†\*\*\*</sup>, Il-Seok Park<sup>\*\*\*</sup>, Joo-Ho Moon\* and Dae-Joon Kim\*\*

\*Department of Ceramic Engineering, Yonsei University, Seoul 120-749, Korea

\*\*Multifunctional Ceramics Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791, Korea

(Received October 19, 2001; Accepted November 26, 2001)<sup>††</sup>

### 초 록

Acrylate 수계 결합제를 사용한 알루미나 테이프 캐스팅용 슬러리의 완전분산을 위한 최적의 분산제와 분산제량을 결정하기 위해 침강실험, 분말 함유량 실험, 점도 및 zeta 전위 측정을 행하였다. 알루미나 슬러리의 완전분산은 분산제를 polycarboxylic acid로 했을 때 얻어졌으며, 최적의 첨가량은 알루미나 100에 대하여 0.23~0.24 g이었다. 분말에 대한 분산제량이 증가할수록 분산은 잘 이루어졌으나, 일정량 이상이 첨가되면 분산제가 용매 안에 과잉으로 존재하여 분산을 저해하는 요인으로 작용하였다. 테이프 캐스팅용 슬러리는 100 g의 알루미나 분말에 0.2 g의 polycarboxylic acid를 첨가하였을 때 분산 및 테이프 특성이 가장 우수하였고, 이 때 혼합한 결합제는 acrylate였고, 가소제는 Benzoflex를 사용하였다. 이 때 슬러리 최적 점도는 약 570 cps였고, 테이프 내 알루미나 량은 57 vol%이었다.

### ABSTRACT

Measurements of sedimentation, solid loading, zeta potential, and viscosity were employed to determine a proper dispersant and its amount for a well dispersed alumina powders in aqueous alumina tape casting using acrylate as a binder. Polycarboxylic acid was the most effective one among various dispersants considered in the present study and its amount was 0.23~0.24 g per 100 g alumina for a dispersion. Better dispersion was obtained as an increase of dispersant addition. However, the dispersion was hindered as the amount of dispersant was higher than the optimum amount because of bridging or tangling of polymer chains. Excellent aqueous alumina tapes were prepared from the slurry containing the optimum amount of the polycarboxylic acid (0.2 g), alumina powders(100 g), acrylate and Benzoflex as binder and plasticizer, respectively. The viscosity of the slurry was 570 cps and the alumina loading in the tape was 57 vol%.

**Key words :** Dispersion, Dispersant, Water-based tape casting, Alumina

### 1. 서 론

테이프 캐스팅을 비롯하여 슬립 캐스팅, 분무건조등의 세라믹 공정은 성형체 물성의 최적화를 위해서 액상 매체에 세라믹 분말들의 적절한 분산을 요구한다. 이는 세라믹 공정시 분말의 높은 비표면적과 반데르발스 인력, 브라운 운동(Brownian motion)으로 인한 충돌로 인하여, 슬러리 내에서 입자들의 자발적인 응집이 일어나 성형체 내 결합의 원

인이 되기 때문에, 성형의 최적화를 위해서는 이러한 응집이 일어나지 않도록 슬러리의 균일한 분산이 선행되어야 한다.<sup>1-4)</sup> 세라믹 분말 슬러리의 분산은 응집된 입자의 표면전위를 변화시키거나, 입자를 분산매체에서 안정화시킬 수 있는 분산제를 첨가하여 정전기적 반발(electrostatic repulsion) 혹은 입체안정화(steric stabilization) 기구를 부여함으로써 조절할 수 있다.<sup>5-8)</sup> 특히 환경 친화적인 물용매를 사용하는 공정에서는 전위결정이온 즉 H<sup>+</sup>와 OH<sup>-</sup>의 농도 또는 다원자가 이온, 혹은 수용성 고분자 전해질 등을 첨가함으로써 표면전위를 조절할 수 있다.<sup>8-11)</sup> 특히 수 마이크로에서 수백 마이크로 두께의 2차원적인 세라믹스 제조에 적합한 테이프

<sup>†</sup>Corresponding author : blue4626@dreamwiz.com

<sup>††</sup>This paper was accepted as an on-site paper at the submitted 2001 fall technical meeting of the Korean Ceramic Society.

캐스팅<sup>12,13</sup>)에서 고품질의 세라믹 테이프를 제조하기 위해서는 완전분산 뿐만 아니라, 테이프 내 세라믹 분말의 함유량이 높은 것이 바람직하다.<sup>5,6,13-15</sup> 이는 세라믹 슬러리에 첨가되는 용매 및 유기 첨가제량의 최소화를 의미한다.

