

유기물 첨가제 조성에 따른 Al_2O_3 그린 테이프의 유리전이온도 및 저장탄성률 변화

이명현 · 이정훈 · 김창은 · 김대준* · 오남식*

연세대학교 세라믹공학과

*한국과학기술연구원

(1998년 3월 4일 접수)

Effect of Organic Additive Composition on Glass Transition Temperatures and Storage Moduli of Al_2O_3 Green Tapes

Myung-Hyun Lee, Jeong-Hoon Lee, Chang-Eun Kim, Dae-Joon Kim* and Nam-Sik Oh*

Dept of Ceramic Eng., Yonsei Univ.

*Ceramics Div, KIST

(Received March 4, 1998)

요 약

조성물 변수로서 알루미늄에 대한 알루미늄+유기물의 비(A)와 결합제에 대한 결합제+가소제의 비(B)를 각각 변화시켜 알루미늄 테이프를 제조하였다. 유리전이온도 및 저장탄성률 (storage modulus)에 대한 조성의 영향을 Dynamic Mechanical Thermal Analysis를 사용하여 연구하였다. 유리전이온도는 A에 거의 영향을 받지 않았으나, B를 0.3에서 0.7로 증가시키에 따라 -8°C에서 40°C 까지 상승하였으며, 저장탄성률은 A와 B가 증가함에 따라 커졌다. 저장탄성률에 대한 A의 영향은 유리전이온도보다 낮은 온도에서 매우 크며, B의 영향은 전이온도보다 높은 온도에서 현저하다. 특히 A에 따른 저장탄성률 변화는 충전밀도 변화의 전이영역에 해당되는 조성영역에서 매우 급격했으며, 저장 탄성률 변화곡선의 변곡점은 측정온도가 올라감에 따라 높은 값쪽으로 이동하였다.

ABSTRACT

Alumina tapes, having various ratios of alumina to alumina+binder+plasticizer(A ratio) and binder to binder+plasticizer(B ratio), were prepared by the tape casting method. A Dynamic Mechanical Thermal Analysis was employed to investigate influence of organic additive composition on glass transition temperature and storage moduli. The transition temperature was not changed by A ratio but increased from 8°C to 40°C as B ratio increased from 0.3 to 0.7. The modulus was increased as both A and B ratios increased. The influence of A ratio on the modulus was most significant at temperatures lower than the glass transition temperatures and that of B ratio was typically vivid higher than the transition temperatures. Especially, the storage modulus curve was increased abruptly at A ratio range where increasing rate of packing density with increasing A ratio was changed. The inflection point of the modulus curve as a function of A ratio was shifted slightly toward higher A values as measuring temperature increased.

Key words : Glass transition temperature, Storage modulus, Al_2O_3 tape.

1. 서 론

세라믹 테이프는 세라믹 분말에 결합하여 테이프의 강도를 높이는 결합제와 테이프의 유연성을 부여하는 가소제가 첨가된 세라믹/유기물 복합체로서 기판, package, MLCC 등의 제조에 사용되어 왔다.¹⁾ 세라믹 테이프의 유기 조성물은 Hook의 법칙을 따르는 탄성거동과 Newto-

nian 법칙을 따르는 점성거동의 혼합된 특성을 나타내는 점탄성체이므로 세라믹 테이프는 세라믹 함량과 유기물 조성에 따라 각 온도 조건에서 변형률, 탄성률 등의 변화를 일으킨다.²⁾ 유기물의 물리적 특성들은 조성, 구조 및 환경에 따른 분자이동이나 내부변화에 의한 이완과정 (relaxation process)에 크게 의존하며 열가소성 고분자인 결합제는 특히 분자절(molecular segment)의 장범위

협동운동(long-range cooperative motion)의 시작과 연관되는 유리전이온도를 전후하여 급격한 변화를 나타내는 것으로 알려져 있다.²⁾

세라믹 테이프의 유리전이온도 및 열·기계적 특성은 강도 및 변형률과 더불어 세라믹 성형공정에서 고려되어야 할 중요한 인자들이다,^{4,5)} 기존의 스프레이 분말 충전공정은 유기물의 부분적인 이동이나 재배열이 가능한 유리전이온도 이상에서 수행해야 한다고 보고되었고,⁶⁾ 이와관련되어 최근에는 groove metal die 상에서 정수압을 가하거나⁷⁾ M자형 몰드에서 열간 일축압력을 가하여⁸⁾ 세라믹 테이프의 응용을 입체 형상 제조에까지 확장하려는 연구가 보고된 바 있으나, 첨가 유기물 조성이 테이프의 유리전이온도 및 열·기계적 특성에 미치는 영향에 대한 체계적인 연구는 이루어지지 않고 있다.

