

Micro Fourier Rheometer에 의한 알루미나 그린 테이프의 Complex Modulus 측정

이정훈 · 이명현* · 김창은 · 김대준*
Michael V. Swain** · Bruno Pfister**

연세대학교 세라믹공학과

*한국과학기술연구원 세라믹스연구부

**호주 CSIRO Telecommunication & Industrial Physics
(1998년 9월 18일 접수)

Complex Modulus of Alumina Green Tapes Measured by Micro Fourier Rheometer

Jeong-Hoon Lee, Myung-Hyun Lee, Chang-Eun Kim, Dae-Joon Kim*,
Michael V. Swain** and Bruno Pfister**

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

*Ceramics Division, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791, Korea

**Acoustics & Mechanical Group, Telecommunication & Industrial Physics, CSIRO, Australia

(Received September 18, 1998)

초 록

알루미나 분말/(알루미나+결합제+가소제)의 비(X)와 결합제/(결합제+가소제)의 비(Y)를 각각 변화시켜 제조한 알루미나 그린 테이프의 complex modulus를 Micro Fourier Rheometer를 이용하여 측정하였다. X와 Y의 증가에 따라 Transfer function(TF) magnitude는 증가하고 Transfer function(TF) phase는 감소하는 경향을 보였으며 이로부터 X비와 Y비의 증가가 테이프의 탄성을 증가시키는 요인임을 알 수 있었다. 온도가 증가함에 따라 알루미나 테이프의 TF magnitude는 작아지고 TF phase는 커지는 것으로부터 테이프의 점성이 증가함을 알 수 있었다. 특히 Y비에 따른 complex modulus의 변화는 유리전이온도와 관련이 있으며 변화값은 측정 조성 범위 내에서 X비에 의한 변화값보다 큼을 볼 수 있었다. complex modulus 측정을 통하여 알루미나 테이프의 성형이 가능하기 위해서는 TF phase 값이 17° 이상이어야 함을 유추할 수 있었다.

ABSTRACT

Alumina tapes, having various weight ratios of alumina powder/(alumina+binder+plasticizer), X, and binder/(binder+plasticizer), Y, were prepared and their complex modulus was measured using Micro Fourier Rheometer. As the X and Y ratios increased, Transfer function(TF) magnitude and Transfer function(TF) phase increased and decreased, respectively, indicating that the elastic modulus of the tapes depends on the weight ratios. The temperature dependence of the viscosity of the tapes was visualized by the decreased TF magnitude and the increased TF phase. The Y ratio dependence of the complex modulus related to the glass transition temperature of the tapes and the modulus change by the Y ratio was higher than that by the X ratio within the composition range, investigated in the present study. The measurement of the complex modulus of the alumina tapes suggested that the TF phase should be higher than 17° for the tapes to be utilized for 3-dimensional shaping.

Key words : Complex modulus, Alumina green tape, Binder, Plasticizer

1. 서 론

세라믹 테이프는 주로 닥터 브레이드법에 의해 제조되며 제조된 세라믹테이프는 기관뿐만 아니라 연료전지

의 전해질재료나 그밖의 여러 용도로써 널리 응용되고 있으나^{1,2)} 최근에 들어서는 세라믹 테이프의 응용범위가 기관의 2차원적인 형태를 벗어나 3차원의 입체 형상의 제조로 확대되고 있다.³⁾ 특히 정밀한 형태의 3차원구조

를 성형하는데 있어서 테이프의 기계적 특성이 중요함에도 불구하고 이에 대한 이해는 테이프의 인장강도 및 변형률 측정에 국한되었다. 이러한 특성 분석 외에도 세라믹 테이프의 물성은 점성을 지니는 유체나 유기물의 특성을 해석하는데에 사용되고 있는 complex modulus^{4,5)}를 통하여 평가될 수 있는 것으로 보인다. 그럼에도 불구하고 complex modulus에 의한 세라믹 테이프의 특성에 관한 연구는 발표된 바가 없으며 다만 테이프 제조용 슬러리의 물성을 complex modulus의 변화로부터 분석한 보고들은 있다.⁶⁾