테이프 캐스팅용 슬러리의 점도가 높으면 테이프의 두께 조절이 어려울 뿐만 아니라 탈포공정에서 탈포 및 교반에서의 문제가 발생한다. 한편 슬러리의 점도가 낮으면 탈포 공정에서 많은 시간을 필요로 하고, 일정 두께의 그린쉬트 제조가 어려우며 테이프의 균열, 휨 등 결함의 원인이 된다.<sup>16</sup> 따라서 테이프 캐스팅에서 요구되는 점도를 얻기 위해서는 용매와 분산제의 상호작용에 관한 연구가 필요하다. 일반적으로 알루미늄을 사용한 수계 테이프 캐스팅 슬러리에 분산제로는 Darvan C,<sup>7</sup> polyacrylic ammonium,<sup>15</sup> polyacrylic acid(PAA),<sup>13,17</sup> PMMA,<sup>13,17-19</sup> Duramax D-3021 and D-1035<sup>13</sup>) 등이 사용되고 있으며, 이들 분산제들이 사용된 슬러리의 물성에 관한 많은 보고가 있었다. 그럼에도 불구하고 수계 세라믹 테이프 캐스팅에 요구되는 점도에 적합한 분산제 선택을 위한 기초적이면서도 체계적인 연구는 보고되어 있지 않다.

본 연구에서는 테이프에 강도를 부여하며 소결 후 잔유물이 거의 남지 않는 acrylate계 결합제를 사용한 수계 알루미늄 슬러리를 제조하는데 있어서, 상용화되고 있는 polycarboxylic acid, Duramax D-3005, Disperbyk 190, Disperbyk 192, polymethylmethacrylate(PMMA) 등의 분산제들의 첨가가 알루미늄 입자의 분산 및 점도 특성에 미치는 영향을 관찰하였다.

## 2. 실험방법

알루미늄 분말은 평균입경이 3  $\mu\text{m}$ 이고, 순도 99.9%의 Al-M43(Sumitomo, Japan)을 사용하였고, 용매로는 증류수를 사용하였다. 분산제로는 상용화되고 있는 ammonium polyacrylate salt 계열의 Duramax D-3005(Rohm and Haas, U.S.A.)와 polycarboxylic acid, Disperbyk 190, Disperbyk 192(BYK-Chemie, U.S.A.), 그리고 polymethyl methacrylate(Junsei, Japan)를 사용하였다. 결합제로는 acrylate 계열의 AS50B(Okong, Korea)를, 가소제로는 Benzoflex 50(Velsicol Chemical Corp. U.S.A.)를 각각 사용하였다. pH 조절제로는 0.01 M KOH와 0.01 M HNO<sub>3</sub>를 사용하였다. 각 분산제의 분산특성은 침전실험, 분산된 알루미늄 분말량의 변화, 점도 측정 그리고 zeta 전위 변화들을 관찰하여 결정하였다. 각 분산실험에 사용된 슬러리 조성을 Table 1에 요약하였다.

침전실험에 있어서는 Mistler와 Twiname<sup>21</sup>)에 의해 추천된 방법을 따랐다. 즉 알루미늄 분말 100 g과 증류수 200 g에 Duramax D-3005, polycarboxylic acid, Disperbyk 190, Disperbyk 192, polymethyl methacrylate 각각을 0, 0.5,

**Table 1.** Amount of Starting Materials for Different Dispersion Tests

Test	Powder (g)	Solvent (g)	Dispersant (g)
Sedimentation	100	200	0~2.5
Solid loading	61.69~113.43	19	0.1~0.4
Viscosity	100	19	0.2~1.0
Zeta potential	100	19	0.1~0.4

1.0, 1.5, 2.0, 2.5 g씩 첨가시켜 4시간 ball milling 하였다. 분산된 슬러리들을 25 ml 실린더에 채운 후 밀봉시키고 7일 동안 방치시킨 후 침전물의 높이를 측정하였다.

최적 분산제 양을 결정하기 위해 알루미늄 양을 일반적인 알루미늄 세라믹 테이프 제조에 적용되는 범위인 45~60 vol% 내<sup>6,16</sup>)에서 변화시켜 실험하였다. 분산제량을 0.1, 0.2, 0.3, 0.4 g씩 각각 고정시키고 알루미늄 첨가량 변화에 따른 점도의 변화를 관찰하여 최적의 분산제와 분산제량을 결정하였다.

분산제 종류 및 양에 따른 점도의 변화는 일반적인 알루미늄 세라믹 테이프 제조용 슬러리의 분말 함유량인 57 vol%, 즉 알루미늄 분말 100 g에 19 g의 증류수가 혼합된 슬러리로부터 측정하였다. 각각의 분산제를 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0 g씩 첨가시켜 3시간 ball milling한 후 회전형 점도계(Brookfield, U.S.A.)를 사용하여 점성 거동을 관찰하였다.

Zeta 전위측정을 위하여 Zetameter(Brookhaven, U.S.A.)를 이용하여, 알루미늄 57 vol%에 대하여 분산제 첨가량을 0.1, 0.2, 0.3, 0.4 g으로 변화시킨 슬러리를 준비하였다. 각각에 대해 KOH와 HNO<sub>3</sub>를 사용하여, pH 1부터 12 범위에서의 zeta 전위를 측정하였다. 또한 가소제와 결합제를 첨가시켜 유기물 첨가제가 zeta 전위에 미치는 영향을 관찰하였다.