세라믹 그린 테이프의 동적, 기계적, 열적 거동은 dynamic mechanical thermal analyzer (DMTA)를 이용하여 측정할 수 있다. DMTA는 온도와 주파수 변화에 따른 점탄성 거동을 이해하는 데 유용하여, 여러 종류의 분자 운동 뿐만 아니라 전이, 이완 공정, 구조적 불균일성 그리고 다상계에서 각 상 및 혼합물의 존재 형태 등에 민감하기 때문에 고분자 재료와 고분자/세라믹 복합체의 물성 측정에 많이 사용되고 있다.⁹⁻¹³⁾

본 연구에서는 DMTA 분석을 통해 알루미늄 분말의 함량비와 결합제와 가소제의 총함량 및 각각의 첨가비가 세라믹 테이프의 유리전이온도 및 동적 저장 탄성을에 미치는 영향을 관찰하였다.

2. 실험방법

알루미늄 분말(AL-M43, Sumitomo, Japan)의 평균 입경은 3 μm이고 순도는 99.9%였으며 용매로는 MEK (Methyl Ethyl Ketone) 66 vol%와 Etoh(Ethyl alcohol) 34 vol%를 혼합한 복합용매를 사용하였다. 분산제는 Solsperse 24000 SC(ICI Co, England)를 사용하였으며, 결합제는 PVB79(Polyvinyl Butyral 79, Monsanto, USA), 가소제는 DBP(Dibutyl Phthalate, Aldrich, USA)를 사용하였다. 결합제와 가소제의 총 첨가량과 조성비는 알루미늄에 대한 알루미늄과 유기물의 중량비(A; alumina/(alumina+polymers))와 결합제에 대한 결합제와 가소제의 중량비(B; binder/(binder+plasticizer))를 변화시켜 조절하였다. 유기물 조성에 따른 물성 변화 관찰은 알루미늄 테이프를 이용한 입체 형상 제조에 관한 연구¹⁴⁾에서 보고된 최적 조성인 A=0.816, B=0.444를 중심으로 행하였다. A는 0.750에서 0.850까지, B는 0.3에서 0.6까지 변화시켰으며, A를 변화시킬 때 B는 0.444로, B를 변화시킬 때 A는 0.816로 각각 고정하였다.

분산제, 가소제 및 결합제를 동시에 혼합하면 유기물들이 입자 표면에 경쟁적으로 흡착되어 완전한 분산을 어렵게 하기 때문에¹⁵⁾ 분산제, 용매, 알루미늄 분말을 알루미늄 불을 사용하여 불 밀링으로 4시간동안 1차 혼합한 후 결합제, 가소제를 첨가하고 20시간 동안 2차 혼합하여 균일한 슬러리를 제조하였다. 혼합된 슬러리는 진공 탈포 후 닥터 블레이드 장치를 이용하여 Mylar 필름 위에 테이프 성형하였다. 테이프 운반 속도는 30 cm/min였고 blade의 높이는 1.35 mm였으며, 캐스팅한 테이프는 상온의 convection chamber에서 건조하였다. 테이프의 세라믹 분말 충전 밀도(P)는 다음 식을 따라 결정하였으며, 성형밀도는 수정된 아르키메데스법¹⁾으로 측정하였다.

$$P = \frac{D_g \cdot R_a}{D_{th}}$$

D_g : 테이프의 성형밀도

R_a : 테이프 내의 알루미늄 분말의 무게 비율

D_{th} : 알루미늄의 이론밀도

저장탄성을 및 손실인자의 열간 기계적 특성 관찰은 dynamic mechanical thermal analyzer MKII(Polymer Laboratories, Ltd., U.S.A)를 사용하여 면적 50 mm×10 mm, 두께 약 0.5 mm의 시편을 -50°C까지 냉각시킨 후 1 Hz의 주파수에서 3°C/min의 승온속도로 60°C까지 가열하면서 bending mode에서 측정하였다.

완전 탄성체에 사인파 응력(sinusoidal stress)이 가해질 때 변형은 응력에 대하여 같은 위상(in-phase)에서 일어나며 동적 복소탄성률(complex dynamic modulus: E^*)은 저장탄성을 성분만이 존재하므로 응력량(stress amplitude)/변형량(strain amplitude)의 비로 나타낼 수 있다. 그러나 내부 분자 운동이 일어나는 재료는 가해지는 응력에 대해 점탄성적인 거동을 하여 변형이 위상차(out-phase)를 나타낸다. 따라서 점탄성체의 동적 복소탄성률은 완전 탄성과 완전 점성, 즉 저장탄성률(storage modulus: E')과 손실탄성률(loss modulus: E'') 성분의 합으로 표현되고, 두 성분간의 위상차 δ 에 따른 손실인자(loss factor)는 무차원의 값으로 다음 식과 같이 나타낸다.¹⁶⁾

$$\tan \delta = E''/E'$$

온도에 따른 손실인자변화는 분자운동에 매우 민감하며, 이완 또는 비탄성 스펙트라라고 불린다. 유리전이영역에서 분자절(molecular chain segment)의 일부는 자유로우나 나머지는 고정되어 있으며 고정된 분절은 자유로운 분절보다 가해진 변형으로부터 더 많은 에너지를 저장 에너지화 할 수 있다. 이 고정된 분절은 응력이

