

## Lamination of LTCC Sheet Using Binder Film

Hyo-Soon Shin,<sup>†</sup> Yong-Seok Choi,\* and Eun-Tae Park\*

System Module Group, Korea Institute Ceramic Engineering and Technology, Seoul 153-801, Korea

\*Central R&D Institute, Samsung Electro-Mechanics, Suwon 443-743, Korea

(Received February 22, 2006; Accepted April 12, 2006)

### Binder Film을 이용한 LTCC Sheet 적층

신효순<sup>†</sup> · 최용석\* · 박은태\*

요업기술원 시스템모듈사업단

\*삼성전기주식회사 중앙연구소

(2006년 2월 22일 접수; 2006년 4월 12일 승인)

#### ABSTRACT

In the lamination process of multi-layer ceramic modules, the occurrence of delamination comes into repeatedly. To completely improve the lamination process of LTCC sheets, a binder film was introduced between the layers. The binder film did not originate the delamination until the thickness under 40  $\mu\text{m}$ . After lamination, the thickness of the binder film was determined by the infiltration of binder by the pressure, and after the bake-out, was dependent on the decomposition of binder resin. Any detectable defect was not observed in the multilayer structure with Ag inner electrodes.

**Key words :** LTCC, Lamination, Binder film

#### 1. 서 론

전자부품의 집적화 경량화 경향은 이동통신의 RF 부품을 비롯하여 다양한 복합모듈의 개발을 이끌어 왔다.<sup>1,2)</sup> 이와 같은 전자부품의 모듈화 기술은 PCB공정을 기반으로 하는 표면실장 기술과 Low Temperature Cofired Ceramics (LTCC) 공정을 기반으로 하는 세라믹스 모듈 기술로 대변된다. 최근, 이동통신 기술이 모듈의 소형화를 주도하는 대표적인 분야이며, 이동통신 기술의 고주파화와 소형 경량화 요구에 부응하는 전기적 특성을 확보할 수 있는 소재 기술로 LTCC 소재 공정을 이용한 3차원 모듈화 기술이 주목받고 있다.<sup>3,4)</sup>

LTCC 기술은 고온에서 소결되어야 하는 세라믹스의 근본 특성을 Ag 전극재료와 동시 소결하기 위하여 기존 세라믹스 재료의 소결 온도에 비하여 비교적 저온인 800~900°C에서 소결될 수 있는 조성을 개발하는 연구가 주류를 이루어 왔다.<sup>5,6)</sup> 그리고 산업현장에서는 이들을 모듈화 하여 제품으로 출시하기 위한 다양한 모듈의 설계 및 개발이 주된 관심사가 되어 왔다.<sup>7)</sup>

후막 LTCC 공정 기술을 이용한 모듈 제작 분야에서 집

적도가 점차 극대화됨에 따라 공정기술의 한계들이 많이 대두되고 있다. 이와 같은 집적도 극대화 경향에 따라 미세패터닝 기술과 xy 방향의 무수축 소결에 대한 많은 연구들이 이루어지고 있다.<sup>8,9)</sup> 그러나 산업 현장에서는 기존 공정의 안정성이 더 시급한 문제로서 기존 LTCC 공정에 대하여도 많은 연구가 필요한 시점에 있다. 그런데 각 단위 공정에서 일어나는 문제점은 회사 위주로 개선 작업이 진행되었고 회사에서 노하우 수준의 개선을 진행하고 학문적으로 많이 보고되고 있지 못하다.

일반적인 LTCC 공정에서 가장 높은 빈도로 발생하는 문제 중 하나가 적층공정의 delamination 문제로 알려져 있다. 그러나 이들을 해결하기 위한 산업체의 개발은 지속적으로 이루어지고 있지만 학계의 노력은 부족한 실정이다. 선행 적층성 연구로서 Piwonski와 Roosen<sup>10)</sup>은 고온 소결 세라믹스의 후막 공정에서 PET film에 adhesive 층을 코팅한 상온 저압 접착층을 도입하여 적층 공정의 적용가능성을 보인바 있다. 그리고 Roosen<sup>11)</sup>은 유사한 방법을 multi-layer module에 적용한 결과를 발표한 바 있다. 최근 기판 및 package 등에 후막 적층 공정이 확대됨에 따라 단위 sheet의 두께가 증대되는 공정이 많이 발생하고 층간의 적층성 변화가 불량으로 이어지는 공정의 문제가 다발하고 있다. 이를 해결하기 위하여 새로운 적층 공정으로 기존 LTCC sheet와 binder의 화학적 특성이 동일하고 sheet 적층에 도입이 쉬울 것으로 예상되는 binder