점성 및 탄성을 동시에 갖는 특성인 점탄성(Viscoelastic)은 시간 및 온도에 의존하는 점성 유체(viscous fluid)와 탄성 고체(elastic solid)의 성질을 특징짓는다.⁴⁾ 일반적인 재료들은 완전 뉴턴 유체이거나 Hook의 법칙을 완전히 만족하는 고체로 존재하기보다는 두 가지 성질을 동시에 갖는 점탄성 재료로 존재하는데 이 두 성질의 합으로 표현되는 complex modulus, G^* , 는 elastic modulus를 실수 부분으로하고 점도관련 부분을 허수부분으로 하는 다음 식으로 나타낸다.⁵⁾

$$G^* = G'(w) + G''(w) = G'(w)[1 + i \eta(w)] \quad (1)$$

위의 식에서 실수부인 $G'(w)$ 는 elastic modulus와 관련된 storage modulus로서 에너지의 저장을 의미하며, 허수부인 $G''(w)$ 는 dynamic viscosity와 관련된 loss modulus로서 에너지 손실을 의미하는데 이를 damping factor라 한다. $\eta(w)$ 는 loss factor이며 $\tan[\delta(w)]$ 로 나타낸다. storage modulus는 Young's modulus와 관련하여 해석할 수 있으며 loss factor는 viscosity와 관련하여 해석될 수 있다. Fig. 1에 complex modulus의 개념을 복소평면에 나타내었다. storage modulus와 loss modulus 위상각(phase)과 절대값의 크기(magnitude)를 통하여 나타낼 수 있다. 위상각이 0인 재료는 완전 탄성 재료의 거동을 하는 물질이며 위상각이 90°인 재료는 뉴턴 거동을 만족시키는 물질이다. 복소평면상에서 나타난 magnitude와 phase의 실수축(X)과 허수축(Y)에 투영된 좌표값으로부터 이와 관련된 elastic modulus 및 viscosity를 각각 구할 수 있다. 이러한 두 에너지 요소가 결합된 형태인 complex modulus는 주로 점탄성 재료의 기계적인 특성을 측정하는데 광범위하게 응용되고 있다.

본 연구에서는 Micro Fourier Rheometer를 사용하여 알루미늄/(알루미늄+결합제+가소제)와 결합제/(결합제+가소제)의비에 따른 조성의 변화, 온도, 그리고 진동수에 따른 세라믹 그린 쉬트의 complex modulus 변화를 관찰하였다.

2. 실험방법

2.1.알루미늄 그린테이프의 제조

캐스팅용 슬러리는 Al_2O_3 (AL-43, Sumitomo, Japan)와 solvent(MEK 66wt%/EtOH 34wt%) 그리고 분산제(solsperse 24000SC, ICI, UK)를 약 4시간동안 1차혼합한 후 결합제로 PVB79(Butvar B-79, Monsanto, USA)를 가소제로 DBP(Dibutyl Phthalate, Aldrich, USA)를 넣고 약 20시간 2차혼합하여 이를 진공펌프를 이용하여 탈포하는 과정을 거쳤다. 불릴 용기로는 PP 재질의 bottle을 사용하였고, 알루미늄나뭇을 사용하여 혼합하였다. 이렇게 제조된 슬러리는 닥트브레이드법을 이용하여 그린 테이프로 제조되었다. 이때 캐리어 필름은 Mylar 필름을 사용하였고 캐스팅 속도는 30 cm/min였다. 본 실험의 대략적인 공정도는 Fig. 2와 같다. 본 실

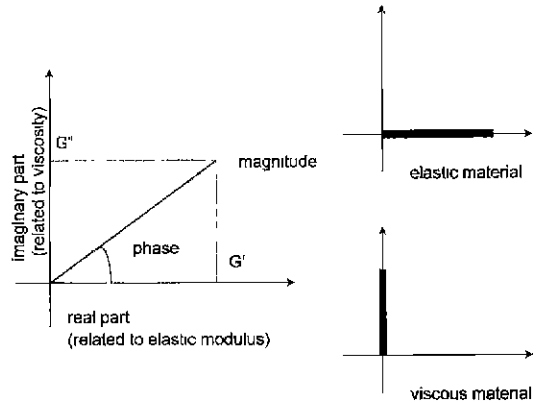


Fig. 1. Principle of complex modulus represented on complex plane.