가해질 때마다 이동할 수 있도록 자유로워져 그 여분의 에너지는 열로써 방출하여, 손실인자 $\tan \delta$ 는 피크를 나타내고, 피크의 극대값이 유리전이온도에 해당된다.¹⁷⁾

3. 결과 및 고찰

3.1. 알루미늄의 함량에 따른 열적 기계적 특성 관찰

Fig. 1은 여러 알루미늄/(알루미늄+유기물) 조성비(A)에서 기계적 손실인자를 온도의 함수로 나타낸 결과이다. 알루미늄 함량이 증가함에 따라 피크 위치는 거의 변하지 않았고 높이와 면적이 감소함을 보아, 전이온도의 큰 변화는 일어나지 않고 손실률이 감소함을 알 수 있다. 전이온도를 테이프에서의 알루미늄 함량의 함수로 Fig. 2에 나타내었는데 측정된 세라믹 함량 범위 내에서 유리전이온도는 분말 함량에 거의 영향을 받지 않음을 알 수 있다. 세라믹 테이프의 유리전이온도에 대한 영향은 논쟁의 대상으로 많은 연구에서 세라믹 분말의 첨가는 고분자의 이동도를 낮추고 고정하는 세라믹분말 표면에서의 장범위 응력 소실로 유리전이 온도를 증가시킨다고 보고되는 반면 다른 연구들에서는 유리전이는 기술적으로 의미 있는 첨가량의 한계 내에서는 세라믹 분말함량에 사실상 영향을 미치지 않는다고 보고되었다.¹⁸⁾

Fig. 3에 여러 알루미늄/(알루미늄+유기물) 조성비에서 온도에 따른 동적 저장 탄성률(E')의 변화 결과를 나타내었다. 세라믹 테이프의 기계적 특성은 예상되는 바와 같이 알루미늄 분말 함량이 증가함에 따라 높은 저장 탄성률을 보였으며 분말 첨가비가 가장 큰 조성(A=

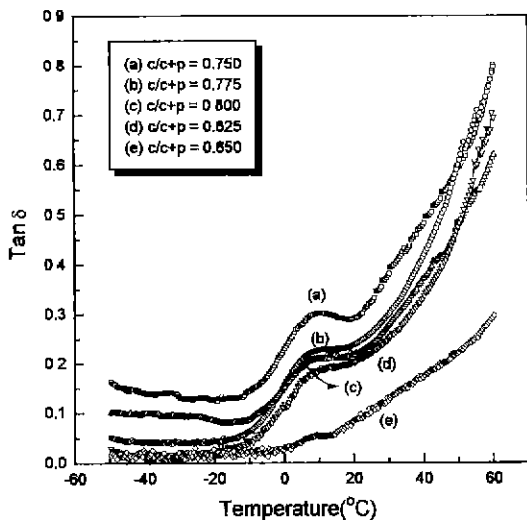


Fig. 1. $\tan \delta$ spectra of Al_2O_3 green tapes with various $\text{Al}_2\text{O}_3/(\text{Al}_2\text{O}_3+\text{polymer})$ weight ratios as a function of temperature.

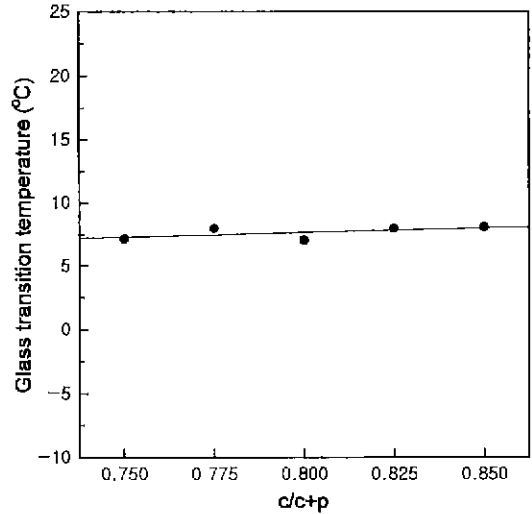


Fig. 2. Effect of $\text{Al}_2\text{O}_3/(\text{Al}_2\text{O}_3+\text{polymer})$ weight ratio on glass transition temperature of Al_2O_3 green tapes containing the fixed weight ratio of binder to plasticizer at 0.444.

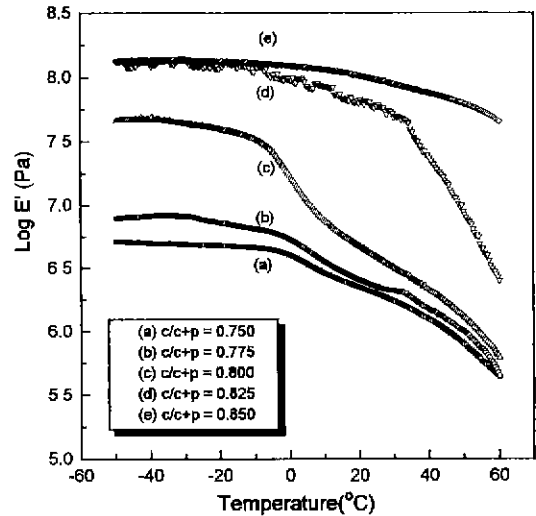


Fig. 3. Log storage modulus of Al_2O_3 green tapes of various $\text{Al}_2\text{O}_3/(\text{Al}_2\text{O}_3+\text{polymer})$ weight ratios as a function of temperature.

