

BaTiO₃ 입자 함량이 에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름의 유전상수에 미치는 영향

조성동* · 이주연 · 현진걸 · 이상용 · 백경욱

한국과학기술원 신소재공학과

Effect of BaTiO₃ Powder Content on the Dielectric Constant of Epoxy/BaTiO₃ Composite Embedded Capacitor Films

Sung-Dong Cho*, Joo-Yeon Lee, Jin-Gul Hyun, Sang-Yong Lee,
and Kyung-Wook Paik

Dept. of Materials Science and Engineering

Korea Advanced Institute of Science and Technology

373-1 Guseong-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-701, Korea

초 록: BaTiO₃ 분말의 양과 에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름의 유전상수와의 관계를 살펴 보고 이에 대해 고찰하였다. 이를 위해 BaTiO₃ 분말의 함량에 따른 에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름의 밀도 변화와 필름의 표면 및 단면 모습을 관찰하였다. 또한 BaTiO₃ 분말의 함량을 높이기 위한 여러 가지 bimodal 조합에 따른 에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름의 유전상수 변화를 관찰하였다. 단일 입자를 이용한 unimodal의 경우 유전상수가 가장 높게 측정된 S₄ 분말을 이용하여 얻을 수 있었던 유전상수의 최대값은 약 60 이었다. 최대값보다 과량의 BaTiO₃ 분말을 첨가하였을 경우, 에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름의 유전상수가 감소하는데, 이는 과량의 분말을 수용하기 위해 생성된 기공에 의한 것이었다. Bimodal 조합의 경우 가장 큰 분말과 가장 작은 분말의 조합인 S₅+C₁의 조합이 75 vol%의 가장 많은 양의 분말을 넣어 가장 높은 유전상수 90 을 얻는데 성공하였다.

Abstract: We investigated the effect of BaTiO₃ powder content on the dielectric constant of epoxy/BaTiO₃ composite embedded capacitor films (ECFs). Variations of the dielectric constant of epoxy/BaTiO₃ composite ECFs with unimodal BaTiO₃ powder content were measured. To explain this result, density of the ECFs was measured, and surface and cross section images of the ECFs were observed. In addition, variations of the dielectric constant of epoxy/BaTiO₃ composite ECFs with various bimodal combinations were measured. In the case of unimodal powder, the maximum dielectric constant was about 60 at 60 vol% S₄ powder. And more powder addition lowered the dielectric constant of the ECFs, which was due to voids or pores formation by excess BaTiO₃ powder. In the case of bimodal combination, 75vol% BaTiO₃ powder loading and the dielectric constant of 90 were achieved using S₅+C₁ combination, biggest and smallest powder combination.

Keywords: Embedded Capacitor, Polymer/ceramic Composite, Barium Titanate

*Corresponding author
E-mail: star0424@kaist.ac.kr

1. 서 론

현재 전자부품에 사용되고 있는 수많은 수동소자들은 대부분 개별형 부품 형태로 기판 표면에 실장되고 있어 기판의 많은 면적을 차지할 뿐 아니라, GHz 이상의 고주파에서 긴 접속거리로 인한 전기적 기생성분을 유발시킴으로 전기적인 성능을 저하시키며, 납땀을 통한 접속으로 인해 기계적 신뢰성에 문제를 일으키는 것으로 알려져 있다. 따라서 이와 같은 문제점들을 해결하여 더 작고, 더 가볍고, 동시에 향상된 성능을 가진 전자제품을 만들기 위해, 기판 내에 수동소자를 형성하는 내장형 수동소자 기술에 대한 요구가 급증하고 있다¹⁾.

폴리머/세라믹 복합체는 현재 유기기판용 내장형 커패시터의 가장 유망한 재료다. 이는 폴리머 매트릭스에 세라믹 분말이 분산되어 있는 형태로서 세라믹 분말의 높은 유전상수와 폴리머의 우수한 가공성을 결합한 것이다. 공정온도가 낮고 경제적이면서도 비교적 우수한 성능의 커패시터를 구현할 수 있을 뿐만 아니라, 특히 에폭시/세라믹 복합체의 경우 현재 많이 사용되고 있는 인쇄회로기판과의 상호적합성을 가지고 있어 이에 대한 많은 연구가 진행되어 왔다²⁻⁶⁾. 하지만 아직까지 내장형 커패시터 재료가 갖추어야 할 두 가지 중요한 조건, 즉 높은 유전상수와 낮은 커패시턴스 공차(tolerance)를 만족하는 재료의 개발은 미흡한 실정이다.

그런데 최근 높은 유전상수와 낮은 커패시턴스 공차를 갖는 내장형 커패시터를 형성할 수 있는 폴리머/세라믹 복합 내장형 커패시터 필름(embedded capacitor films: ECFs)이 본 논문의 저자에 의해 개발되었다^{7,8)}. 이 내장형 커패시터 필름은 우수한 접착력을 가진 B-stage 상태의 필름으로서, 필름 제작 공정이 쉽고, 이 필름을 이용하여 기판의 전면적 및 선택적 영역에 커패시터를 형성할 수 있는 특징을 가지고 있다.