<sup>†</sup>Corresponding author : Hyo-Soon Shin

E-mail : hshin@kicet.re.kr

Tel : +82-2-3282-2499 Fax : +82-2-3282-7759

film을 도입하여 이들 공정이 LTCC 적층 공정에 적용 가능성을 평가할 필요가 있다.

따라서 본 실험에서는 LTCC를 구성하는 binder 소재를 이용하여 film으로 casting하고 이들의 두께를 변화시키면서 각 LTCC 공정에서 나타나는 미세구조의 변화를 관찰하고자 하였다. 이를 통하여 lamination 공정에서 발생할 수 있는 불량인 delamination의 원인은 binder 층을 별도로 추가하는 효과가 있으므로 원천적으로 차단하고 추가된 binder film이 다른 bake-out이나 소성 공정에서 이차적인 defect의 원인을 제공하지 않는지 확인하고 binder film의 변화 과정을 비교 분석하였다.

### 2. 실험 방법

Binder film의 제작을 위하여 binder resin으로 Butvar로 잘 알려진 상용 polyvinyl butyral(Solutia, USA)을 사용하였다. Resin은 1:10의 무게비로 toluene/ethanol 용매에 용해시켰다. 균일하게 용해된 binder solution은 PET film (Sachan, Korea)을 carrier film으로 사용하여 100 mm/sec의 속도로 성형하였다. 성형된 binder sheet의 두께는 건조 후 10 µm로 조절하였다.

실험에서 사용한 LTCC sheet는 양산에서 사용하고 있는 상용의 sheet를 이용하였다. 사용된 조성은 기판용으로 적용되고 있는 Dupont 951(Dupont, USA)였으며 sheet 제작 공정은 삼성전기(주) 양산 sheet 제작 공정에 따라 이루어졌고 두께 50 µm였다.

Binder film의 두께 변화에 따른 영향을 관찰하기 위하여 Fig. 1에서 나타낸 바와 같이 1층, 2층 및 4층의 binder 층을 포함하는 laminate를 설계하였다. 그림에서 보는 바와 같이 각 binder film은 한 장 단위로 sheet 방향으로 아주 낮은 압력에서 압착하고 carrier film을 제거하는 방법을 반복적으로 진행하였다. 포함된 binder 층의 두께는 10, 20, 40 µm로 변화하겠지만 압착 공정에 따라 그 실제 두께는 변화하게 된다. 압착 공정은 65°C에서 100 Kg/cm<sup>2</sup>의 압력으로 uniaxial 방향으로 압착되었고 시편의 일부는 isostatic press를 이용하여 85°C에서 200 Kg/cm<sup>2</sup>의 압력으

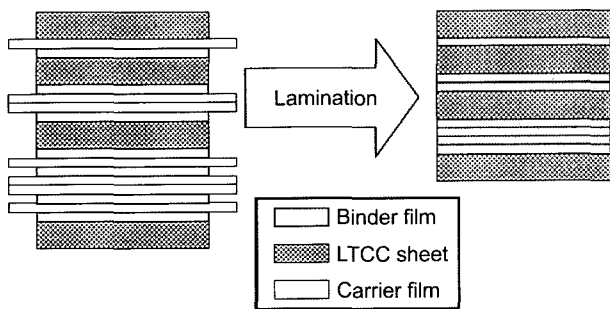


Fig. 1. Constitution of laminate containing binder films.