0.85)을 제외한 모든 조성에서 온도가 올라감에 따라 유리상태와 고무상태를 나타내며 그에 따라 탄성률 등의 특성에 큰 변화가 관찰되는 일반적인 열가소성 고분자와 유사한 거동을 보였다. 충분히 낮은 온도에서 유기 조성물의 고분자 사슬은 움직임이 극히 제한되어 있으므로 세라믹 테이프는 딱딱한 유리와 같은 상태(glassy state)를 유지하며 일정 범위 내에서 온도가 증가하여도

저장탄성률은 일정한 값을 나타낸다. 온도가 증가하여 유리전이온도 부근에 이르면 고분자 사슬의 말단 또는 반복단위 몇 개로 이루어진 분절 등이 부분적으로 움직이기 시작하여 세라믹 테이프의 저장탄성률이 불연속적으로 감소함을 Fig. 3에서 관찰할 수 있다. 유리전이온도를 넘어 온도가 더욱 높아지면 테이프 내 고분자 사슬들의 분절운동은 쉬워지나 높은 분자량으로 인해 여전히 서로 얽혀서 실질적 유동은 불가능하므로 고무와 같은 상태(rubbery state)를 유지한다. rubbery state에서 A=0.750, 0.775, 0.800 조성의 세라믹 테이프는 온도 증가에 따라 저장탄성률이 비슷한 경향으로 감소하였으며, A=0.825 조성의 세라믹 테이프는 저장탄성률이 급격히 감소하나 60°C에서 A=0.750, 0.775, 0.800 조성의 값 보다는 높은 탄성률을 나타내었다. 측정된 온도 내에서 A=0.850 조성의 테이프는 온도가 증가하여도 저장탄성률의 변화가 거의 없음을 관찰되었으며 이것은 테이프 내 유기 조성물 함량이 매우 낮아서 온도변화에 대한 유기물 거동이 제한되기 때문이다. 측정된 범위 이상으로 온도가 더욱 높아지게 되면 고분자 사슬들의 운동이 더욱 활발해져서 서로 얽혀 있던 고분자 사슬들이 풀리고 세라믹 분말 첨가에 의한 저장탄성률 증가 효과가 사라지게 되어 세라믹 테이프는 점성상태(viscous state)가 된다.

Fig. 4는 여러 측정 온도에서 테이프의 저장탄성률 변화를 알루미늄 분말 함량의 함수로 나타낸 결과이다. 각 측정온도에서 세라믹 테이프의 저장탄성률은 알루미늄 함량이 많아짐에 따라 조금씩 증가하다가 일정조성을 지나며 급격히 상승한 후 다시 조금씩 증가하는 경향을

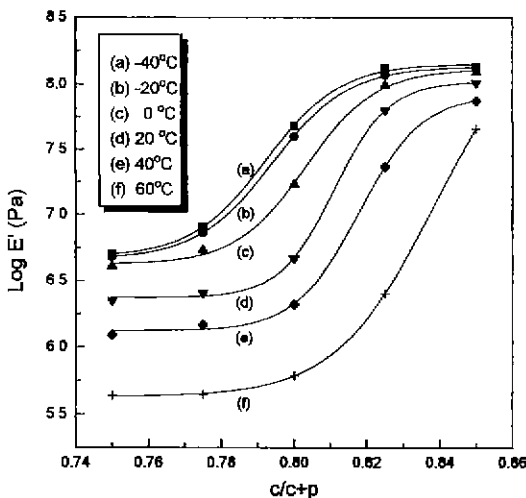


Fig. 4. Effect of Al₂O₃/(Al₂O₃+polymer) weight ratio on log storage modulus of Al₂O₃ green tapes at various temperatures.

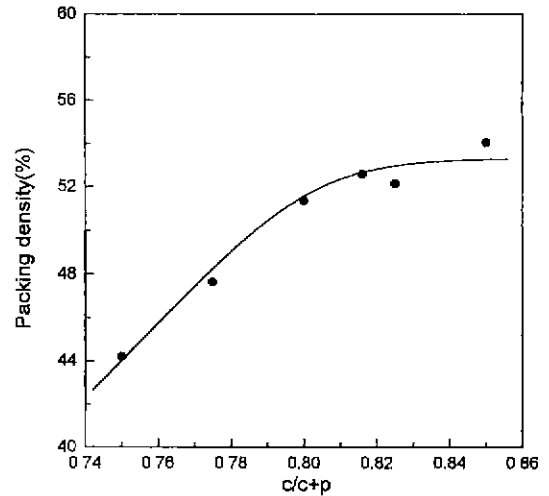


Fig. 5. Effect of Al₂O₃/(Al₂O₃+polymer) weight ratio on packing density of tapes containing a fixed weight ratio of binder to plasticizer at 0.444. The density was measured at room temperature.

