

저유전율/저손실 LTCC 배선 기판의 저온소결 및 유전특성

최영진¹, 박정현², 고원준², 박재환², 박재관², 남산²

¹고려대학교 재료공학과

²한국과학기술연구원 복합기능세라믹스연구센터

Low Temperature Sintering and Dielectric Properties of Low Dielectric Constant/Loss for LTCC Wiring Substrate

Young-Jin Choi¹, Jeong-Hyun Park², Won-Jun Ko², Jae-Hwan Park², Jae-Gwan Park², Sahn Nahm²

¹Department of Materials Science and Engineering, Korea University, Korea

²Multifunctional Ceramics Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791, Korea

Abstract

알루미늄 보로실리케이트계 유리 기본조성 중 알칼리 토류 산화물의 종류 및 함량 변화에 따른 저유전율/저 LTCC 배선 기판의 저온 소성 거동 및 유전 특성을 조사하였다. 알칼리 토류 산화물의 종류 및 함량 변화를 통해서 LTCC의 적정 소성온도인 875°C 부근을 포함하는 넓은 대역으로 소성수축이 시작되는 온도를 제어할 수 있었으며 유리 프리트와 알루미늄 필러의 배합 비율의 변화에 따른 소성거동 및 유전특성의 변화 거동을 조사하였다. 알칼리 토류 산화물 중 유리 조성내의 CaO의 함량이 증가할수록 유리전이점 및 연화점을 증가하는 경향을 보였으며, 알루미늄 필러의 첨가량이 증가할수록 소성수축이 시작되는 온도영역은 상향되고 유전율 및 품질계수는 증가하였다. 알칼리 토류 산화물의 조성과 필러인 알루미늄의 함량을 제어함으로써 875°C에서 18% 이상의 선수축율과 유전율 5.1~5.5 및 유전손실 0.1% 이하의 우수한 특성을 갖는 저온소결용 LTCC 배선 기판을 얻을 수 있었다.

Key words : 저유전율, 저, 보로실리케이트, 알루미늄, 저온 소성, 다층기판

1. 서론

이동통신 및 정보통신 분야의 발전에 따라 단말기 및 관련 부품들을 소형·경량화하는 것이 매우 중요한 기술요소로 부각되고 있다. 부품 및 모듈의 소형·경량화를 위해서는 다양한 부품들을 복합일체화하는 것이 중요하며 관련 연구들이 폭 넓게 이루어지고 있다. 특히 기판의 집적화와 수동부품의 복합화를 동시에 구현할 수 있는 저온 동시소성 세라믹 (Low Temperature Co-fired Ceramic: LTCC) 기술에 관한 많은 연구 및 제품화가 이루어지고 있다.^[1]

LTCC 기판 900°C이하의 온도에서 소성되므로

내부전극으로 Ag를 사용할 수 있게 되어 기존의 세라믹 다층기판에서 사용되었던 Pt 등 귀금속 내부전극에 비해 가격이 저렴하며 전기전도도가 더 우수한 장점이 있다. 또한 L, C, R 등 다양한 수동부품들을 후막 테이프 형태로 적층하고 내부 전극 및 비어홀 (via hole)을 통해서 연결함으로써 종래에 표면실장부품(SMD)으로 개별화되던 세라믹 후막 부품들을 일체화하여 하나의 모듈로 구현할 수 있게 된다.^[2]

이러한 LTCC를 구성하는 조성 가운데 가장 기본적인 것은 저유전율 LTCC 기판 조성이다. 저유전율 LTCC 기판 조성은 대체적으로 유리, 결정화

유리, 또는 결정화 유리화 세라믹 필러의 복합체 형태 중 한가지로 구성이 되게 된다.^[3] 저유전율 LTCC 기판 조성 가운데 가장 일반적인 것은 알루미늄 등의 필러와 보로실리케이트계 유리의 복합체로 구성되는 것이다. 필러인 알루미늄은 대략 20 ~ 50 wt% 정도의 범위가 되며, 보로실리케이트계 유리는 50 ~ 80 wt% 정도의 범위로 구성된다. 구체적으로 유리의 조성은 SiO₂, B₂O₃ 및 내화확성이 우수한 Al₂O₃가 주성분을 이루며 나머지는 알칼리 또는 알칼리 토류 산화물로서 구성된다. 유리에 첨가되는 알칼리 또는 알칼리 토류 산화물의 종류와 함량에 따라 유리의 물리적 특성과 전기적 특성은 크게 변화하게 된다. 그러나 대부분의 알칼리 산화물의 첨가는 유리의 용융에는 유리하지만 유전손실 값이 0.1% 이상으로 높게 나타나는 문제점이 있다.