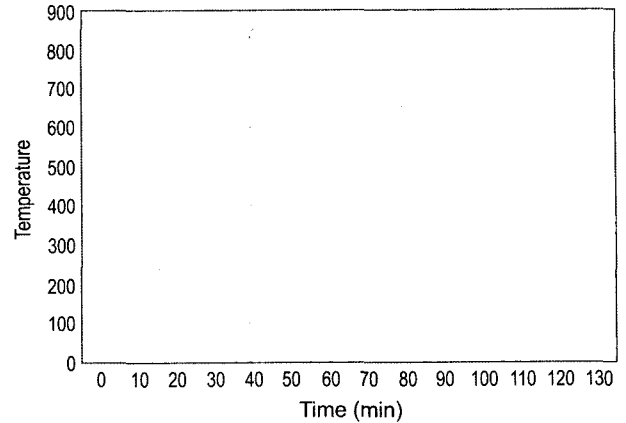


Fig. 2. Sintering profile for the bake-outed laminates.

로 10분간 실시하였다. Binder film간의 압착에서 air trap을 방지하기 위하여 uniaxial press 과정에서 5분간 시간을 유지하였다.

압착이 완료된 시편은 K<sup>2</sup>(9.5 × 7.5 mm) 형태로 절단하고 330°C에서 30분 bake-out 하였다. Bake-out 완료된 시편은 아래 Fig. 2에서 제시한 조건에 따라 850°C에서 30분 소결하였다. 소결이 끝난 시편과 각 공정별 시편의 lamination 상태를 주사전자현미경(SEM)으로 관찰하였다.

### 3. 결과 및 고찰

Fig. 3은 압착된 상태에서 binder film의 단면을 관찰한 SEM 사진이다. 그림에서 uniaxial press의 경우와 uniaxial press 후에 iso press를 추가로 진행한 경우가 비교되어져 있다. 그림의 결과에서 알 수 있듯이 press 공정이 추가로 진행됨에 따라 binder film의 두께가 각 두께별로 얇아졌음을 확인할 수 있다. 그리고 명확하게 binder film 층으로 구분되는 영역은 초기 binder film의 두께에 비하여 낮아졌음이 확인된다. 이와 같은 현상은 압착 공정에서 binder가 압축되어 두께가 얇아졌거나 기존의 LTCC sheet 상에 존재하는 pore를 통하여 binder가 밀려들어 갈 수 있다는 것을 의미한다. 사진에서 binder film이 압축되어 두께가 얇아진 증거는 찾을 수 없지만 LTCC sheet와 binder film 사이에서 pore가 binder에 의해 채워진 형상이 나타나고 있어서 가압과정에서의 binder 층의 두께 감소 원인을 확인할 수 있다. Iso press를 추가한 경우는 가해진 압력이 더 컸으므로 더 넓은 층에서 binder film이 흡수되어 메워진 듯이 보이지만 메워진 두께에 대한 정량적인 비교는 정확한 경계를 설정할 수 없는 어려움이 있어서 실시하지 않았다. 압착된 시편에서 binder film의 두께 변화는 삽입한 binder film의 두께 비를 거의 만족하고 있음을 확인할 수 있다. 정확한 두께 측정 결과 비교는 다음의 Table 1에서 bake-out 및 소결 상태와 비교하여 설명한다.