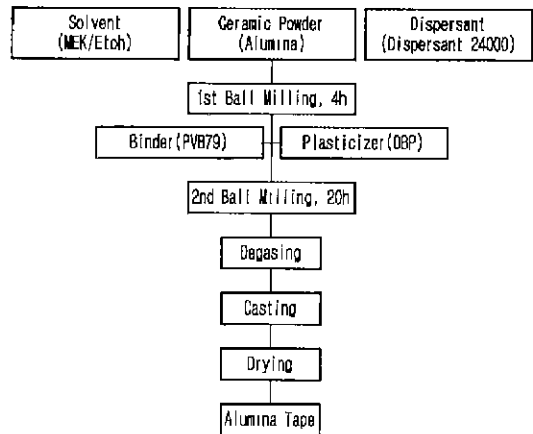


Fig. 2. Flow chart of the preparation of alumina sheets by tape casting.

험에서 첫째, 결합제와 가소제의 비{결합제/(결합제+가소제)}=Y는 0.444로 고정시킨후 알루미늄에 대한 알루미늄+결합제+가소제의 비{알루미늄/(알루미늄+결합제+가소제)}=X를 각각 0.75, 0.775, 0.8, 0.825로 변화시킨 테이프와 둘째, X비를 0.816으로 고정시킨 뒤 Y비를 각각 0.3, 0.4, 0.444, 0.5, 0.6, 0.7로 변화시킨 테이프를 제조하였다.

2.2. Micro Fourier Rheometer에 의한 complex modulus 측정

측정에 사용된 Micro Fourier Rheometer(MFR) 측정 기기 및 모식도를 Fig. 3에 나타내었다. 두 원형판 사이에 직경 2-15 mm의 재료를 넣은 뒤 harmonic squeezing technique법을 사용하여 원형 위판에 작은 amplitude를 주고 재료를 통해 원형 밑판에 전달되는 motion을 측정하는 MFR에 의한 측정이 J. Field 등에 의해 제안되었다.⁹⁾ 이때의 가한힘(force)과 변위(motion)에 따른 변위량(displacement)을 각각 Fast Fourier Transformation으로 변환시키고 난뒤 스펙트럼의 비로부터 변환함수(Transfer Function, TF)를 얻는다. 이를 다시 기준물질인 TF spring과 비교하여 equalized TF를 얻는데 여기서 구한 TF의 크기(magnitude)와 위상각(phase)으로부터

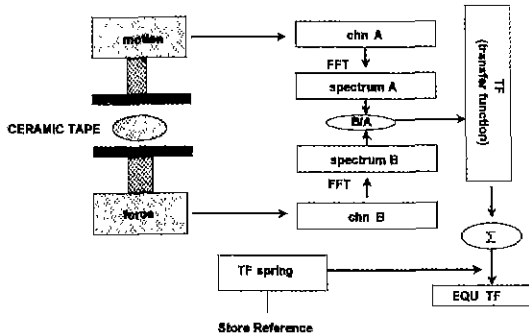
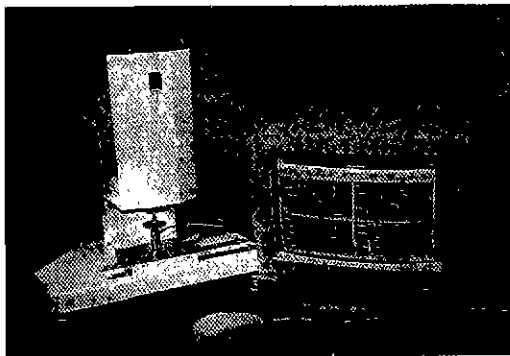


Fig. 3. MFR apparatus and schematic principle of operation.