폴리머/세라믹 복합 내장형 커패시터 필름의 유전상수를 높이기 위해서는 사용하는 폴리머와 세라믹 분말의 유전상수를 높이고 고유전을 세라믹 분말의 함량을 늘려야 한다. 일정한 크기의 한 종류의 분말을 이용하는 경우 고유전을 세라믹 분말의 양이 증가할수록 폴리머/세라믹 복합체의 유전상수 또한 증가한다. 하지만 어떤 일정한 양에서 유전상수가 최대가 되고 그 이상으로 분말의 함량

을 높이면 유전상수가 증가하는 경향에서 벗어나거나 오히려 감소하는 현상이 여러 사람에게 의해 보고되었다^{6,9-11)}. 이와 같은 현상의 원인에 대한 여러 사람의 공통적인 생각은 분말의 양이 일정량 이상으로 많아지면 분말 사이의 빈 공간을 메울 폴리머가 부족하여 빈 공간이 남게 되고 이로 인해 pore나 void가 형성되어 유전상수가 낮아지는 것으로 추정하고 있다^{6,9-11)}. 하지만 아직까지 이에 대한 충분한 증거는 제시되지 못했다.

따라서 단일 크기의 입자를 이용해 세라믹 분말의 함량을 높이는 것에는 한계가 있다. 단일 크기의 구형의 입자로 넣을 수 있는 분말의 최대량은 대략 60-70 vol%이며 이 보다 더 많은 양을 넣기 위해서는 크기가 다른 두 가지 이상의 입자들을 이용해야 한다. 이는 Fig. 1에서 보는 것처럼 큰 입자들 사이의 빈 공간을 작은 입자가 채우도록 하는 것이다. 크기 차이가 나는 두 종류의 입자를 사용하는 경우에는 한 종류의 입자를 사용할 때에 비해 15~20%의 분말을 더 넣을 수 있으며, 크기 차이가 있는 세 종류의 입자를 사용하는 경우에는 약 20~30vol%의 분말을 더 넣을 수 있어 90vol% 이상의 충전율도 달성 가능하다고 한다¹²⁾. 이때 작은 입자에 대한 큰 입자의 크기의 비가 클수록 더 많은 양의 분말을 넣을 수 있는데, 그 단적인 예로 입자크기의 비가 1:5:25인 세 가지 분말을 이용한 trimodal packing의 경우 충전율은 85vol%이며 세 가지 입자의 입자크기의 비가 1:100:100000인 경우에는 91.6%의 충전도 가능하다고 한다¹²⁾.

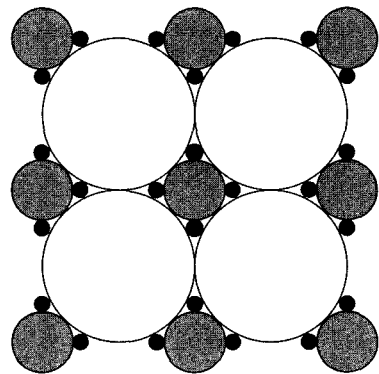


Fig. 1. Concept of multimodal packing for maximizing packing density.

본 논문은 BaTiO₃ 분말의 함량이 에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름의 유전상수에 미치는 영향에 관한 것이다. 첫째로 단일 분말을 이용하여 분말의 함량에 따른 에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름의 유전상수의 변화에 대하여 고찰하였다. 단일 분말을 이용해 얻을 수 있는 유전상수의 최대값을 구하고, 그 최대가 되는 함량 이상에서 유전상수가 오히려 감소하는 현상에 대한 원인을 규명하고자 하였다. 둘째로는 bimodal 분말을 이용하여 분말의 함량을 극대화함으로써 에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름의 유전상수를 극대화하고자 하였다. 여러 가지 분말의 조합 가운데 가장 높은 유전상수를 얻을 수 있는 조합을 찾고 그 결과를 고찰하였다.

2. 실험방법

에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름의 제작을 위한 사용 재료 및 공정 방법에 대해서는 이미 다른 논문^{7,8)}에 자세히 소개되어 있으므로 여기에서는 간략하게 언급하기로 한다.