본 연구에서는 알루미늄 보로실리케이트계 유리 기본조성 중 알칼리 산화물 첨가를 완전히 배제하고 알칼리 토류 산화물 만을 첨가하여 저온 소성 거동 및 유전 특성을 조사하였으며, 알루미늄 필러의 함량 제어를 통해 달라지는 소성수축 거동과 유전 특성을 조사하였다.

2. 실험

먼저 유리 조성 시뮬레이터인 SciGlass (V3.5, Scivision, USA)를 이용하여 저온소성 다층기판으로 활용하기에 적합한 유전율, 열팽창 계수, 점도 등을 갖는 기본 유리 조성을 탐색하였으며 이를 통해 SiO₂-B₂O₃-Al₂O₃계 유리 기본조성을 선정하였다. 무게비로 SiO₂, B₂O₃ 및 Al₂O₃의 함이 92% 이상이 되게 하였고 이 조성에 대하여 알칼리 토류 산화물로서 CaO 및 ZnO를 선택하여 그 종류 및 함량을 변화시켰다.

SiO₂-B₂O₃-Al₂O₃-RO (RO: CaO, ZnO)계 유리를 제조하기 위해서 출발물질로 SiO₂, H₃BO₃, Al₂O₃, CaCO₃ (99%, Junsei Chem. Co., Japan), ZnO (99.9%, High Purity Chem. Co., Japan)를 사용하여 일반적인 water-quenching method에 의해 유리를 제조하였다. 제조된 유리 시편의 전이점 (T_g), 연화점(T_s) 및 열팽창계수는 4.5×4.5×25 mm³의 bar 형태로 가공한 후 딜라토미터 (Tokyo Dilatronic, Japan)를 이용하여 측정하였으며, 유전율 및 유전은 디스크 형태로 유리를 가공한 후 precision LCR meter (HP4284A, Hewlett-Packard, USA)를 이용하여 분석하였다.

저온소성 유전체 기판의 적정한 강도 및 소성 거동을 확보하기 위해서 유리 분말에 대하여 알루미늄이나 실리카 등의 필러를 적용하게 된다. 본 연구에서는 유리 분말에 대한 필러로서 평균 입경이

2~3 μ m인 알루미늄 분말 (99.9%, High Purity Chem. Co., Japan)을 사용하였다. 유리 분말과 알루미늄 분말을 적절히 변화시켜 혼합 건조한 후 1000 kg/cm²의 압력으로 직경 10 mm, 두께 3 mm의 디스크 형태로 일축가압 성형하였다. 성형된 시편은 박스로를 이용하여 500°C에서 1시간 유지함으로써 탈바인더 공정을 거친 후, 850~975°C의 소결 범위의 온도까지 5°C/min로 승온하고 20분간 유지하여 소결한 후 로냉 하였다.

소결체의 밀도는 아르키메데스법을 이용하여 측정하였고, 유리/필러 복합 소결체의 이론밀도는 복합체의 혼합법칙에 의해 계산하였다.

소결된 시편의 미세구조는 5% HF 용액으로 15초간 에칭한 후 주사전자현미경 (SEM, 4100, Hitatch, Japan)으로 기공의 존재 및 소결 상태를 확인하였으며, 유전 특성은 precision LCR meter로 1MHz의 주파수에서 유전율 (k)와 품질계수 (Q)를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

제조된 알루미늄 보로실리케이트계 유리의 물리적/전기적 특성을 Table 1에 나타내었다. 밀도의 경우 전체적으로 2.2 ~ 2.3 g/cm³의 범위로서 필러인 알루미늄의 밀도 3.9 g/cm³에 비해 큰 차이를 나타내었다. 열팽창계수 (T_{EC})의 경우 2.7~3.1×10⁻⁶ ppm/°C 사이의 범위로 측정되었으며 알루미늄 기판의 열팽창계수(7.0×10⁻⁶)보다 낮고 실리콘의 열팽창계수(3.4×10⁻⁶)와 유사한 결과를 나타내었다. 유리 전이점은 614~684°C의 범위, 유리연화점은 701~755°C의 범위로 얻어졌으며, 유전 특성의 경우 5이하의 낮은 유전율과 0.2% 미만의 낮은 유전손실 값이 얻어졌다.