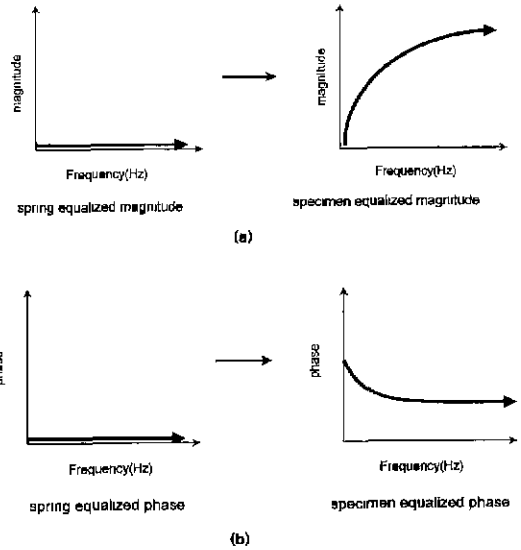


Fig. 4. (a) Spring and specimen equalized magnitude and (b) Spring and specimen equalized phase.

테이프의 complex modulus를 구할 수 있다. 원형판 사이의 점탄성 재료에는 내부 전단(internal shearing)이 발생하는데 이는 재료의 특성치이며 원형 위판에서의 가한 힘에 대한 원형 밑판에서의 변위를 Fourier 변환 함수로 변화시킴으로서 구할 수 있다. 여기서 사용된 TF spring을 완전 탄성체라 가정하여 magnitude를 1로 phase를 0으로 한후 실험하려는 시트 시편의 상대적 강도를 구하는 방법을 Fig. 4에 나타내었다. 이를 다시 복소평면으로 나타내면 각각의 진동수에서의 dynamic viscosity 및 storage modulus를 계산할 수 있다.

X비와 Y비를 달리하여 제조된 알루미늄 테이프의 complex modulus를 1-100 Hz 진동 구간에서 측정하였으며 측정온도를 25°C, 35°C, 45°C, 60°C로 변화시켜 온도에 따른 complex modulus의 변화를 관찰하였다.

3.결과 및 고찰

3.1. 알루미늄/(알루미늄+결합제+가소제)비에 따른 complex modulus의 변화

Y비를 0.444로 고정시키고 X비를 변화시켜 제조한 알루미늄 테이프들의 진동수에 따른 TF magnitude와 TF phase의 변화를 Fig. 5(a)와 Fig. 5(b)에 각각 나타내었다. X비의 증가 즉, 테이프내 알루미늄 분말 함량이 증가함에 따라 Fig. 5(a)의 TF magnitude는 증가하는 경향을 보이고 있으며 Fig. 5(b)의 TF phase는 감소하는 경향을 보였다.

TF magnitude는 진동수가 증가함에 따라 일정한 비

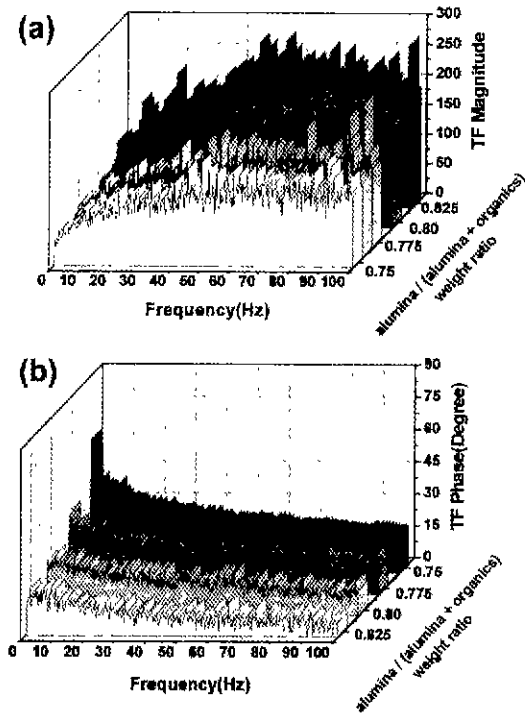


Fig. 5. Effect of alumina/(alumina+organics) weight ratio on (a) TF magnitude and (b) TF phase of alumina tapes having a fixed binder/(binder+plasticizer) ratio of 0.444 as a function of frequency at 25°C.