보인다. 이러한 세라믹 테이프의 저장탄성률 변화는 Fig. 5에 보인 알루미늄 함량에 따른 충전밀도 변화와 밀접한 관계가 있다. 알루미늄 부피 분율의 증가 즉, 유기물 감소에 따라 충전밀도가 증가하는 조성영역에서는 알루미늄 입자간 거리 단축에 의해 저장탄성률이 완만히 증가하였으며 충전밀도 증가율이 변화하는 전이영역에서 저장탄성률의 급격한 변이가 일어났다. 유기물 분율에 상관없이 충전밀도가 일정한 조성 영역에서는 알루미늄 입자간 거리 감소가 일어나지 않으며¹⁹⁾ 저장탄성률은 증가율의 감소를 보이며 수렴하는 경향을 나타내었다. Fig. 4의 조성에 따른 저장탄성률의 급격한 증가와 유사한 기계적 물성변화가 Descamps 등²⁰⁾에 의해 보고된 바가 있다. 이에 따르면 알루미늄 그린 테이프의 인장강도는 유기물량에 대한 함수로써 전이영역에서 급격히 증가하여 최대값을 나타낸 후 감소하며, 이러한 현상은 알루미늄 함량비 증가에 따라 급격히 증가하는 분산강화 효과가 기공 등의 결함발생에 기인하는 강도 저하 효과에 의해 상쇄되어 일어나는 것으로 설명되었다.

전이영역에서 저장탄성률의 급격한 증가는 유기물의 함량이 감소함에 따라 변형 및 거동이 국소적으로 제한되기 때문으로 생각되며, 저장 탄성률 변화 곡선의 변곡점의 A값은 측정 온도에 따라 -40°C에서 0.792, -20°C에서 0.794, 0°C에서 0.803, 20°C에서 0.811, 40°C에서 0.818, 60°C에서 0.839였다(Fig. 4). 측정 온도가 높을수록 변곡점이 높은 세라믹 분말 함량 (A)으로 이동하는 것은 온도 증가에 따른 유기물의 변형을 증가에 기인하는 것으로 생각된다. 이 변곡점의 조성은 입체형상 제

조 시 매우 중요한 인자이며,¹⁰⁾ 그 이동은 입체성형이 가능한 한계 알루미늄 함량의 증가를 의미한다.

3.2. 결합제와 가소제의 첨가비에 따른 열간 기계적 특성

Fig. 6는 결합제/(결합제+가소제) 조성비(B)에서 손실인자 변화를 온도의 함수로서 관찰한 결과이다. 가소제가 조성물로서 첨가되는 계에서 피크 위치와 피크의 높이가 절반이 되는 곳(half-maximum)에서의 폭이 가소효과와 척도로 사용되며,²¹⁾ 이를 B 조성을 조절한 그린 테이프의 관찰에 적용하였다. B 값이 클수록 즉, 결합제의 상대량이 많을수록 손실인자 변화곡선에서 damping 피크는 고온으로 이동하고 그 폭이 감소하는 뚜렷한 차이를 나타내었다. 이러한 효과는 B 값은 일정하게 유지하고 A 조성을 조절했을 때 피크 위치의 변화가 거의 관찰되지 않는 Fig. 4의 결과와 대별되었다. 손실인자 변화 곡선에서 극대값에 해당되는 유리전이온도는 결합제의 첨가량 증가에 따라 직선적으로 증가하여²²⁾ -8°C에서 40°C 까지의 변화를 나타내었다(Fig. 7). B 값이 작을수록 즉, 가소제의 첨가량이 상대적으로 클수록 유리전이온도가 낮은 값을 나타내는 것은 가소제가 운동이 제한된 고분자 사슬에 비해 큰 자유부피를 지녀 고분자 사슬이 움직일 수 있는 공간을 제공하며 또한 고분자 사슬 사이에 분산되어 고분자 사슬들을 서로 분리시키므로 고분자 사슬의 자유부피를 증가시키기 때문이다.²³⁾

Fig. 8은 결합제/(결합제+가소제) 조성비를 달리하여 온도에 따른 저장탄성을 변화를 관찰한 결과이다. B 조성비를 변화시킨 그린 테이프들은 가소제 함량에 따라

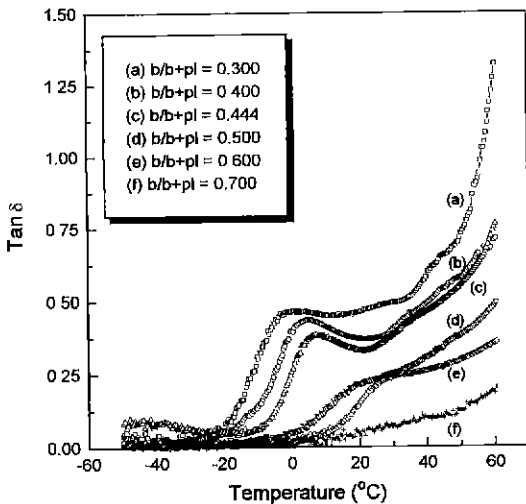


Fig. 6. Tan δ spectra of Al_2O_3 green tapes with various binder/(binder+plasticizer) weight ratios as a function of temperature.