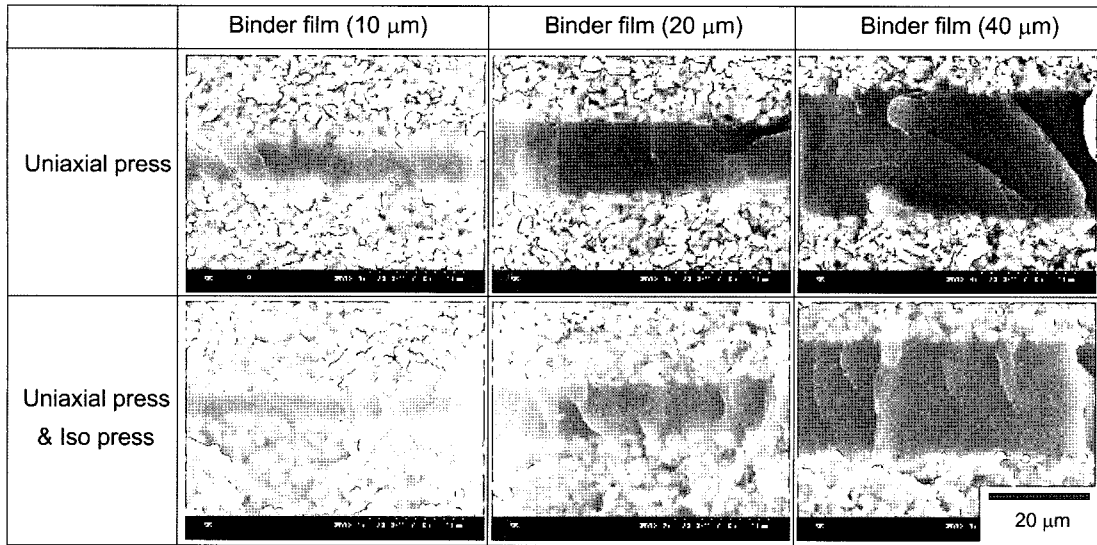


Fig. 3. Fractured structures of the green laminates with the thickness of binder film.

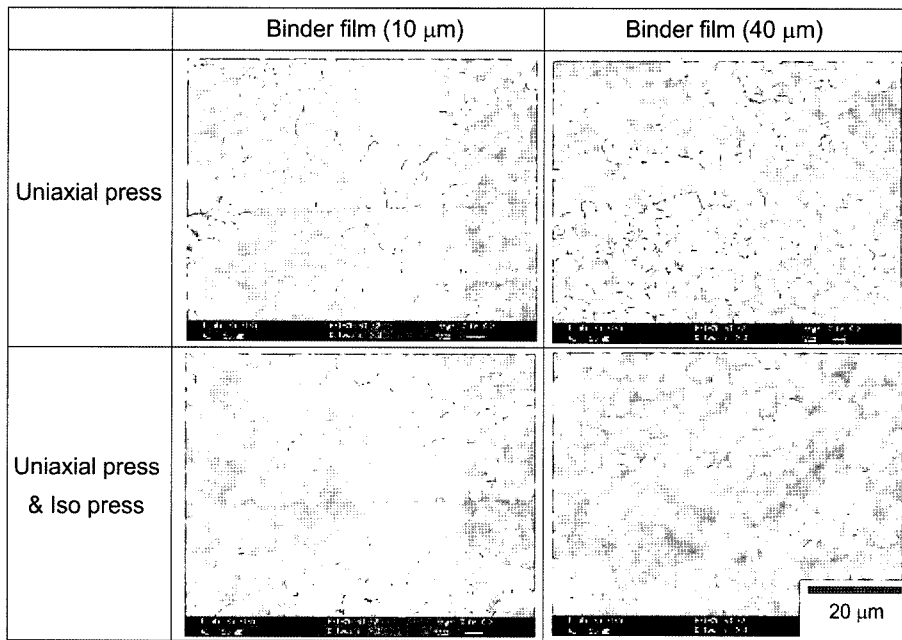


Fig. 4. Fractured structures of laminates were bake-outed at 330°C for 30 min.

10 μm와 40 μm 두께의 binder film을 사용한 시편을 330°C에서 30분간 bake-out한 후에 관찰한 파단면을 Fig. 4에 나타내었다. 그림에서 10 μm의 경우 uniaxial press와 iso press 모두 잔존하는 binder film의 분리된 층은 관찰되지 않았다. 그리고 binder film이 삽입되었던 위치에 powder 성형체의 경계면이 나타나고 있다. 그러나 40 μm의 경우 구분된 binder film 층이 두 압착 공정에서 모두 나타나고 있다. 10 μm의 경우 bake-out을 진행하기 위하여 온도를 올리는 과정에서 sheet 층으로 binder 층이 흡수가 일어나고 온도가 점차 높아지면서 binder는 열분해 되어 사라지

게 된다. 그러나 다른 sheet의 표면을 형성하던 부분이 만나면서 뚜렷한 경계면을 보여주고 있음을 알 수 있다. 하지만 40 μm binder film 삽입의 경우 10 μm에 비해 절대 두께가 4배 증가함에 따른 binder 층의 sheet 층 흡수가 충분히 일어나지 않고 bake-out이 충분히 진행되지 않아 binder 층이 남아있는 것을 알 수 있다. 남아 있는 binder film의 두께는 성형상태에 비하여 현격히 줄어들었고 가압 방식에 상관없이 두께가 비슷하게 남아있는 것처럼 보인다.