Table 1에서 나타난 바와 같은 G 시리즈의 유리 조성에 대하여 알루미늄이 30 wt% 혼합되어진 유리/알루미늄 혼합 조성물을 GA시리즈로 표시하여 그 특성을 Table 2에 정리하여 나타내었다. Table 2에는 치밀화가 시작되는 온도를 포함하는 몇 가지 온도에서의 밀도 및 유전 특성을 나타내었다. 몇 가지 예를 살펴보면 GA1 조성의 경우는 소결온도 925~975°C 범위에서 수축률이 19% 이상, 최대밀도가 2.57 g/cm³ 이상인 분포를 나타내었고, GA6 조성의 경우는 소결온도 850°C 부근에서 18% 이상의 충분한 소성수축을 나타내고 있다. 18% 이상의 수축율을 보이는 경우에 개기공율은 대부분 1% 미만으로서 충분한 소결이 이루어 졌음을 알 수 있었다. 전체적으로 유전율 5.0~5.5 사이의 범위, 유전 값은 0.05~0.12% 사이의 범위로 측정되었다.

Table 1. Effect of alkali composition on the properties of borosilicate glass.

Glass code	CaO [wt%]	ZnO [wt%]	Density [g/cm ³]	T _{bc} [$\times 10^6$]	T _g [°C]	T _s [°C]	k	loss (%)
G0	0.00	7.59	2.27	2.78	614	701	4.05	0.21
G1	0.88	6.35	2.27	2.87	622	709	4.10	0.16
G2	1.76	5.10	2.26	2.95	625	710	4.15	0.13
G3	2.65	3.84	2.25	2.99	637	718	4.20	0.06
G4	3.55	2.57	2.24	3.02	650	727	4.26	0.07
G5	4.45	1.29	2.24	3.05	664	737	4.31	0.14
G6	5.36	0.00	2.23	3.08	684	755	4.36	0.15

Table 2. The density and dielectric properties of the samples at selected firing temperature.

code	Firing temp. [°C]	Density [g/cm ³]	Relative density [g/cm ³]	k	loss (%)
GA1	925	2.58	99.2	5.35	0.110
	950	2.57	98.9	5.36	0.095
	975	2.59	99.6	5.01	0.123
GA3	825	2.59	99.5	5.42	0.067
	850	2.55	98.6	5.09	0.060
	875	2.55	98.6	5.11	0.062
GA4	900	2.57	99.8	5.26	0.061
	925	2.57	99.7	5.38	0.054
	950	2.56	99.5	5.36	0.084
GA5	900	2.56	99.4	5.21	0.060
	925	2.54	98.7	5.24	0.055
	950	2.51	97.7	5.24	0.073
GA6	900	2.55	99.2	5.35	0.058
	925	2.56	99.6	5.38	0.063
	950	2.54	98.9	5.42	0.059

Fig. 1은 알루미늄 보로실리케이트계 유리 기본 조성 중 알칼리 토류 산화물의 함량 변화에 따른 LTCC 기판의 소성수축 거동의 변화를 나타내었다. 유리 프리트와 알루미늄의 혼합비가 70:30 인 경우만을 대표적으로 나타내었으며 다른 배합비의 경우에도 유사한 경향성을 나타내었다. 유리 기본조성 중 CaO가 없는 GA0 조성은 975°C까지 소성온도를 증가시켜도 치밀화가 거의 이루어지지 않았으며 CaO의 첨가량이 증가할수록 유리/알루미나 복합체의 치밀화 시작 온도가 저온부로 이동하는 경향성을 나타내고 있다. 밀도의 경우에도 비슷한 경향성을 나타내고 있다.

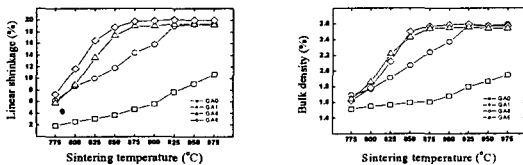


Fig. 1. Effect of alkali earth oxide composition on the temperature dependence of linear shrinkage and density. 30 wt% of alumina filler added.