2.1. 사용재료

에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름의 제작에 사용되는 재료에는 크게 BaTiO₃ 분말, 에폭시, 분산제, 경화제, 유기용매가 있다. 내장형 커패시터 필름의 매트릭스가 되는 에폭시 레진은 고상의 bisphenol-A와 액상의 bisphenol-F 타입의 에폭시를 혼합하여 이용하였다. 에폭시의 경화제로는 경화 시작 온도가 높아 상온에서는 경화가 진행되지 않는 대표적 잠재성 경화제(latent curing agent) dicyandiamide(NH₂NHCNHCN; DICY)를 이용하였다. 고유전을 세라믹 분말로는 BaTiO₃ 를 이용하였다. 본 논문에서는 수열합성법으로 제조된 0.1~1.0 μm의 크기가 다른 7가지 분말을 사용하였다. Fig. 2는 주사전자현미경(SEM)을 이용하여 관찰한 7가지 분말들의 사진이며 Table 1에 그 분말들의 몇 가지 특징을 정리하였다. BaTiO₃ 분말의 분산제로는 가장 널리 알려진 phosphate ester를 이용하였으며, 유기용매로는 methyl-ethyl-ketone (MEK; CH₃COC₂H₅)과 toluene(C₆H₅CH₃)를 혼합하여 이용하였다.

2.2. 에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름 제작 및 커패시터 형성

에폭시/BaTiO₃ 복합 내장형 커패시터 필름의 제작 공정 순서는 다음과 같다. 먼저 BaTiO₃ 분말을 분산제와 함께 유기용매 안에 넣어 초음파를 이용하여 분말의 agglomerate들을 깬 후 볼밀을 이용하여 혼합 및 분산시킨다. 이를 후 에폭시 레진과 경화제를 넣은 후 계속 볼밀을 이용하여 이들을 혼합한다. 어느 정도 시간이 지나면 이렇게 준비된 슬러리를 가지고 콤마롤 코터(comma roll coater)를 이용하여 이형지(releasing paper) 위에 일정한 두께로 도포한다. 콤마 롤을 통과하여 형성된 필름은 바로 건조로를 통과하여 유기용매가 건조된 후 반대편 롤에 연속적으로 감기게 된다. 이때 유기용매를 건조하기 위한 건조로의 온도는 100°C였

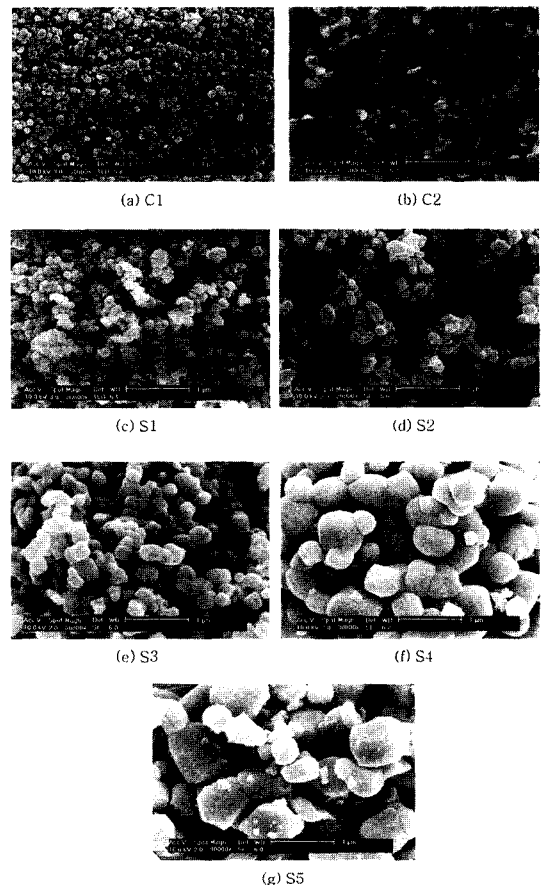


Fig. 2. SEM images of BaTiO₃ powders used for this study.

Table 1. Characteristics of BaTiO₃ powders used for this study

Powder	Specific surface area (m ² /g)	Particle size ((m))			Ba/Ti ratio by XRF
		Volume mean size (\bar{a}_v)	Geometric mean size (\bar{a}_{GN})	DSSA(μm)	
C1	16		0.06 (0.1)	0.064	0.998
C2	8		0.12 (0.2)	0.128	0.999
S1	13±3	0.173±0.067	0.151	0.078	0.999±0.003
S2	7.1	0.304±0.160	0.254	0.143	0.999±0.003
S3	4.0±0.4	0.411±0.269	0.319	0.254	0.999±0.003
S4	2.4	0.893±0.402	0.832	0.424	0.999±0.003
S5	2.3	0.975±0.436	0.916	0.442	0.999±0.003

으며 이와 같이 만들어진 필름은 사용 직전에 다시 100°C의 진공오븐에 1시간 동안 두어 잔류 유기용매의 양을 최소화 하고자 하였다.

이렇게 준비된 필름을 이용하여 커패시터를 형성하는 방법은 다음과 같다. Copper clad laminate (CCL)를 준비하고 그 위에 이형지 위에 코팅되어 있는 커패시터 필름을 뒤집어 놓은 후 라미네이션을 수행하였다. 180°C, 3.52 kgf/cm²에서 20분 동안 유지시켜 에폭시의 완전한 경화가 이루어지도록 하며, 커패시터 필름이 기판에 접착되면 이형지를 제거하고 그 위에 커패시터의 상부전극을 형성한다. 상부전극은 구리를 스퍼터링 방법으로 증착하였으며 이때 shadow mask를 이용하여 수십 개의 0.126 cm²의 원형 전극이 형성되도록 하였다. 커패시턴스와 유전손실은 HP4284A LCR meter를 이용하여 100 kHz에서 측정하였으며 테스트한 커패시터의 수는 40개였다.