올로 증가하다가 증가의 폭이 줄어들어 일정한 값에 수렴해 가는 경향을 보였고, X가 0.75, 0.775, 0.80, 0.825로 알루미늄 함량이 많아짐에 따라 절대값의 크기가 증가하였으며, 이와 함께 진폭의 증가를 볼 수 있었다. 이는 테이프내의 알루미늄 함량이 커짐에 따라 유기물 양이 감소하고 따라서 유기물의 거동이 제약을 받기 때문에 사인 파형에 대한 응답 특성이 탄성재료와 유사하게 관찰되기 때문이다.

Fig. 5(b)의 TF phase는 점탄성의 특징을 가장 잘 나타내는 요소로써 storage modulus와 loss modulus가 같은 값을 갖는 45°를 기준으로 그 이상에서는 점성 거동이 그 이하에서는 탄성거동이 우세함을 보여준다. 따라서 진동수에 따른 TF phase의 변화를 통해 25°C에서 모든 조성의 알루미늄 테이프는 탄성거동이 더 우세함을 알 수 있다. 알루미늄 함량이 증가함에 따라 탄성으로의 변화가 뚜렷하게 관찰되며, 각 조성에서 진동수가 커짐에 따라 TF phase는 점근선적으로 감소하였다. X비의 증가, 즉 알루미늄의 함량이 증가함에 따라 점성에 영향을 미치는 유기물 거동의 제약을 가져오게 되며, 사인

파형의 pseudo random noise에 따른 TF phase의 진폭이 커지는 원인이 되었다.

A. Kristoffersson등⁶⁾은 테이프캐스팅 슬러리에 대한 complex modulus 관련 실험을 통하여 낮은 응력에서 탄성률이 일정하게 되는 선형 점탄성 영역을 갖는다고 보고하였다. 이는 알루미늄 그린 테이프의 경우도 슬러리에서와 같은 경향을 갖는 영역이 존재하며 높은 진동수 영역에서 TF magnitude와 TF phase가 일정한 값으로 유지되어 일정한 moduli를 갖는 선형 점탄성이 존재함을 보여주고 있다.

Y=0.444일 때 X비를 0.80로 고정시킨후 온도를 25°C, 35°C, 45°C, 60°C로 변화시켰을때의 TF magnitude와 TF phase를 각각 Fig. 6(a)와 Fig. 6(b)에 나타내었다. 일반적으로 유기물들의 유리전이온도는 유기물이 딱딱하고 부수어지기 쉬운 유리상영역(glassy region)에서 고무상영역(rubbery region)으로 변화하는 온도로 정의한다.⁷⁾ 알루미늄 테이프내의 유기물도 유리전이온도를 가지며, 이는 알루미늄 테이프에 직접적인 영향을 준다. 즉 온도가 증가함에 따라 알루미늄 입자를 둘러싼 유기물들의 점성이 증가하여 TF magnitude의

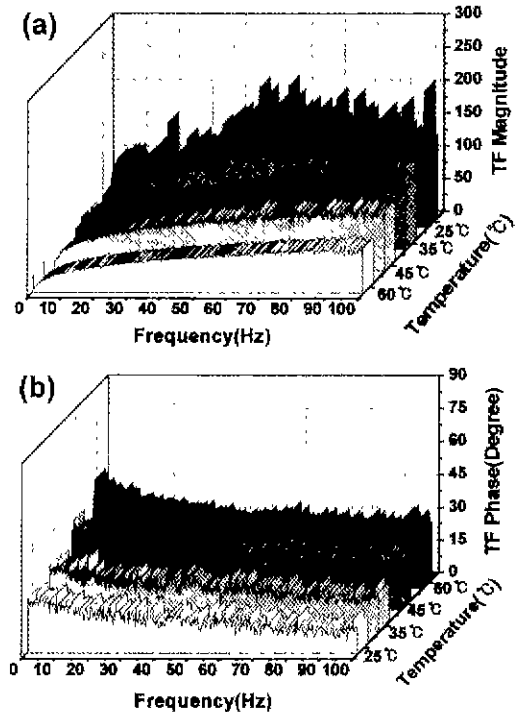


Fig. 6. Effect of temperature on (a) TF magnitude and (b) TF phase of alumina tapes having alumina/(alumina+organics) of 0.80 binder/(binder+plasticizer) ratio of 0.444 as a function of frequency.