## 3. 결과 및 고찰

분산된 세라믹 분말의 안정성은 침강높이, 분말 함유량, 점도, zeta 전위등의 변화를 관찰함으로써 알 수 있다.<sup>1)</sup> 이들 방법 중 가장 일반적으로 분산제 첨가량에 따른 침강높이를 측정하는데 이는 분산이 잘될수록 침강된 입자들의 총 전밀도가 높아 침강 높이가 낮아지는데 기인한다.<sup>20)</sup> Fig. 1은 분산제의 종류와 양의 변화에 따른 침전물의 높이를 보여준다. 분산제의 양을 0, 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5 g으로 고정했을 때, polycarboxylic acid 분산제의 경우에는 8시간 후에 침전이 완료되었고, Duramax D-3005의 경우는 20시간 후에 침강높이가 거의 일정해져, 4-5일 후에는 침전이 완료되었다. Disperbyk 190의 경우는 7시간 후 거의 완료되어 48시간 후, Disperbyk 192는 4시간, PMMA의 경우에는 5시간 후 각각 침전이 완료되었다. Polycarboxylic acid 분산제의 경우 0.5 g을 넣었을 경우 침강높이가 가장

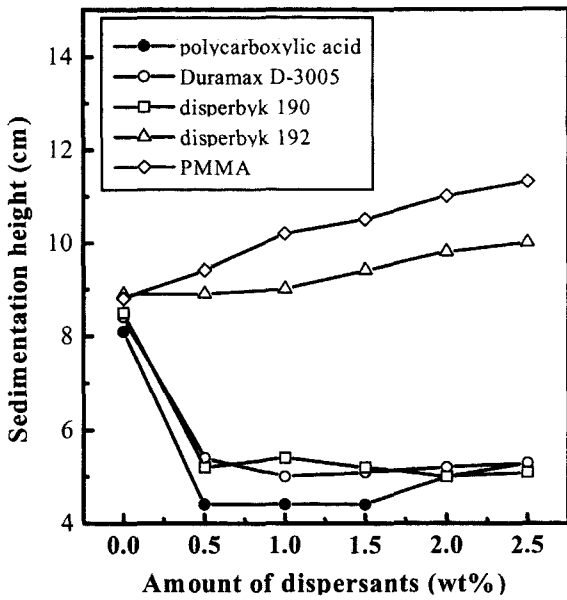


Fig. 1. Sedimentation height of suspensions as a function of amount of dispersants after settling for 7 days.

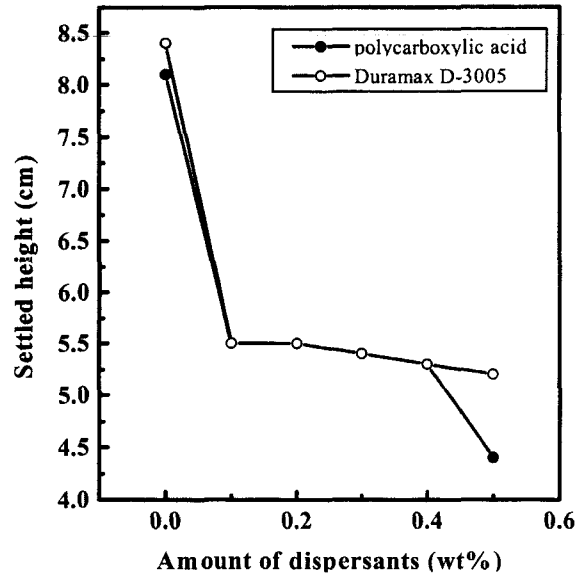


Fig. 2. Sedimentation height of suspensions as a function of amounts of polycarboxylic acid and Duramax D-3005.

낮았고, 첨가량이 1.5 g으로 증가해도 침강높이는 변화가 없다가 그 이상 첨가함에 따라 침강높이가 약간 올라갔다. Duramax D-3005의 경우는 1.0 g 첨가시에 침강높이가 최저가 되었으며 그 이상 첨가해도 침강높이는 변하지 않았다. Disperbyk 190는 polycarboxylic acid와 같이 0.5 g 첨가에서 최소 침강높이를 보였으나 침강높이는 polycarboxylic acid 첨가에 비해 높아서, 분산효과가 떨어진다고 볼 수 있다. 이와 반대로 Disperbyk 192와 PMMA의 첨가는 침강높이를 증가시켜, 분산에 도움이 되지 않았다.

일반적으로 분산제는 입자의 표면에 고분자 전해물을 흡착시켜 분산상태를 안정화시켜주기 때문에, 분산제가 적절하게 흡착되어야 분산이 잘 되고, 분산상태가 안정하게 유지되면 침전되는 속도는 느려져 침전물의 충전밀도가 높아지기 때문에 침전 높이는 낮아지게 된다고 알려져 있다.<sup>1,3)</sup> 일반적으로 분산제의 첨가량이 증가할수록 분산이 잘 되어 침전 높이는 낮아지게 되지만,<sup>21)</sup> 적정량 이상의 분산제가 첨가되면, 입자들의 ionic strength가 증가하게 되어 오히려 분산효과를 감소시키기 때문에 Fig. 1에서의 PMMA와 disperbyk 192와 같이 침전 높이가 감소하다가 다시 증가하게 된다. 따라서 분산제의 첨가량을 최소화시켜 입자 표면의 monolayer에 해당하는 양만을 흡착시키는 것이 중요하다.<sup>1)</sup> 즉 같은 양의 슬러리에 대해 분산제 첨가량이 적으면서 침전높이가 낮을수록 분산효과가 좋다고 말할 수 있다. 분산제의 첨가량이 증가할수록 침강높이가 증가하는 disperbyk 192와 PMMA는 알루미늄의 분산에 적합하지 않는 분산제이며, 침강높이가 가장 낮고 분산 안정화 유지시간이 길었던 polycarboxylic acid가 알루미늄 분말의 분산에 효과적으