Fig. 2에는 대표적인 유리/알루미나 복합체의

미세구조를 보여주고 있다. Fig. 2(a)는 GA1을 925°C에서 소결한 경우, Fig. 2(b)는 GA6을 875°C에서 소결한 경우의 미세구조 사진이다. (a), (b) 모두 바다 형태로 보이는 유리 매트릭스에 알루미나 분말이 적절히 분포되어 있으며 μm 단위의 기공은 관찰되지 않았다. Table 2와 Fig. 2로부터 GA1에 비해서 GA6은 낮은 온도에서 치밀화가 일어나는 것을 알 수 있다.

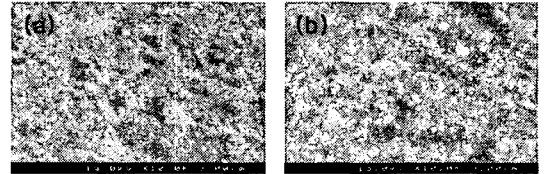


Fig. 2. SEM micrograph of the etched surface of (a) GA1 sintered at 925°C for 20 min and (b) GA6 sintered at 875°C for 20 min. The ratio of glass frit : alumina is 70:30.

Fig. 3에는 필러인 알루미늄의 첨가량 변화에 따른 소성수축 거동의 변화를 나타내었다. G4 유리가 적용된 경우에 대한 결과를 대표적으로 나타내었으며 다른 유리조성의 경우에도 동일한 경향성을 나타내었다. 선수축율의 경우는 유리의 첨가량이 증가할수록 저온부에서부터 치밀화가 일어나기 시작했지만 975°C의 고온부에서는 그 차이가 줄어드는 것을 볼 수 있다. 유리의 첨가량이 증가하게 되면 저온부에서 유리의 용융으로 형성된 액상과 알루미늄의 전체적인 소결이 증대되어 낮은 온도영역에서는 치밀화도가 증가되지만 고온부에서는 유리의 첨가량이 많은 경우 과소결 현상에 의해 오히려 치밀화도가 약간 감소하는 경향이 나타났다. 성형체의 밀도의 경우 Fig. 3(b)에 나타난 바와 같이 알루미늄의 첨가량이 많을수록 급격히 증가되는 경향을 나타내는데 이는 알루미늄의 밀도가 유리의 밀도에 비해 상대적으로 크기 때문이다.

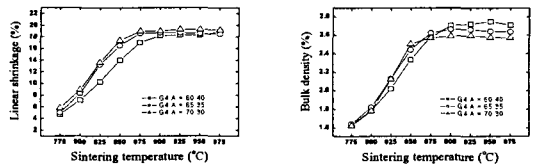


Fig. 3. Effect of alumina filler content on the temperature dependence of linear shrinkage and density. G4 glass was used.

Fig. 4에는 소성온도에 변화에 따른 GA1과

GA6 조성의 유전 특성을 나타내었다. G1 유리 조성과 알루미나 필러가 65 : 35로 적용된 경우인 Fig. 4(a)에서는 치밀화가 진행되는 온도구간인 900 ~ 975°C 사이에서의 유전율 변화는 거의 없지만, 유전손실 값은 925°C를 전후하여 큰 변화를 보이고 있다. 이는 900°C에서 밀도가 2.37g/cm³로 925°C이상 보다 상대적으로 낮은 값을 보인 것과 비슷한 경향성을 보인 것으로서, 밀도가 증가할수록 시편이 균일한 조직을 갖추면서 유전손실 값이 감소한 것으로 사료된다. GA6 조성의 경우에도 역시 치밀화가 시작되는 온도 영역에서 유전손실 값의 변화가 크게 나타나고 있다. 전체적으로 치밀화가 충분히 이루어진 시편의 유전손실 값은 0.07 ~ 0.10% 사이로 나타났다. 현재 시판되고 있는 LTCC 조성물의 경우 유전손실 값이 0.17 ~ 0.30% 사이임을 감안할 때 이는 매우 양호한 특성이다.