소결의 공정이 진행된 후 binder film의 사용 두께에 따른 미세구조 변화가 Fig. 5와 같이 관찰되었다. 그림에서

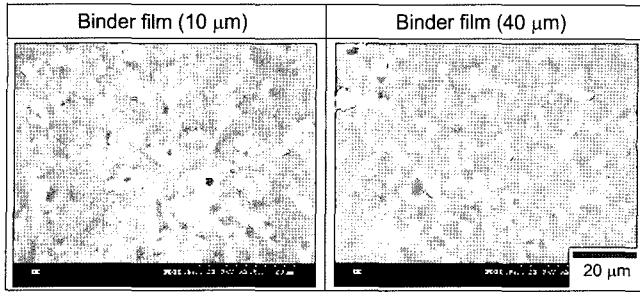


Fig. 5. Fractured structures of laminates were sintered at 850°C for 30 min.

binder film의 사용 두께에 상관없이 잔존하는 binder film 층에 의한 불균일한 흔적은 관찰되지 않았다. 관찰 과정에서는 binder film과 수직방향으로 많은 부분을 이동하면서 관찰하였으나 경계면을 구분할 수 있는 미세구조적 결합을 발견할 수 없었다. 이 결과는 binder film의 두께 변화에 상관없이 최종 소결체는 균일한 적층 구조를 나타낸다는 것을 보여준다. 그러나 40 μm binder film 사용에서 구분되는 층이 나타나지 않았으므로 두께 40 μm 이하에서는 증명되었지만 binder film의 두께 한계가 얼마나 큰지는 확인되지 않았다. 이 결과는 적층성이 떨어지는 두꺼운 sheet 등의 적층 특성을 높이기 위한 binder film의 사용이 충분히 적용 가능한 공정임을 설명할 수 있는 것이다.

Table 1에서는 각 공정별 측정된 binder film의 두께 변화를 정리한 것이다. Lamination 공정 이후 측정된 binder film의 두께 결과에서는 초기 도입한 binder film의 두께에 비하여 uniaxial press의 공정 후 전체적으로 두께가 낮아졌으나 도입된 두께 비율인 1:2:4가 유지되지 않고 비율이 작아지고 있다. 이것은 uniaxial press 공정에서 binder film이 압력에 의하여 단순히 수축되는 기구가 아니라는 것을 보여준다. 즉 단순히 선수축의 문제라면 균일한 수축율이 유지되어야 할 것이다. 이러한 수축율의 변화는 binder가 가압되는 중에 LTCC sheet 표면의 pore로 밀려 들어가는 것 때문으로 생각된다. 이 현상은 앞에서 제시한 Fig. 3의 binder film과 LTCC sheet 경계면에서 관찰된 바 있다. 특히, iso press를 추가로 실시한 경우는 binder

film의 두께 비율이 uniaxial film을 사용한 경우와는 반대로 도입된 binder film의 두께 비율보다 커지고 있음을 확인할 수 있다. 그런데 절대적인 binder film의 두께는 3.3 μm에서 4.2 μm 정도의 비슷한 두께 감소를 보였다. 이것은 이미 uniaxial press에 의한 binder film과 LTCC sheet 경계면에 binder 함침이 어느 정도 진행된 상태에서 균일한 iso press의 환경은 비슷한 량의 추가적인 함침을 일으킨 것으로 추정된다.

330°C bake-out 후의 결과는 10 μm와 20 μm binder film의 경우 경계면만 확인될 뿐 측정이 불가능하였으며 40 μm의 경우는 lamination 조건과 상관없이 비슷한 수준을 나타내었다. 이것은 열 이력에 의한 bake-out의 문제이므로 주어진 bake-out 조건에서 분해 가능한 binder의 절대량에 따른 것으로 보인다. 그러나 이때 잔존하는 binder는 소성 과정으로 온도가 상승되면서 모두 분해되어 Fig. 5의 결과에서 보는 바와 같이 균일한 소결체의 미세구조로 나타나게 된다. 이 결과는 비록 binder film의 두께가 더 두꺼워져도 bake-out을 충분히 진행할 수 있는 실험 조건만 주어진다면 두께의 한계는 계속 증가할 수 있을 것임을 보여준다.