2.3. BaTiO₃ 분말 양과 ECF의 유전상수

한 가지의 분말만을 사용한 unimodal에 대해서는 S₁, S₂, S₃, S₄ 및 S₅ 다섯 가지 분말에 대해 각 분말 별로 그 함량을 10~70 vol%까지 바꾸어가며 유전상수의 변화를 관찰하였고, 서로 다른 크기의 2종류의 입자를 이용한 bimodal의 경우에는 S₅, S₄와 C₁, C₂, S₁과의 조합에 대해 BaTiO₃ 분말 55~80%의 함량 범위에서 살펴보았다.

2.4. 필름의 밀도 측정

다공성 물질의 기공도와 필름의 밀도는 아르키메데스의 원리를 이용하여 측정할 수 있다. 시편

만의 무게인 건조 무게(W_{dry}), 시편의 무게에서 물의 부력을 제외한 무게인 현수무게(W_{susp})와 시편의 기공이 물로 채워졌을 때의 무게인 포수무게(W_{sat})를 측정함으로써 기공의 양과 기공이 고립되어 있는 양을 알 수 있다¹³⁾. 단 여기에서 물의 밀도는 1 g/cm³로 가정하였다.

$$\rho_b = \frac{W_{dry}}{W_{sat} - W_{susp}} (g/cm^3)$$

3. 결과 및 고찰

3.1. Unimodal에서 BaTiO₃ 분말 함량과 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 유전상수

Fig. 3은 5가지 BaTiO₃ 분말에 대해 BaTiO₃ 분말의 함량에 따른 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 유전상수의 변화를 보여주고 있다. 먼저 5가지 분말 중에서는 0.83 μm 크기의 S4 분말을 이용한 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 유전상수가 가장 큰 것으로 나타났으며, 이는 S4 분말의 유전상수가 가장 크다는 것을 의미한다. 이때 40 vol%이하에서 입자의 크기에 따라 유전상수가 크게 차이가 없는 것은 에폭시에 비해 분말의 함량이 적기 때문이다. 각각의 분말의 유전상수를 대수법칙을 이용하여 계산한 결과를 Table 2에 나타내었다. 이와 같은 분말 입자 크기에 따른 유전상수의 변화는 BaTiO₃ bulk 세라믹에서 결정립의 크기에 따른 유전상수의 변화와 유사하다^{14,15)}. 즉, 각각의 분말 입자가 bulk에서와 같이 하나의 결정립을 이루어, 입자의 크기에 따라 유전상수가 변화하는 것이다^{8,16)}.

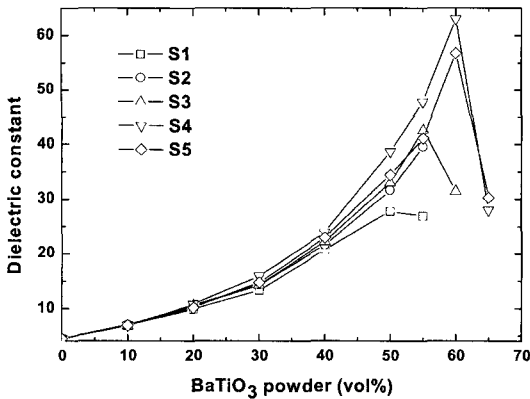


Fig. 3. Dielectric constant changes with BT particle loading.

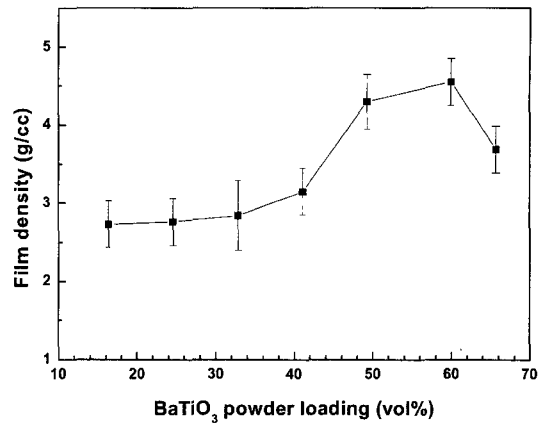


Fig. 4. Changes of ECF bulk density of change with BT particle (S5) loading.