로 작용함을 알 수 있다. Greenwood 등<sup>13,17-19)</sup>은 일반적인 알루미늄 슬러리에 PMMA가 효과적으로 작용하였다고 하였으나, 본 실험결과 polycarboxylic acid나 Duramax D-3005가 더 효과적임을 알 수 있었다. 또한 슬러리에 유기물 분산제의 첨가량이 적을수록 소결 후, 미세 기공 분포가 적어지고 기공 크기도 작아져 소결밀도는 증가할 것으로 예상할 수 있다.

Polycarboxylic acid와 Duramax D-3005의 경우 모두 분산제를 전혀 첨가시키지 않았을 때에 비하여 0.5 g의 분산제 첨가 시 침전높이에 급격한 차이를 보여, 0.5 g 이하 범위의 첨가량에 대해 침전 높이 변화를 추가로 측정하였고, 그 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 분산제량을 0.1 g씩 증가시키면서 측정된 결과 polycarboxylic acid의 경우 분산제를 0.1 g 간격으로 0.1 g에서 0.4 g까지 첨가시켰을 때, 침강높이가 5.5에서 5.2 cm로 서서히 감소하다가 0.5 g을 첨가시켰을 때 4.4 cm로 가장 낮아진 반면, Duramax D-3005의 경우는 0.5 g까지 5.5에서 5.2 cm로 서서히 감소하였다. 이 높이는 1.0 g을 첨가시킬 때의 5 cm 보다 높아 Duramax D-3005의 최적 분산제량은 1.0 g임을 알 수 있다. Figs. 1과 2에서 보는바와 같이 침강 실험에서는 분산안정화 유지 시간도 길고, 침전 높이가 가장 낮은 polycarboxylic acid 분산제의 분산효능이 가장 우수함을 알 수 있었다. 그러나 이 방법은 입자의 크기가 5 μm 이상인 분말에는 효과적이지만, 1 μm 이하의 아주 미세한 분말의 경우에는 분산이 잘 될수록 침전이 느리고 침강 높이도 높아지기 때문에 침강시험만으로 분산효능을 판단하기에는 어려움이 있다.<sup>1)</sup> 따라서 이 방법보다 더 정확하게 슬러리의 분산정도를 알 수 있는 분말 함유량에 따른 점도의 변화를 관찰하였다.

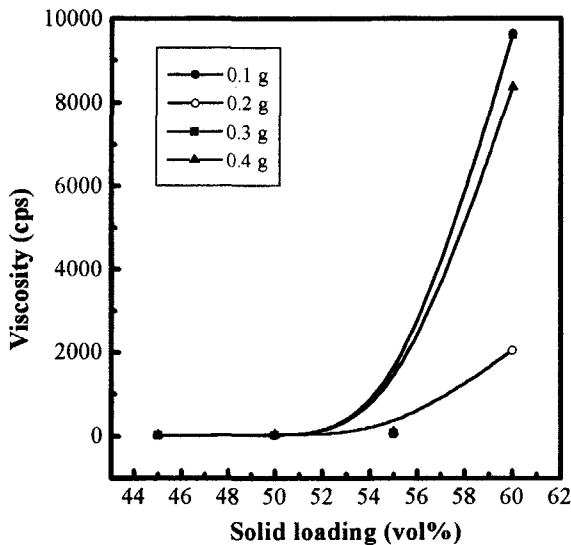


Fig. 3. Variation of viscosity of alumina slurries containing polycarboxylic acid dispersant with increasing alumina powder content in the slurries.