감소와 TF phase의 증가를 가져온다. 상대적으로 낮은 온도에서는 유기물 거동의 상대적 제약으로 알루미늄 입자에 의한 탄성 거동이 우세하여 큰 진폭을 보였다. 이는 X비가 증가함에 따른 TF magnitude와 TF phase 변화의 결과와 같은 경향이며, 알루미늄 함량비와 더불어 온도 또한 테이프의 complex modulus에 영향을 주는 요소이며, 온도에 따른 변화량이 X비에 의한 변화량보다 더 큰 것으로 보아 테이프의 유동성에 더 큰 영향을 주는 요소임을 알 수 있었다.

Fig. 7은 진동수, 온도, 조성의 세가지 변수 중에서 진동수를 5 Hz로 고정시킨후 온도가 각각 25°C, 35°C, 45°C, 60°C일때의 알루미늄의 함량에 따른 TF magnitude와 TF phase 변화를 관찰한 결과이다. 일반적으로 진동수에 대한 complex modulus 측정시 낮은 진동수에서 측정되는 것으로 보고되고 있으며,⁹⁾ 1에서 100 Hz의 진동수 범위에서 5 Hz의 진동수는 비교적 낮은 진동수이면서 초기 진동수에 발생하기 쉬운 노이즈를 배제할 수 있기 때문에 기준이 되는 진동수로 선택하였다. 특히 5 Hz 근방의 낮은 진동수에서 TF magnitude 및 TF phase가 일정한 기울기를 가지며 증가, 감소하는 영

역이기 때문에 기준 진동수로 선택하였다. Fig. 7(a)에서 X비가 커짐에 따라 TF magnitude의 값은 증가하였으며 그 증가율은 측정온도가 올라감에 따라 감소하는 경향을 보인다. 한편 Fig. 7(b)에서 위상각은 X비가 증가함에 따라 감소하며 측정온도가 증가함에 따라 커지는 경향을 보이며 위상각의 증가량도 점점 커짐을 볼 수 있다. 25°C의 경우 X의 비가 증가함에 따라 TF magnitude는 일정하게 증가하고 있으며 점성-탄성 거동의 정도를 나타내는 TF phase는 X의 비가 증가함에 따라 위상각이 0쪽으로 점점 감소하는 탄성거동을 나타내었다. 이는 알루미늄 분말의 양이 증가함에 따라 사인파형의 진동수로부터의 응답특성이 점차 탄성체에 가깝게 나타나기 때문이다. 5 Hz에서 60°C의 경우 complex modulus의 절대값인 TF magnitude는 25°C의 경우보다 작은 결과를, 위상각은 25°C의 경우보다 큰 결과를 보였다. 즉, 온도가 올라감에 따라 complex의 절대값인 TF magnitude는 작아지고 TF phase인 위상각은 커지는데 이는 측정온도가 테이프내의 유기물의 유리전이온도인 18°C⁹⁾보다 커서 온도가 올라감에 따라 유기물의 점성거동이 커지기 때문이다.

유기물 조성에 따른 알루미늄 테이프의 인공치관 제조 응용에 관한 선행 연구³⁾로부터 X비와 Y비에 따른 성형가능성의 유무를 Fig. 8에 나타내었다. 25°C에서 Y비가 0.444일 때 테이프의 성형가능한 임계조성은 X=0.83이며 이 조성에서 Fig. 7(b)로부터 알루미늄 그린 테이프의 3차원성형을 가능하게 하는 점탄성 특성을 갖는 위상각은 약 17°임을 알 수 있다. 이 값을 기준으로