Table 2. Dielectric constant of BaTiO₃ powders calculated by Lichtenecker logarithmic mixing rule

Powder	Particle size (\bar{a} GN, μm)	Calculated dielectric constant of BT powder
S01	0.151	176
S02	0.254	222
S03	0.319	249
S04	0.832	340
S05	0.916	275

BaTiO₃ 분말의 양에 따른 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 유전상수의 변화를 보면 예상했듯이 고유전율의 BaTiO₃ 분말의 부피비가 증가함에 따라 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 유전상수도 증가함을 알 수 있다. 하지만 ECF의 유전상수는 50-60 vol%에서 최대값을 보이고 분말의 함량이 이보다 많은 경우에는 유전상수가 오히려 감소한다.

이와 같은 현상을 설명하기 위하여 BaTiO₃ 분말 함량에 따른 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 밀도변화를 살펴보았으며 Fig. 4는 그 결과를 보여주고 있다. 에폭시 레진의 밀도는 약 1.15 g/cc이며 BaTiO₃ 분말의 밀도는 5.9 g/cc이다. 밀도가 더 큰 BaTiO₃ 분말이 많이 들어가면 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 밀도는 그만큼 증가해야만 한다. Fig. 4를 보면 60 vol% 이하에서는 분말의 함량이 증가함에 따라 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 밀도도 증가하였다. 하지만 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 밀도는 유전상수가 최대가 되었던 분말의 양과 같은 60 vol%에서

최대가 되었으며 그 이상의 분말의 증가에 의해 필름의 밀도는 오히려 감소하였다. 이와 같은 밀도의 감소는 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF 내에 밀도가 매우 작은 무엇인가가 생성되었음을 의미하는 것으로 기공의 형성을 간접적으로 보여주고 있다.

Fig. 5는 SEM을 이용해 관찰한 것으로 S5 분말을 40, 50, 60, 65 vol% 포함한 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 표면 사진이다. 하얀 점으로 보이는 것들이 BaTiO₃ 분말이며 검은 부분은 폴리머 또는 void들이다. 그림에서 알 수 있듯이 분말 함량이 증가함에 따라 분말의 밀도 (또는 개수)가 증가함을 볼 수 있다. 하지만 60 vol%의 필름과 65 vol%의 필름을 비교해보면 65 vol%의 필름에서 오히려 더 많은 void들을 관찰할 수 있다. Fig. 6은 SEM을 이용해 관찰한 것으로 S5 분말 함량에 따른 에폭시/BaTiO₃ ECF의 단면 모습의 변화를 보여주고 있다. 앞에서와 마찬가지로 분말의 함량이 증가함에 따라 단면에 관찰되는 BaTiO₃ 분말의 수도 증가하지만, 65 vol%에서는 60 vol%에 비해 많은 void가 생성되었음을 관찰할 수 있다.

따라서 앞에서의 밀도 측정결과와 SEM을 이용해 관찰한 표면사진과 단면사진 결과를 종합해 볼 때 65 vol%의 필름이 60 vol% 필름에 비해 유전상수가 감소한 것은 최대 충전율 이상의 분말을 수용하기 위해 필름 내에 형성된 기공 때문이라 할 수 있다.

3.2. Bimodal 분말을 이용한 내장형 커패시터 필름의 유전상수 향상

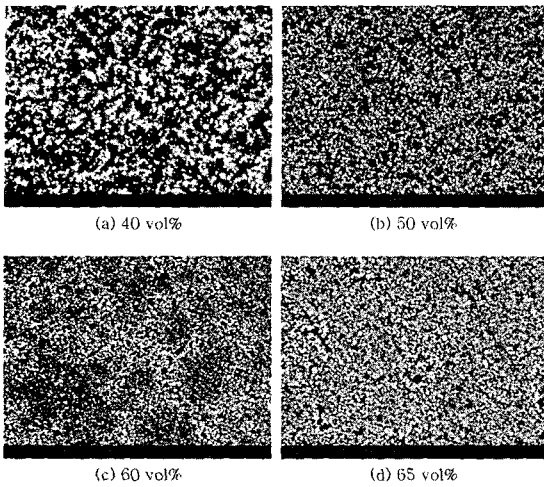


Fig. 5. Surface images of the ECFs containing (a) 40 vol%, (b) 50 vol%, (c) 60 vol%, and (d) 65 vol% BT powder (S5).

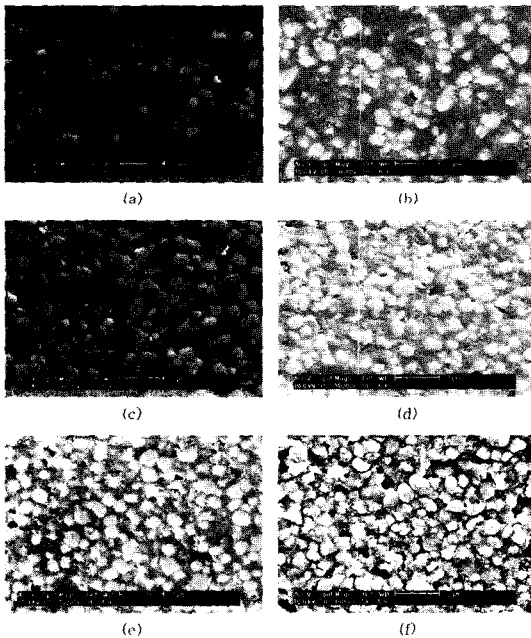


Fig. 6. Cross section images of the ECFs containing (a) 20, (b) 30, (c) 40, (d) 50, (e) 60, and (f) 65 vol% BT powder (S5).