Fig. 3은 침강 실험결과로부터 소량으로도 분산효과가 우수했던 polycarboxylic acid를 0.1에서 0.4 g까지 첨가한 슬러리에 알루미나 함량을 증가시키기에 따라 각 슬러리의 점도 특성 변화를 측정된 결과이다. 분산제 0.1 g이 첨가된 슬러리의 경우 슬러리 내 알루미나 함유량이 52 vol%가 되자 점도가 급격히 상승하였다. 첨가량이 0.2 g으로 증가하자 알루미나 함유량이 54 vol%부터 점도가 서서히 증가하였다. 그러나 첨가량이 0.3, 0.4 g으로 늘어감에 따라 알루미나 함유량에 따른 점도의 변화는 0.1 g 첨가시와 유사하였다. 이것은 분산제의 양이 증가할수록 입자의 표면에 분산제가 더 많이 흡착되어 반발력을 증가시키기 때문에 분말 함유량이 증가하여도 슬러리는 안정화되지만, 입자 표면의 흡착 사이트 이상, 즉 monolayer 이상을 첨가시키면 입자 표면의 흡착 사이트에 흡착되고 남은 과잉의 분산제가 용매 속에 존재하여, 분산제 꼬리의 응집을 유발시키기 때문이다. Figs. 1과 2의 결과에서는 polycarboxylic acid가 0.5 g 첨가되었을 때 알루미나 분말이 가장 효과적으로 분산되었으나, Fig. 3에서는 0.2 g이 첨가되었을 때 분산이 가장 효과적으로 일어나 분말 함유량이 가장 높았다. 이는 침강실험과 분말함유량 실험에 사용된 용매량의 차이와 알루미나 분말 100 g에 대한 분산제량의 차이에 기인한다. 즉 침강실험의 경우 알루미나 100 g에 최적으로 흡착된 분산제량은 0.5 g이었지만, 분말함유량 실험 결과에 따르면 0.2 g의 분산제가 첨가되었을 때 알루미나 분말 함유량이 54 vol%로 가장 높았다. 54 vol%는 81.67%이므로 이는 알루미나 100 g에 대해서는 0.24 g의 분산제가 첨가될 때 monolayer로 흡착됨을 나타낸다. 즉 침강실험에 첨가된 분산제는 그 양이 많거나 분산제의 과잉이 일어났을지라도, 입자에 흡착되지 않은 채 남아

있는 분산제의 영향이 다량의 용매로 인하여 미미할 수 있기 때문이다. Fig. 3의 결과에서 수계 알루미나 테이프용 슬러리에 적절한 polycarboxylic acid의 양은 알루미나 100 g에 대해 0.24 g임을 알 수 있다.

슬러리 내 분말 함유량은 분산제와 분산 정도에 크게 의존하며, 같은 양의 용매에 대하여 첨가되는 분말량의 증가는 상대적으로 첨가되는 용매량이 줄어들어 테이프 건조속도를 빠르게 할 수 있다. 또한 이 경우 슬러리 내 분말함유량이 높으면서 낮은 점도의 슬러리는 테이프 캐스터의 blade 통과시 shear thinning 효과를 극대화시킬 수 있어 캐스팅된 테이프 형태의 안정성을 확보하는데 유리하다.

분산이 잘 된 경우에는 수용성 고분자 전해질인 분산제들이 입자 표면에 흡착되어, 입자들이 반발력을 띤 상태로 슬러리 내에서 안정하게 존재하기 때문에 shear stress가 낮아 점도도 낮아지게 된다. Fig. 4는 알루미나가 100 g 첨가된 슬러리에 대해 분산제의 양에 따른 점도를 측정된 것이다. Polycarboxylic acid 분산제가 0.2 g 첨가되었을 때 점도가 가장 낮았다. 분산제량은 슬러리의 점도에 크게 영향을 미치는데 이것은 첨가된 고분자 전해질인 분산제의 구조와 관계되는 것으로 알려져 있다.<sup>20)</sup> 본 실험에서 분산제로 사용된 polycarboxylic acid 분자 역시 고분자 chain이 길게 연결되어 있어서, 입자 표면에 흡착된 후에는 입자들끼리의 접촉을 방해하게 된다. 즉, 이는 슬러리를 안정하게 하는 입체안정화와 입자 표면에 전하를 띠게 함으로써 입자들의 반발력을 형성시키는 정전기적 반발을 동시에 일으키는 electrostatic polyelectrolyte로 작용한다. 점도 실험의 경우도 분말 함유량 실험에서와 유사하게 57 vol%의 분말에 대하여 0.2 g의 분산제가 첨가되었을 때 분산상태의 안정화가 가장

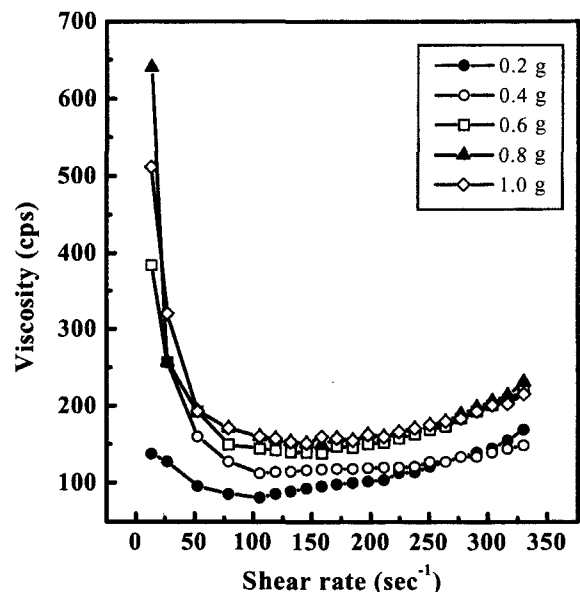


Fig. 4. Influence of the amount of polycarboxyl acid dispersant on rheology of alumina slurries.