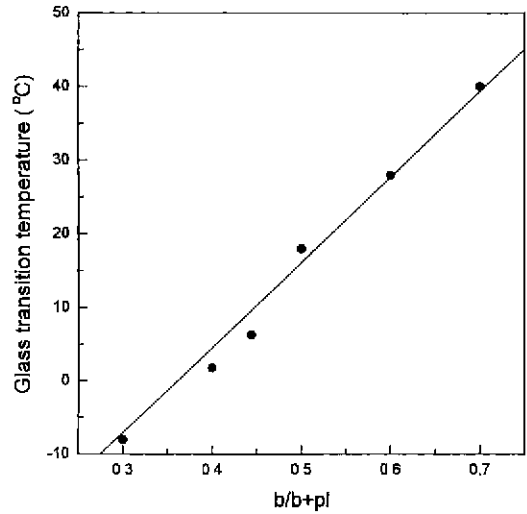


Fig. 7. Effect of binder/(binder+plasticizer) weight ratio on glass transition temperature of Al_2O_3 green tapes containing the fixed weight ratio of alumina to polymer at 0.816.

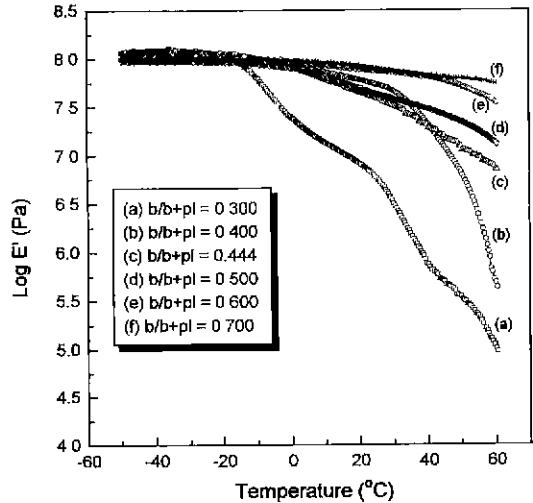


Fig. 8. Log storage modulus of Al_2O_3 green tapes with various binder/(binder+plasticizer) weight ratios as a function of temperature.

결정되는 각 조성의 유리전이온도 이하에서 유리상태를 나타내었으며 저장 탄성을 일정하게 유지하였다. 각 조성의 테이프가 유리전이온도에 다르면 저장탄성은 감소하기 시작하였다. B 값이 작을수록 즉, 가소제 함량이 큰 조성일수록 유리전이온도가 낮기 때문에 저장탄성을 감소가 일찍 일어났으며, 고분자 분절 운동 활성화로 급격하게 감소하였다.

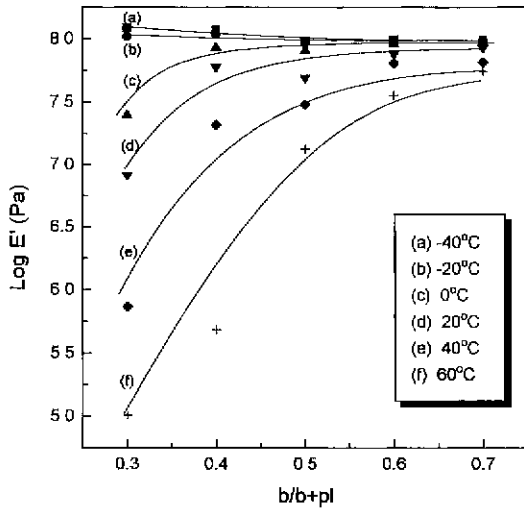


Fig. 9. Effect of binder/(binder+plasticizer) weight ratios on log storage modulus of Al₂O₃ green tapes at various temperatures.

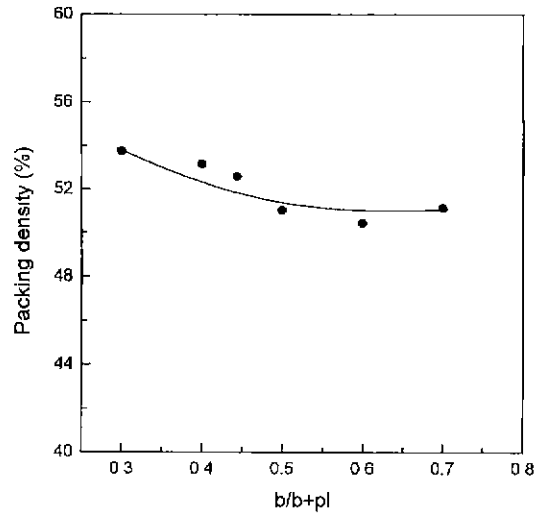


Fig. 10. Effect of binder/(binder+plasticizer) weight ratio on packing density of Al₂O₃ green tapes containing the fixed weight ratio of Al₂O₃ to polymer at 0.816. The density was measured at room temperature.