앞에서 보았듯이 단일 입자를 사용하여 얻을 수 있는 입자의 최대 충전율은 50~60 vol%이며 이를 통해 얻을 수 있는 유전상수의 최대값은 63 정도였다. 새라믹 분말의 충전율을 높이고 더 높은 유전상수를 얻기 위해서는 크기 차이가 나는 두 종류

의 입자를 사용하는 bimodal이 반드시 필요하다.

이론적으로 bimodal에서 입자의 충전율은 두 입자의 크기 차이가 많이 날수록 더 높아진다¹²⁾. 따라서 본 연구에서는 가장 크기가 큰 S5 분말과 가장 크기가 작은 C1 분말의 조합, 가장 높은 유전상수의 S4 분말과 가장 낮은 유전상수의 C1 분말의 조합, 크기가 가장 큰 S5 분말과 C1에 비해 크기와 유전상수가 약간 큰 S1의 조합, 가장 높은 유전상수의 S4 분말과 S1의 조합, 그리고 S5와 C2, S4와 C2 이렇게 해서 총 6가지 조합에 대해 자세히 살펴보았다.

Fig. 7(a)는 S4+S1, S4+C2, S5+S1, S5+C2의 4가지 조합에 대한 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 유전상수 측정 결과를 보여주고 있다. 그림에서 보듯이 S4 분말과 S1, C2 분말의 조합은 bimodal packing에 그다지 효율적인 것으로 보이지 않는다. S4 분말 60 vol%에 S1 분말 5 vol%를 추가하였을 때 약간의 유전상수의 증가가 나타났지만 10 vol%의 S1 분말이 추가되면서 유전상수는 50 정도로 감소하였다. C2 분말의 경우에는 5 vol%의 분말의 추가에 의해서도 유전상수가 감소하는 것을 알 수 있다. 한편 S5 분말은 S4 분말에 비해서 입자 크기가 크기 때문에 충전 시 분말간의 공간이 커져 bimodal에 효율적인 것으로 나타났다. S1과 C2 두 가지 모두에 대해 10 vol%의 분말을 더 추가시켜 총 70 vol%의 분말을 넣을 수 있었으며 유전상수를 70~80으로 높일 수 있었다. 하지만 15 vol%의 분말이 추가되었을 때에는 역시 유전상수의 감소가 나타났다.

Fig. 7(b)는 S4 (55 vol%)+C1, S4 (60 vol%)+C1, S5 (55 vol%)+C1, S5 (60 vol%)+C1의 조합에 대해 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 유전상수 측정 결과를 보여주고 있다. S4 분말과 C1 분말의 조합을 살펴보면, 65 vol%일 때 유전상수가 약 70 정도로 앞에서 살펴본 S4 분말과 S1, C2 조합에 비해서는 유전상수가 높게 관찰되었다. 이는 가장 작은 분말인 C1이 이보다 약간 큰 S1, C2 분말에 비해서 bimodal packing에는 더 효율적임을 나타내는 것이다. 하지만 S4 분말과 S1, C2의 조합과 마찬가지로 S4+C1의 조합도 그 이상의 분말을 넣었을 때 유전상수의 감소가 나타났다. 가장 큰 분말과 가장 작은 분말의 조합인 S5+C1의 조합은 지금까지의 결과와는 약간 다른 모습을 보여주었다. C1 분

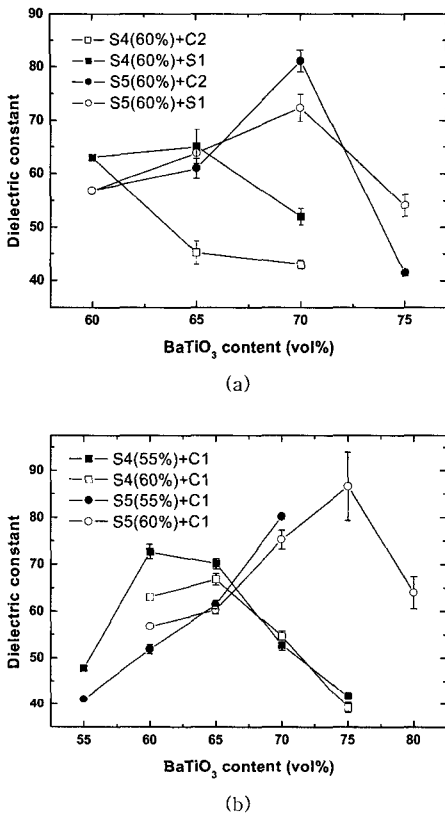


Fig. 7. Dielectric constant of ECF versus bimodal powder combination: (a) S5, S4 + S1, C2 combination and (b) S5, S4 + C1 combination.