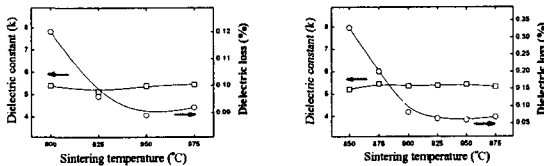


Fig. 4. Temperature dependence of dielectric properties of (a) GA1 (G1:Alumina = 65:35) and (b) GA6 (G6:Alumina = 70:30).

Fig. 5에는 G6 조성의 유리에 대하여 알루미나의 함량을 변화시켰을 때 유전율의 변화경향성을 나타내었다. Fig. 5(a)에는 유전율의 변화를 나타내었는데 G6 조성의 알루미나 함량이 70:30인 경우 유전율 5.3~5.8 값을 나타내었으며, 이 때 밀도는 2.5 g/cm³ 부근의 값이었다. 일반적으로 유전체 세라믹에서 밀도와 유전율은 밀접한 상관 관계에 있으며 밀도가 증가할수록 유전율은 증가하는 것으로 알려져 있다. 이는 본 실험의 결과와도 잘 일치하고 있으며, 알루미나 양이 증가하는 순서로 증가하였다. 또한 유리, 알루미나, 기공이 혼합된 구조를 가정하고 단순한 혼합 법칙에 의해 유전율을 계산해 보면 유전율이 4 정도인 유리에 비해 유전율이 10 정도인 알루미나의 함량이 늘어날 때 유전율 증가가 있게 되는데 이러한 요인도 유전율 증가에 기여한 것으로 생각된다.

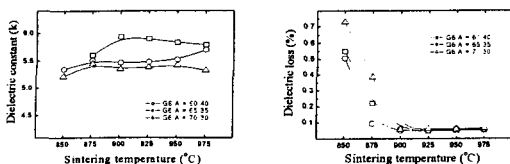


Fig. 5. Effect of alumina filler content on the temperature dependence of dielectric properties of the samples.

Fig. 5(b)는 G6 조성의 알루미나 함량변화에 따른 품질계수의 변화를 나타내었다. 제조된 유리의 품질계수는 필러로 사용된 알루미나에 비해 상당히 낮으며 알루미나 함량이 증가할수록 급격히 증가하면서 품질계수 역시 유전체의 혼합 법칙을 어느 정도 따르고 있음을 보여 준다. G6 조성의 알루미나 함량비가 70:30인 경우 925°C 경우에서 약 0.05 이하의 매우 우수한 유전손실 값을 나타내었다.

4. 결 론

알루미나 보로실리케이트계 유리 기본조성 중 알칼리 토류 산화물 및 알루미나 필러의 변화에 따른 저온소성 LTCC 배선 기판의 소성수축 거동 및 유전 특성을 조사하였다. 유리 기본조성 중에서 알칼리의 종류를 CaO와 ZnO로 하고 그 함량을 5 ~ 8 wt% 사이에서 적정히 제어함으로써 소성수축이 일어나는 온도를 850 ~ 925°C의 온도범위에서 제어할 수 있었다. 이러한 조성기술은 중·고 유전율과 이종복합소재를 이루면서 동시소성을 하는 경우에 전체적인 warpage를 최소화 하기 위한 저유전율의 조성으로서 활용이 가능하다. 알루미나 필러의 첨가량이 증가할수록 소성수축 온도영역은 상향되었으며 유전율 및 유전손실 값도 증가하였다. 알칼리 토류 산화물과 필러의 첨가량을 변화시킴으로써 875°C에서 18% 이상의 선수축율, 유전율 5.1~5.5 및 유전 0.1% 이하의 유전 특성을 갖는 저유전율/저손실 LTCC 배선 기판을 얻을 수 있었다.

감사의 글

This research was supported in part by a grant from the Center for Advanced Materials Processing (CAMP) of the 21st Century Frontier R&D Program funded by the Ministry of Science and Technology, Republic of Korea.

참고문헌

- [1] R. R. Tummala, *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 74, No. 5, p. 895, 1939.
- [2] S. D. Park, H. G. Kang, Y. H. Park and J. D. Mun, *J. Microelectronic & Packaging Soc.*, vol. 6, No. 3, p. 25, 1999.
- [3] H. Jantunen, R. Rautioaho, *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 83, No. 11, p. 2855, 2000.