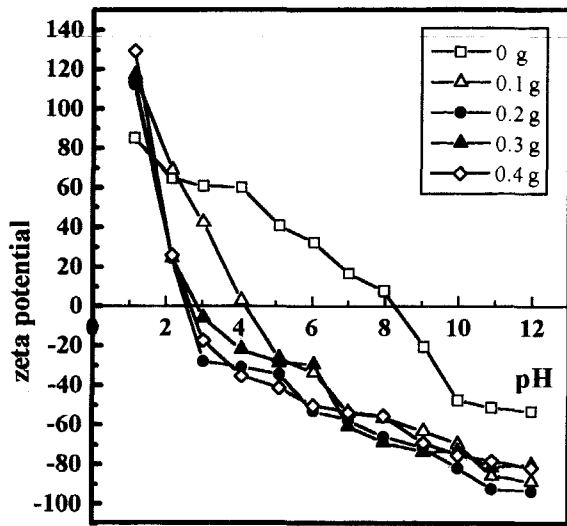


Fig. 5. Zeta potential of alumina slurries containing various amounts of polycarboxyl acid dispersant.

잘 이루어짐을 알 수 있다. 이 양은 분말 100 g에 대해서는 0.23 g으로, 이 때 분산이 가장 잘 이루어지며 그 이상으로 분산제 첨가량이 증가할수록 슬러리의 점도가 높아지는데 이는 과잉의 분산제가 슬러리 내에 존재하여, 고분자 chain 들의 bridging 혹은 tangling 현상에 의하여 슬러리의 유동을 방해하기 때문이라고 사료된다.

수계 슬러리 안의 세라믹 입자들은 극성 용매에 의하여 하전되어, 부가된 전위 차이에 응답하게 된다. 슬러리가 유동할 때 입자 표면에 흡착된 전하들에 의하여 발생된 slip 면에서의 전위를 zeta 전위(ζ)라고 하며, zeta 전위가 0일 때의 pH를 등전점(isoelectric point), 즉 IEP라 한다. 앞서 분산제의 실험에서 가장 우수한 분산효과를 보였던 polycarboxylic acid에 대하여, 분산제의 양을 변화시키면서 pH에 따른 zeta 전위를 측정 한 결과는 Fig. 5와 같다. Zeta 전위에서 등전점으로부터 pH를 증가시키거나 감소시키면 OH<sup>-</sup> 또는 H<sub>3</sub>O<sup>+</sup>와의 반응으로 인한 수화된 표면의 하전 때문에, zeta 전위가 증가됨을 예상할 수 있다. 일반적인 α-alumina 분말의 IEP는 pH 8~9에서 나타나는 것으로 알려져 있으며,<sup>6,7,14,21)</sup> 본 실험에서의 pH는 8.26이었다. 이 알루미늄에 polycarboxylic acid 분산제를 0.1 g 첨가시켰을 때 IEP의 pH는 급격히 낮아지고 0.2 g 첨가시에는 감소폭이 작아지다가 그 이상 첨가에서는 거의 변하지 않았다. 이는 Fig. 3의 분말 함유량과 Fig. 4의 점도 실험에 의한 최적 분산제량 결정과 동일한 결과이다.

알루미늄 100 g에 대해 0.2 g의 polycarboxylic acid가 최적의 분산제량으로 입자 표면에 monolayer만 흡착되고 그 이상이 되면 분산제가 과잉으로 존재하여 더 이상 분산 상태에 영향을 미치지 않거나, 오히려 분산을 저해하는 요인으로 작용할 수 있음을 의미한다. 이는 분산제의 첨가량이 0.2 g 이상으로 증가할수록 입자 표면에 많은 양이 흡착되어

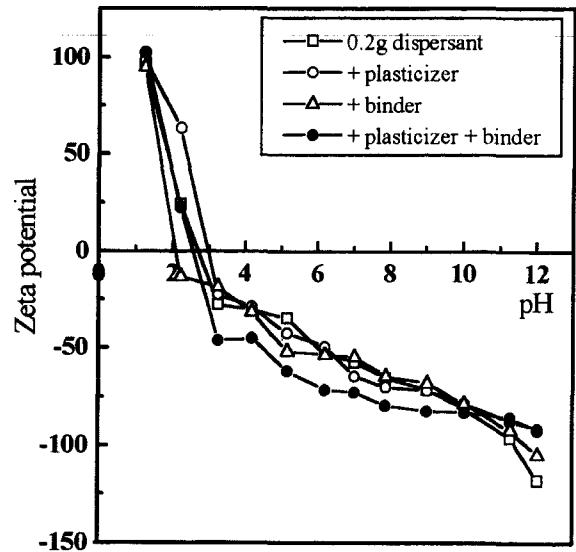


Fig. 6. Zeta potential of alumina slurries containing various organic additives.

전기적 이중층을 두껍게 형성하기 때문이다.<sup>6,17)</sup>

첨가된 분산제는 수화된 전해질로 작용하여, 입자 표면에 흡착되어 전 pH 영역에서 분산제를 첨가하지 않은 슬러리에 비해 음의 zeta 전위를 높이므로 효과적인 반발력을 가진다. pH 10 이상에서는 분산제가 첨가된 슬러리의 zeta 전위 값이 거의 일정한데 이는 높은 pH에서 전위 결정 이온의 작용이 감소하게 되면서 슬러리 내의 이온강도가 증가하게 되고, 이로 인해 전기적 이중층이 압축되어 그 두께가 감소되기 때문이라고 생각된다.