말의 추가에 의해 유전상수의 증가가 나타났지만 65 vol%까지는 다른 조합들에 비해 유전상수가 작다. 이것은 S5 분말의 유전상수가 S4 분말에 비해 작고 C1 분말은 가장 작은 유전상수의 분말이기 때문이다. 하지만 70 vol%에서 75~80 정도의 높은 유전상수가 얻어졌으며 이 값은 S5+S1, S5+C2의 조합에서 얻었던 값과 비슷하였다. 75 vol%에서도 유전상수의 증가가 나타나 결과적으로 약 90 정도의 가장 높은 유전상수를 얻을 수 있었다. 그 이상의 분말의 추가 즉 80 vol%에서는 유전상수의 감소가 나타났다.

이를 정리하면 bimodal을 이용하여 분말의 전체 양을 65 vol%로 할 경우에는 S4 분말의 유전상수가 S5 분말보다 더 크므로 더 높은 유전상수를 얻는데 더 유리하다. 하지만 큰 입자인 S5 분말은 더 많은 양의 입자들을 수용할 수 있어 S5 분말과 C1

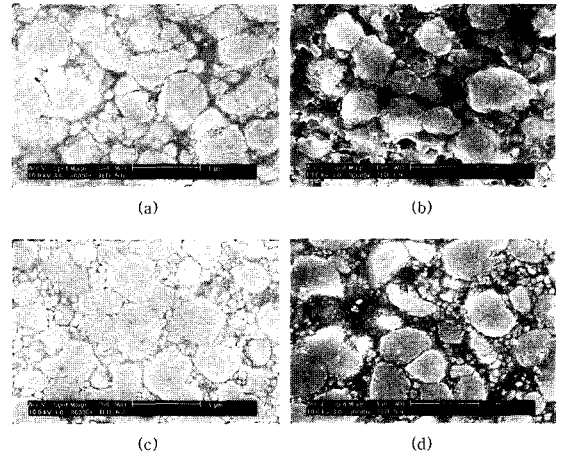


Fig. 8. SEM images of ECFs containing (a) S5(60 vol%) + C2(10 vol%), (b) S5(60 vol%) + C2(15 vol%), (c) S5(60 vol%) + C1(10 vol%), and (d) S5(60 vol%) + C1(15 vol%).

분말 조합의 경우 전체 75 vol%까지의 충전도 가능하여 더 높은 유전상수를 얻을 수 있음을 알 수 있었다. 즉 bimodal packing을 이용해 유전상수의 향상을 도모하고자 할 때 조대 입자의 유전상수가 높은 것도 중요하지만 조대 입자의 크기 또는 조대 입자와 미세 입자의 크기 비 또한 중요한 인자가 될 수 있음을 실험적으로 확인할 수 있었다.

이미 언급을 하였지만 현재까지 얻은 유전상수의 최대값은 약 90 정도로서 S5 분말 (0.916 μm) 60 vol%에 C1 분말 (0.1 μm) 15 vol%를 추가하였을 때 이다. 이 보다 더 높은 유전상수를 얻기 위해서는 S5보다 더 큰 분말을 이용하거나, C1보다 더 작은 분말을 이용한 trimodal packing이 필요하며 이에 필요한 작은 분말의 직경 크기는 10 nm 이하가 되어야 할 것으로 생각된다.

Fig. 8은 S5+C2 조합과 S5+C1 bimodal 조합을 이용한 ECF의 분말 함량 별 단면 사진들로 S5+C2의 조합은 사진에서 보듯이 그 크기 차이가 크지 않아 packing에 비효율적이라는 것을 볼 수 있으며, S5(60vol%)+C2(15vol%) 조합의 단면사진을 보면 너무 많은 분말에 의해 발생한 기공을 확인할 수 있다.

4. 결 론

BaTiO₃ 분말의 양이 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의

유전상수에 미치는 영향을 살펴보았다. 단일 입자를 이용한 unimodal의 경우 유전상수가 최대가 되는 BaTiO₃ 분말의 최대 충전량은 50-60 vol% 이었으며 분말의 크기에 따라 차이가 있었다. 가장 높은 유전상수의 S4 분말을 이용하여 얻을 수 있었던 유전상수의 최대값은 약 60이었다. 일정 양 이상의 BaTiO₃ 분말의 첨가는 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF 유전상수의 감소를 가져왔는데, 이는 과량의 분말을 수용하기 위해 생성된 기공에 의한 것으로서 필름의 밀도 측정과 SEM을 이용한 필름의 표면 및 단면 관찰을 통하여 이를 확인할 수 있었다.