알루미나 그린 테이프의 저장 탄성률을 각 측정온도에서 조성의 함수로 나타낸 결과를 Fig. 9에 나타내었다. 테이프가 유리상태인 -40°C(Fig. 9(a))와 -20°C(Fig. 9(b))의 측정온도에서 그린 테이프의 저장탄성률은 조성에 따라 감소하였다. B 비의 증가에 따른 저장탄성률 감소는 충전밀도 저하에 기인하는데, 알루미나 테이프의 충전밀도는 Fig. 10에서 보이는 바와 같이 B 값의 증가에 따라 감소하다 일정한 값을 나타내었다. 이러한 충전밀도 감소 현상은 유기물 총합량을 일정하게 하고 결합제와 가소제의 비를 변화시킬 때 가소제의 윤회 효과에 따른 충전밀도 변화에 관한 Antolini 등의 보고와 일치한다.²⁴⁾ 그러나 B 값에 따른 충전밀도 변화는 유기물 총량을 일정하게하고 결합제와 가소제의 상대비만 조절하였기 때문에 A 값에 따른 충전밀도 변화(Fig. 3)에서 보다 작은 범위의 변화를 나타내었으며, 따라서 그에 따른 탄성률 감소도 매우 작았다. 측정온도가 알루미나 그린 테이프의 유리전이온도보다 높을 때 분자절이 활성화되어 충전밀도변화에 따른 저장 탄성률 감소 효과를 상쇄시키는 것에서 알 수 있듯이, 측정온도와 조성이 저장탄성률을 결정하는 주된 인자로 작용하였다. 탄성률은 측정 온도가 높을수록 낮은 값을 나타내었으며, B 값이 커짐에 따라 증가하였다. 각 측정온도에서 유리전이온도에 이르지 않아 활성화되지 않은 조성의 테이프는 일정한 값에 수렴하였다. 결합제 함량에 따른 탄성률 변화는 알루미나 함량에 따른 탄성률 변화(Fig. 2) 처럼 일정한 증가 폭선을 정확하게 따르지는 않았으며, 탄성률이 조성에 항상 비례하여 증가하지 않는 경우

도 관찰되었다(Fig. 9(c), (d)). 그러나, 온도가 증가하면 B 조성비의 증가에 따라 커지다가 수렴하는 거동을 따르는 것을 관찰할 수 있었다(Fig. 9(e), (f)).

B=0.7인 조성에서 측정 온도에 따른 저장탄성률의 차이는 매우 적었다. 이것은 결합제에 가소성분을 첨가할 때에는 기계적 특성 변화가 나타나기 시작하는 최소량의 가소제의 양이 존재하며 이를 가소화분계점(plasticization threshold)²¹⁾이라 하는데, B=0.7인 조성이 이에 해당된다. 따라서 결합제로 PVB를, 가소제로 DBP를 사용하여 제조한 알루미나 그린 테이프에서는 B가 0.7 이하인 조성에서 가소제 첨가에 의한 물성변화가 기대됨을 알 수 있었다.

4. 결 론

알루미나 량과 유기물 조성에 따른 알루미나 그린 테이프의 유리전이온도 및 저장탄성률 변화를 dynamic mechanical thermal analysis로 관찰하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 유리전이온도는 알루미나 함량비(A)가 0.75~0.85인 범위에서 A에 관계없이 거의 일정한 값을 나타내었으나, 결합제 대 가소제의 비(B)는 0.3~0.7에서 가소제의 양에 따라 -8°C에서 40°C까지 직선적으로 증가하였다.
2. 알루미나 그린 테이프의 저장탄성률은 A 조성비의 증가에 따라 충전밀도가 증가하는 영역에서는 조금씩 증

가하였으나 열간 기계적 거동이 상당량 제한되는 임계조성을 중심으로 급격하게 증가하였다. A 조성비의 함수로 나타낸 저장탄성률 곡선의 변곡점은 측정된 온도가 높을수록 유기물 활동도 증가로 인해 세라믹 함량이 높은 조성 쪽으로 이동하였다. 입자간 거리감소가 더 이상 일어나지 않아 충전밀도가 일정한 영역에서 저장탄성률은 다시 알루미늄나 함량 증가에 따라 조금씩 증가하였다.

3. 알루미늄나 그린 테이프의 저장탄성률은 B 조성비의 증가에 따라 매우 낮은 측정 온도에서는 충전밀도 감소에 비례하여 조금씩 감소하였으나, 유리전이온도 이상에서는 급격히 증가하다가 가소화 분계 조성에서 수렴하는 경향을 나타내었다.