수계 알루미늄 테이프 제조시 첨가되는 유기물들의 첨가가 IEP 변화에 미치는 영향을 알아보기 위하여 가소제와 결합제를 첨가시켜 zeta 전위를 측정하였으며 그 결과는 Fig. 6에 보였다. 0.2 g의 분산제가 첨가된 슬러리에 pH가 4.5인 가소제와 pH 5.5인 결합제를 첨가하였다. 가소제를 첨가시키면 IEP 값은 가소제를 첨가하지 않을 때보다 약간 증가하였고, 결합제를 첨가시키면 감소하였으나 그 차이는 아주 좁은 범위에서 나타나며 두 가지가 모두 첨가되면 IEP 값은 분산제만 첨가했을 때와 거의 흡사하였다. 즉 첨가된 유기물들은 모두 산성이기 때문에 분산제만 첨가시킬 때와 큰 차이 없이 흡착된 입자에 반발력을 형성시킨다. 이 결과로부터 zeta 전위, 즉 입자의 표면전하는 반발력에 의한 분산 거동으로 인해 수계 슬러리의 점도를 결정하는 중요한 인자이며, pH 값은 슬러리의 이온강도에 영향을 주고 있음을 알 수 있다. pH 값과 이온강도의 조화는 입자표면에 높은 표면전하 밀도를 형성시켜, 강한 이중층 반발을 만들고 슬러리의 분산이 잘되게 하기 때문에 슬러리는 IEP 값에서 멀어질수록 입자표면의 전하량이 많아지고, 즉 zeta 전위가 클수록 표면전하로 인한 반발력이 커져 슬러리의 상태가 안정하게 유지되어 점도를 낮춘다.

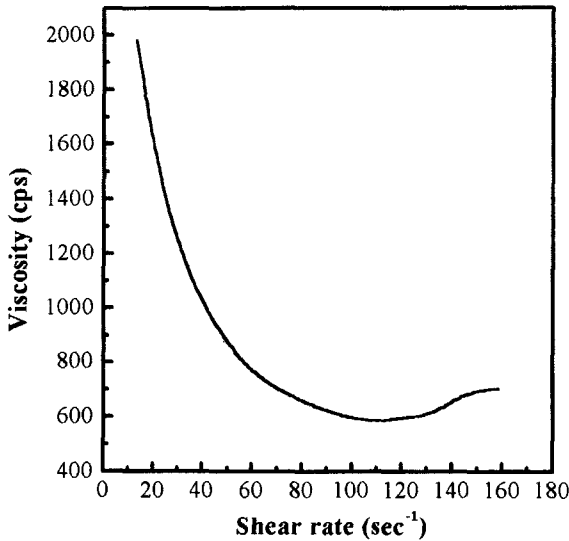


Fig. 7. Rheology of aqueous alumina slurry for tape casting used in the present study.

Fig. 7은 위의 실험결과들을 바탕으로 수계 알루미늄 슬러리를 제조하여 점도를 측정하는 것이다. 본 실험의 조성에서 수계 알루미늄 테이프 캐스팅에 적합한 점도는 572 cps로 측정되었다. 만약 슬러리의 점도가 1,000 cps에 근접되도록 점성이 증가하게 되면 테이프 캐스팅을 할 때 blade 통과 시 shear thinning에 의한 급격한 점도 저하 현상이 일어나 슬러리의 이동과 동시에 공기가 슬러리에 혼입되어 내부에 기포를 형성시키거나 소결 후 표면의 불균일 등 결함의 원인이 될 수 있다.<sup>23)</sup>

#### 4. 결 론

분산제가 수계 테이프용 알루미늄 입자의 분산 및 점도 특성에 미치는 영향의 관찰로부터 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 최적의 분산을 위한 분산제량을 결정하는 방법으로 침강시험법은 분말함유량 시험법, 점도측정법, 그리고 zeta 전위 측정법에 비해 정확하지 않았다.

2. Acrylate계 결합제를 사용한 수계 알루미늄 슬러리에 가장 효과적인 분산제는 polycarboxylic acid였고, 그 양은 알루미늄 100 g에 대해 0.23~0.24 g이었다.

3. 입자의 표면전하는 수계 슬러리의 점도를 결정하는 중요한자로, 알루미늄 100 g에 대해 분산제로 0.23 g의 polycarboxylic acid가 첨가되었을 때 입자 반발력이 최대가 되었고, 그 이상이 첨가되면 입자표면에 monolayer 이상으로 흡착되어 분산을 방해하는 것으로 나타났다.

4. 적절한 두께조절과 균열, 휨 등의 결함의 제어를 위한 수계 알루미늄 테이프 캐스팅을 위해 polycarboxylic acid가 첨가된 슬러리의 최적 점도는 약 570 cps이며, 이 때 테이프 내 알루미늄 함량은 57 vol%였다.