필름 내 BaTiO₃ 분말의 함량을 높이기 위한 여러 가지 BaTiO₃ 분말의 bimodal 조합에 대해 에폭시/BaTiO₃ 복합 ECF의 유전상수의 변화를 관찰하였다. 가장 높은 유전상수의 S4 분말과 C1, C2, S1 등 작은 분말들의 조합은 65 vol%에서 유전상수가 최대가 되었으며 그 이상에서는 유전상수의 감소가 나타났다. 가장 큰 분말과 가장 작은 분말의 조합인 S5+C1의 조합이 75 vol%의 가장 많은 양의 분말을 넣어 가장 높은 유전상수 90을 얻는데 성공하였다. 따라서 bimodal 조합에서 분말 자체의 유전상수도 중요하지만 고유전을 분말의 함량을 높이기 위해서는 큰 입자와 작은 입자의 크기 비가 더 중요함을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단 전자패키지재료연구센터의 지원으로 수행하였습니다.

참고문헌

1. J. Prymark, S. Bhattacharya, and K. Paik, "Fundamentals of Passives: Discrete, Integrated, and Embedded", in *Fundamentals of Microsystems Packaging*, edited by R. R. Tummala, pp. 454-463, McGraw-Hill Book Company, New York (2001).
2. S. K. Bhattacharya and R. R. Tummala, "Next Generation Integral Passives: Materials, Processes, and Integration of Resistors and Capacitors on PWB substrates", *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, 11(3), 253 (2000).
3. S. Ogitani, S. A. Bidstrup-Allen, and P. A. Khol, "Factors Influencing the Permittivity of Polymer/Ceramic Composite for Embedded Capacitors", *IEEE Trans. on Advanced Packaging*, 23(2), 313(2000).
4. B. A. Schutzberg, C. Huang, S. Ramesh, and E. P. Giannelis, "Integral Thin Film Capacitors: Materials, Performance and Modeling", *Proc. of the 50th Electronic Components and Technology Conf.*, Las Vegas, 1564(2000).
5. Y. Rao, S. Ogitani, P. Kohl, and C. P. Wong, "Novel High Dielectric Constant Nano-structure Polymer-ceramic Composite for Embedded Capacitor Application", *Proc. of the 50th Electronic Components and Technology Conference*, Las Vegas, 183(2000).
6. H. Windlass, P. M. Raj, D. Balaraman, S. K. Bhattacharya, and R. R. Tummala, "Processing of Polymer-Ceramic Nanocomposites for System-On-Package Applications", *Proc. of the 51st Electronic Components and Technology Conference*, Florida, 1201 (2001).
7. S.-D. Cho, J.-Y. Lee, J.-G. Hyun, and K.-W. Paik, "Study on Epoxy/BaTiO₃ Composite Embedded Capacitor Films (ECFs) for Organic Substrate Applications", *Mat. Sci. Eng. B*, in press (2004).
8. S.-D. Cho, J.-G. Hyun, and K.-W. Paik, "Study on the Properties of Epoxy/BaTiO₃ Composite Embedded Capacitor Films for Organic Substrate", *Proc. of the 5th International Symposium on Electronic Materials and Packaging*, pp. 20-26, (2003).
9. I. Vrejoiu, J. D. Pedarnig, M. Dinescu, S. Bauer-Gogonea, and Bauerle, "Flexible Ceramic-polymer Composite Films with Temperature-insensitive and Tunable Dielectric Permittivity", *Appl. Phys. A*, 74(3), pp. 407-409 (2002).
10. Y. Bai, Z.-Y. Cheng, V. Bharti, H. S. Xu, and Q. M. Zhang, "High-dielectric-constant Ceramic-polymer Composites", *App. Phys. Lett.*, 76(25), 3804 (2000).
11. Y. Rao, J. Qu, T. Marinis, and C. P. Wong, "A Precise numerical Prediction of Effective Dielectric Constant for Polymer-ceramic Composite Based on Effective-medium Theory", *IEEE Trans. Components and Packaging Technologies*, 23(4), 680(2000).
12. R. M. German, *Particle Packing Characteristics*, pp. 181-217, Metal Powder Industries Federation, New Jersey (1989).
13. W. D. Kingery, H. K. Bowen, and D. R. Uhlmann, *Introduction to Ceramics*, pp. 530-532, Wiley, New York (1976).
14. G. Arlt, D. Henning, and G. de With, "Dielectric Properties of Fine-grained Barium Titanate Ceramics", *J. Appl. Phys.*, Vol. 58, No. 4, p. 1619 (1985).
15. R. Waser, "Dielectric analysis of Integrated Ceramic Thin Film Capacitors", *Integrated Ferroelectrics*, Vol. 15, No. 1/4, pp. 39-51 (1997).

16. 조성동, 이주연, 백경욱, “BaTiO₃ 분말의 입자 크기가 내장형 커패시터용 에폭시/BaTiO₃ 복합체 필름의 유전상수와 누설전류에 미치는 영향에 관한 연구”, 한국 마이크로전자 및 패키징 학회지, 9(2), pp. 11-18 (2002).