Fig. 6은 위에서 실험한 결과를 바탕으로 LTCC 모듈의 제작에서 반드시 필요한 Ag 내부전극을 포함하는 조건으로 binder film을 적용한 적층 실험을 진행한 것이다. 그림에서 binder film의 두께 변화와 각 공정 단위별로 관찰한 미세구조 사진은 앞에서 제시한 Fig. 3에서 Fig. 5까지 결과와 동일함을 확인할 수 있다. 그러나 소결체 미세구조에서 전극 내부에 포함된 pore의 크기가 40 μm binder film을 도입한 경우가 10 μm binder film을 도입한 경우보다 크게 나타났다. 이 결과는 위 Table 1의 논의에서 언급한 바와 같이 bake-out의 공정에서 분해되지 않고 남아있었던 binder가 소결 공정에서 추가로 분해되는데 전극이 소성되는 온도 영역에서 까지 분해가 진행되어 발생한 기포가 전극에 잔존하여 pore로 남게 되는 것으로 추정된다. 그러나 근본적인 delamination의 불량 등 공정 적용상의 문제는 전혀 발생하지 않고 있음을 확인할 수 있었다. 이와 같은 결과들을 바탕으로 binder film의 도입은 적층공정에서 빈번하게 발생하는 delamination의 문제에

Table 1. Thickness of Binder Films with Variation of Process

Process	Lamination	Binder film (10 μm)	Binder film (20 μm)	Binder film (40 μm)
Lamination	Uniaxial	7.0	13.8	24.7
	ISO	3.7	9.6	21.2
330°C bake-out	Uniaxial	-	-	0.9
	ISO	-	-	0.8
850°C sintering	Uniaxial	Not observable		
	ISO	Not observable		