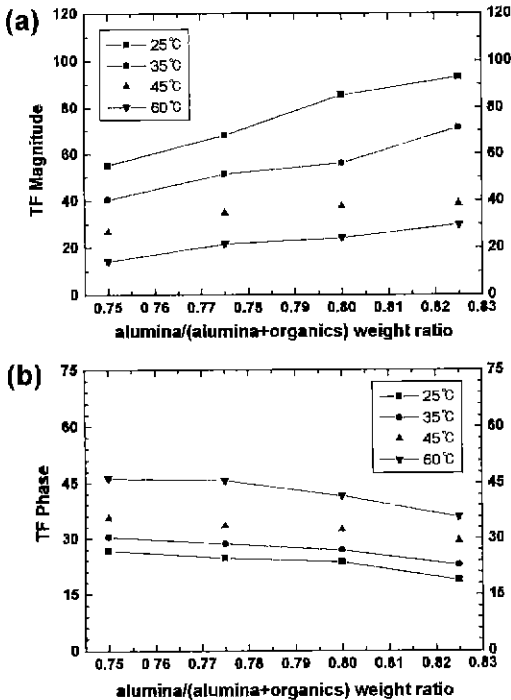


Fig. 7. Influence of temperature on (a) TF magnitude and (b) TF phase at 5 Hz as a function of alumina/(alumina+binder+plasticizer) ratio, where binder/(binder+plasticizer) was fixed to 0.444.

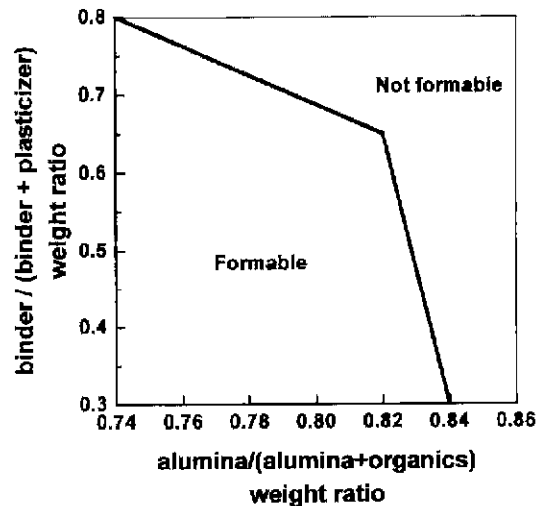


Fig. 8. Formable composition region as depicted by alumina/(alumina+organics) and binder/(binder+plasticizer) weight ratios.

25°C에서 위상각이 17° 이상이 되어야만 입체 성형이 가능한 점성, 즉 가소성을 가짐을 알 수 있다. 한편 성형온도가 25°C이상일 경우 X비가 임계조성인 0.83이상의 조성에서도 위상각이 Fig. 7(b)에서 알 수 있는 것처럼 17° 이상으로 커지기 때문에 3차원 성형이 가능하며 따라서 온도가 증가함에 따라 성형 가능한 조성 영역이 확장됨을 알 수 있다.

3.2. 결합제/(결합제+가소제)비에 따른 complex modulus 변화

Fig. 9(a)와 Fig. 9(b)에 X비를 0.816으로 고정시킨후 Y비를 변화시켰을 때의 진동수에 따른 TF magnitude와 TF phase의 변화를 각각 나타내었다. 결합제의 함량이 증가함에 따라 TF magnitude는 증가하는 경향을 보이며 TF phase는 90°에서 점차 0°에 가까워지는 경향을 보였다. 즉 테이프에서 결합제의 함량이 증가함에 따라 complex modulus의 절대값은 증가하고 재료는 점성 거동에서 점차 탄성거동으로 변화하고 있음을 알 수 있다. 특히 결합제와 가소제량의 비는 유리전이온도를 결