#### REFERENCES

1. D. J. Shanefield, "Dispersants and Other Surfactants"; pp. 211-254 in *Organic Additives and Ceramic Processing*, Second edition with Applications in Powder Metallurgy, Ink, and Paint, Ed. by Kluwer Academic Publishers, 1999.
2. A. W. Adamson and A. P. Gast, "Long-range Forces in Solution"; pp. 239-246 in *Physical Chemistry of Surfaces*, 6th Ed. by New York : J. Wiley, 1997.
3. J. S. Ree, "Deflocculants and Coagulants"; pp. 150-168 in *Principles of Ceramics Processing*, 2nd Ed. by New York : J. Wiley, 1995.
4. A. Pettersson, G. Marino, A. Purshheim and J. B. Rosenholm, "Electrosteric Stabilization of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZrO<sub>2</sub> and 3Y-ZrO<sub>2</sub> Suspensions: Effect of Dissociation and Type of Polyelectrolyte," *J. Colloid and Interface Science*, **228**, 73-81 (2000).
5. D. J. Kim and J. K. Lee, "Dependence of the Rheological Behaviour of Electrostatically Stabilized Alumina Slurries on pH and Solid Loading," *J. Mater. Sci.*, **33**, 2931-2935 (1998).
6. P. C. Hidber, T. J. Raule and L. J. Gauckler, "Citric Acid-A Dispersant for Aqueous Alumina Suspensions," *J. Am. Ceram. Soc.*, **79**(7), 1857-1867 (1996).
7. B. J. Briscoe, A. U. Khan and P. F. Luckham, "Optimising the Dispersion on an Alumina Suspension Using Commercial Polyvalent Electrolyte Dispersants," *J. Euro. Ceram. Soc.*, **18**, 2141-2147 (1988).
8. L. Xuejian, H. Liping and F. Xiren, "Effects of Dispersant on Rheological Behavior of Silicon Nitride Aqueous Suspension," *J. Mater. Sci. Lett.*, **18**, 841-842 (1999).
9. M. N. Rahaman, "Science of Colloidal Processing"; pp. 153-198 in *Ceramic Processing and Sintering*, Ed. by New York : Marcel Dekker, 1995.
10. N. Dan, "Effects on Polymer Adsorption on the Surface Tension and Flocculation of Colloidal Particles in Incompatible Solvents," *Langmuir*, **16**, 4045-4048 (2000).
11. B. H. Kim, B. K. Kim, M. H. Kim and U. G. Paik, "Effect of BaTiO<sub>3</sub> Dispersion on the Properties of Cast Tapes in Processing of Multilayer Ceramic Capacitor (MLCC)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **33**(2), 214-222 (1996).
12. R. R. Landham, P. Nahass, D. K. Leung, M. Ungureit, W. E. Rhine, H. K. Bowen and P. D. Calvert, "Potential Use of Polymerizable Solvents and Dispersants for Tape Casting of Ceramics," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **66**(10), 1513-1516 (1987).
13. R. Greenwood, E. Roncari and C. Galassi, "Preparation of Concentrated Aqueous Alumina Suspensions for Tape Casting," *J. Euro. Ceram. Soc.*, **17**, 1393-1401 (1997).
14. C. Pagnoux, T. Chartier, M. de F. Granja, F. Doreau, J. M. Ferreira and J. F. Baumard, "Aqueous Suspensions for Tape-casting Based on Acrylic Binders," *J. Euro. Ceram. Soc.*, **18**, 241-247 (1998).
15. Y. Hirata, A. Nishimoto and Y. Ishihara, "Effects of Addition of Polyacrylic Ammonium on Colloidal Processing of  $\alpha$ -Alumina," *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **100**(8), 983-990 (1992).
16. 오영제, 정형진, "세라믹스 테이프캐스팅(Tape Casting) 성형기술," *요업기술*, **12**(1), 3-11 (1997).

17. J. Cesarano III and I. A. Aksay, "Processing of Highly Concentrated Aqueous  $\alpha$ -Alumina Suspensions Stabilized with Polyelectrolytes," *J. Am. Ceram. Soc.*, **71**(12), 1062-1067 (1988).
18. T. Cahrtier, S. Souchard, J. F. Baumard and H. Vesteghem, "Degradation of Dispersant During Milling," *J. Euro. Ceram. Soc.*, **16**, 1283-1291 (1996).
19. J. Cesarano III and I. A. Aksay, "Stability of Aqueous  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  Suspension with Poly(Methacrylic Acid) Polyelectrolyte," *J. Am. Ceram. Soc.*, **71**(4), 250-255 (1988).
20. R. J. Hunter, "Effect of Polymer on Colloid Stability"; pp. 54-56 in *Introduction to Modern Colloid Science*, Ed. by Oxford New York, 1997.
21. R. E. Mistler and E. R. Twinn, "Surfactants"; pp. 24-36 in *Tape Casting: Theory and Practice*, Ed. by The American Ceramic Society, Westerville, Ohio, 2000.
22. Z. Yuping, J. Dongliang and P. Greil, "Tape Casting of Aqueous  $\text{Al}_2\text{O}_3$  Slurries," *J. Euro. Ceram. Soc.*, **20**, 1691-1697 (2000).
23. 김영민, 홍양기, "Alumina기판 양산용 Tape Casting 기술," *요업재료의 과학과 기술*, **8**(3), 225-235 (1993).
24. 한문희, 안영수, "Tape Casting 공정에 대하여," *요업기술*, **10**(2), 152-161 (1995).