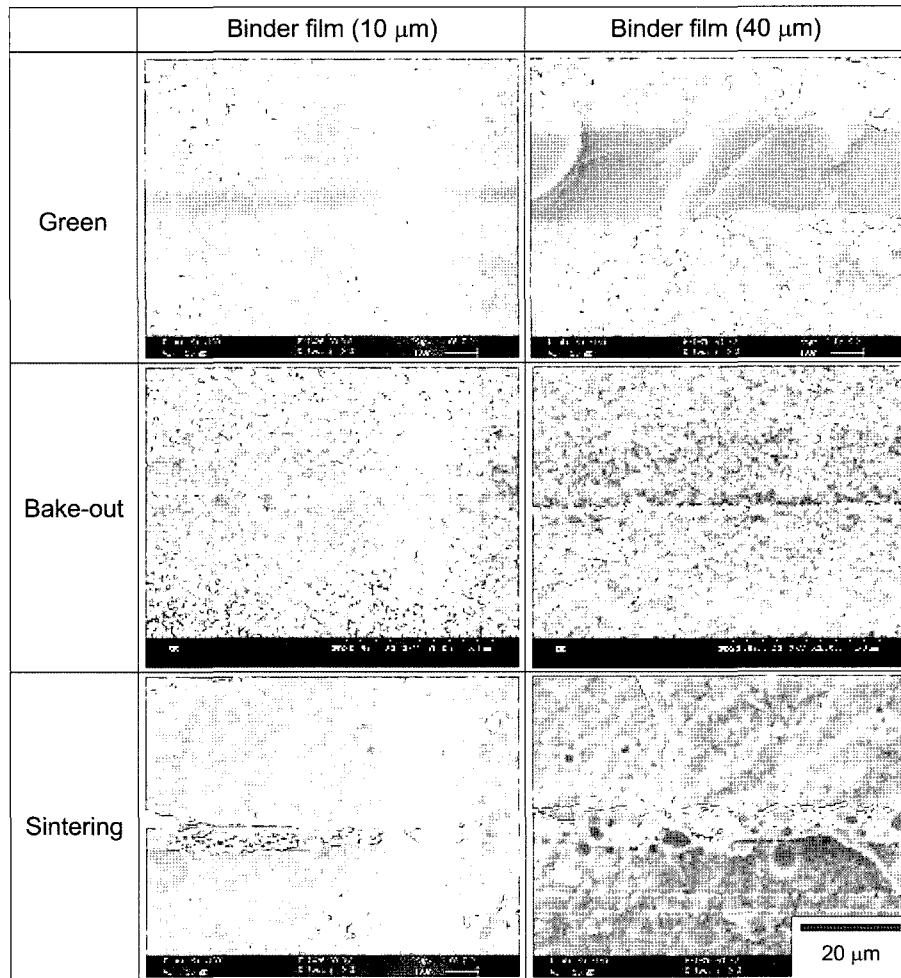


Fig. 6. Fractured structures of laminates containing Ag electrode in the co-firing process.

대한 하나의 중요한 대안으로 사용될 수 있을 것으로 기대된다.

#### 4. 결 론

두꺼운 sheet의 적층이나 적층성이 나쁜 sheet의 균일한 적층성을 확보하기 위하여 binder film을 도입하여 적층하는 공정을 제시하고 binder film의 두께를 변화시키면서 각각의 LTCC 공정에서 미세구조 변화를 관찰하였다.

Binder film의 적층공정 도입은 LTCC 모듈의 제작에서 delamination 등의 불균일을 나타내지 않았으며 이들 binder film의 두께는 충분한 bake-out 공정이 이루어지면 40  $\mu\text{m}$ 까지 문제가 없음을 확인하였다. 적층공정에서의 binder film 두께는 binder 함침 기구에 의하여 영향을 받는 것으로 판단되나 정확히 규명되지 않았고 bake-out에서의 binder film 두께는 열 이력에 의해 절대적인 binder 분해 량에 따라 결정되는 것으로 생각된다. Ag 내부전극을 도입한 적층 실험에서도 층간의 delamination

등의 치명적인 결함은 발견되지 않았다. 따라서 binder film 공정의 모듈화공정 적용은 충분히 가능할 것으로 판단된다.

#### REFERENCES

1. S. W. Lee, K. H. Kim, K. B. Shim, and K. D. Koo, "Fabrication of Low Temperature Cofired Ceramic (LTCC) Chip Couplers for High Frequencies: II. Effect of Sintering Process on Ag Diffusion(in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **36** [5] 490-96 (1999).
2. J. H. Park and J. G. Park, "Summary of LTCC Material and Process," *Ceramist*, **4** [4] 41-8 (2001).
3. K. B. Shim, N. T. Cho, and S. W. Lee, "Silver Diffusion and Microstructure in LTCC Multilayer Couplers for High-Frequency Applications," *J. Mater. Sci.*, **35** 813-20 (2000).
4. M. Udovic, M. Valant, and D. Duvorov, "Phase-Formation and Dielectric Characterization of the  $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-TeO}_2$  System Prepared in an Oxygen Atmosphere," *J. Am. Ceram. Soc.*, **87** [4] 591-97 (2004).

5. F. Huang and D. L. Wilcox Sr., "Use of Titanates to Achieve a Temperature-Stable Low-Temperature Cofired Ceramic Dielectric for Wireless Applications," *J. Am. Ceram. Soc.*, **85** [4] 828-32 (2002).
6. H. Jantunen, A. Uusimäki, R. Rautioaho, and S. Leppävuori, "Temperature-Coefficient of Microwave Resonance Frequency of a Low-Temperature Cofired Ceramic (LTCC) System," *J. Am. Ceram. Soc.*, **85** [3] 697-99 (2002).
7. B. K. Kim, "Future of LTCC," *Ceramist*, **6** [1] 5-12 (2003).
8. US patent US 6,776,861.
9. US patent US 6,949,156.
10. M. A. Piwonski and A. Roosen, "Low Pressure Lamination of Ceramic Green Tapes by Gluing at Room Temperature," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **19** [2] 263-70 (1999).
11. A. Roosen, "New Lamination Technique to Join Ceramic Green Tapes for the Manufacturing of Multilayer Devices," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **21** [10-11] 1993-96 (2001).