감사의 글

본 연구는 보건복지부의 G7 의료공학기술연구개발사업의 지원으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

REFERENCES

1. R. E. Mistler, D. J. Shanefield and R. B. Runk, "Tape Casting of Ceramics," pp 411-448, in *Ceramic Processing before Firing*, Ed. by G. Y. Onoda and L. L. Hench, Wiley, New York, 1978.
2. Patrick K. Gallagher, "Thermoanalytical Methods" in *Material Science and Technology, Characterization of Materials Part I*, pp 536-542, Ed. by R. W. Cahn, P. Hasssen and E. J. Kramer, VCH Inc, New York, 1992.
3. J. J. Aklonis and W. J. Macknight, "Time-Temperature Correspondence" in *Introduction to Polymer Viscoelasticity*, pp 36-45, John Wiley & Sons Inc, New York, 1983.
4. Susan Forte, John R. Morris, Jr. and W. Roger Cannon "Strength of Tape Casting Tapes," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **64**(5), 724-25 (1985).
5. Angela Karas, Toshiya Kumagai and W. Roer Cannon, "Casting Behavior and Tensile Strength of Cast BaTiO₃ Tape," *Adv. Ceram. Mater.*, **3**(4) 374-77 (1988).
6. Robert A. Dimilia and James S. Reed. "Dependence of Compaction on the Glass Transition Temperature of the Binder Phase," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **62**(4) 484-488 (1983).
7. N. M. Sammes and R. Ratnaraj "New Process for Fabricating Interconnect Plate for a Planar Solid Oxide Fuel Cell," *J. Mater. Sci. Lett.*, **13**, 678-679 (1994).
8. K. P. Plucknett and C. H. Careres, C. Hughes, D. S. Wilkinson, "Processing of Tape-Cast Laminates Prepared from Fine Alumina/Zirconia Powders," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77**(8), 2145-53 (1994).
9. Li Dean and Josee Brisson, "DMTA and FTIR Investigation of the Phase Behavior of Poly(methyl methacrylate)-poly(4-vinylphenol) Blends," *Macromolecules*, **29**(3), 868-874 (1996).
10. K. E. Atkinson and C. Jones, "Study of the Interphase Region in Carbon Fiber/epoxy Composites using Dynamic Mechanical Thermal Analysis," *J. Adhe.*, **56**(1-4), 247-260 (1996).
11. A. C. Karmaker, A.T.Dincnedetto and A. J. Goldberg, "Extent of Conversion and Its Effect on the Mechanical Performance of Bis-GMA/PEGDMA-based Resins and Their Composites with Continuous Glass Fibres," *J. Mater. Sci.: Mater.*, **8**(6), 369-374 (1997).
12. Jyongsik Jang and Jicun Yi. "A Dynamic Mechanical Thermal Analysis on Allylester Polymers and Filled with Alumina," *J. Appl. Poly. Sci.*, **61**, 2157-2163 (1996).
13. A. Amash and P. Zugenmaier, "Thermal and Dynamic Mechanical Investigation on Fiber-Reinforced Polypropylene Composites," *J. Appl. Poly. Sci.*, **63**, 1143-1154 (1997).
14. D.-J Kim, M.-H Lee and C.-E Kim, "Fabrication of In-Ceram Core by Sheet Forming Process," *Bioceramics*, **10**, 211-214 (1997).
15. Rodrigo Moreno, "The Role of Slip Additives in Tape Casting Technology: Part II-Binder and Plasticizers," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **71**(11), 1647-1657 (1992).
16. R. E. Wetton, "Dynamic Mechanical Method in the Characterization of Solid Polymers," *Polymer Testing*, **4**, 117-129 (1984).
17. Takayuki Murayama, "Molecular Interpretation," in *Dynamic Mechanical Analysis of Polymeric Material*, pp 60-96, Elsevier, New York, 1978.
18. Shalaby W. Shalaby, "Thermoplastic Polymers," in *Thermal Characterization of Polymeric Materials*, pp 235-354, Ed. by Edith A. Turi. Academic Press, New York, 1981.
19. R. A. Gardner and R. W. Nufer "Properties of Multilayer Ceramic Green Sheets," *Solid State Tech.*, May, 38-43 (1974).
20. M. Descamps, G. Ringuet and D. Legerm B. Thierry, "Tape-casting: Relation Between Organic Constituents and the Physical and Mechanical Properties of Tapes," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **15**, 357-362 (1995).
21. J. K. Sears and J. R. Darby, "Plasticizer Effects in PVC: Effects on Physical Properties," in *The Technology of Plasticizers*, pp 297-356, John Wiley & Sons Inc, New York, 1982.
22. M. C. Shen and A. V. Tobolsky, "Glass Transition Temperature of Polymers," in *Plasticization and Plasticizer Process*, pp 27-34, America Chemical Society, Washington. D. C., 1965.
23. J. Borek, W. Osoba, "Free Volume in Plasticized Polyvinyl Chloride," *J. Poly. Sci.: Part B*, **34**, 1903-1906 (1996).
24. E. Antoloni, M. Ferretti and S. Gemme, "Preparation of Porous Nickel Electrodes for Molten Carbonate Fuel Cells by Non-aqueous Tape Casting," *J. Mater. Sci.*, **31**, 2187-2192 (1996).