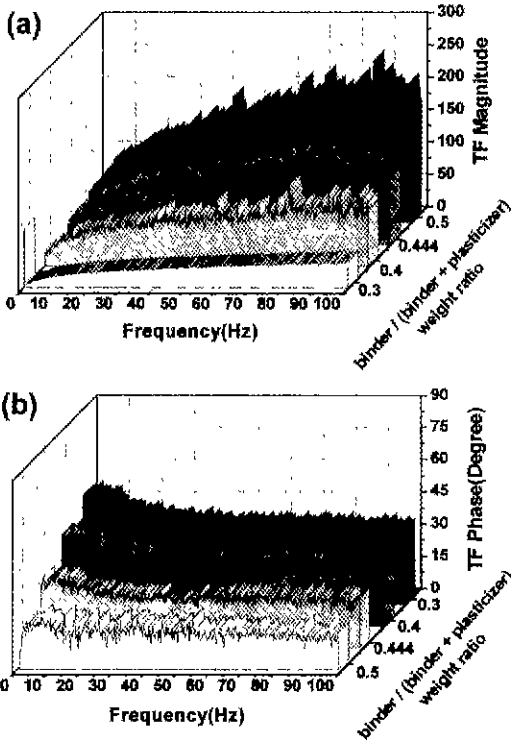


Fig. 9. Effect of binder/(binder+plasticizer) weight ratio on (a) TF magnitude and (b) TF phase as function of frequency at 25°C containing a fixed weight ratio of alumina to organics at 0.816.

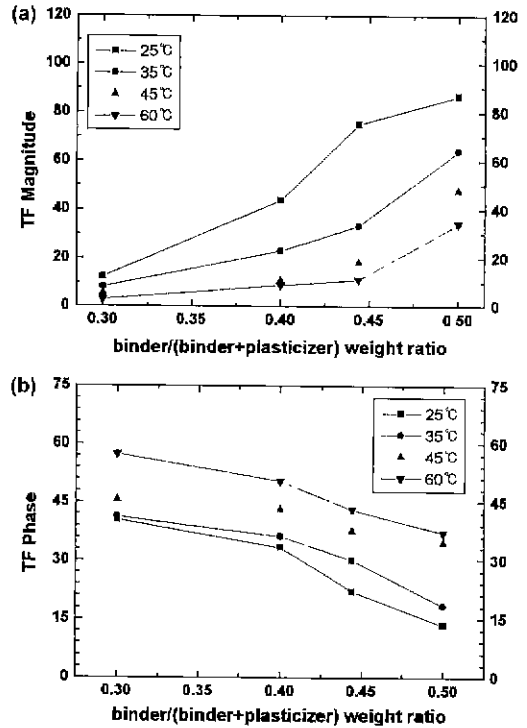


Fig. 10. Influence of temperature on (a) TF magnitude and (b) TF phase at 5 Hz of alumina tapes having a fixed alumina/(alumina+binder+plasticizer) ratio of 0.816 as a function of binder/(binder+plasticizer) ratio.

정하는 주된 인자로서 Y비의 감소 즉, 가소제량의 증가는 테이프 내의 유기물의 유리전이온도를 낮추는 역할을 한다.¹⁰⁾ 따라서 본 실험에서 행한 조성범위 내에서 Y비는 X비에 비해 complex modulus에 큰 영향을 미치는 인자로서 조성 및 온도에 대한 영향도 X비에 비해 크게 작용함을 Fig. 8과 Fig. 10을 비교해 봄으로서 알 수 있다.

X비를 변화시켜 관찰했을 때와 마찬가지로 높은 진동수 영역에서 TF magnitude와 TF phase가 일정한 값으로 유지되어 일정한 modulus를 갖는 선형 점탄성 영역을 보여주고 있다. 또한 결합제의 함량이 증가할수록 알루미늄 테이프의 탄성이 강하게 나타났으며 사인 파형의 진동수에 따른 응답 신호의 진폭 또한 크게 증가하였다. 이는 알루미늄과 유기물의 복합체인 알루미늄 그린테이프에 pseudo random noise로부터의 사인형태의 파장을 주었을 때 결합제의 양이 증가할수록 테이프의 specific damping 영향이 감소하기 때문이며¹²⁾ 이 결과로 테이프의 강도 및 elastic modulus는 증가하게 된다.

Fig. 10은 진동수, 온도, 조성의 세가지 변수 중에서

진동수를 5 Hz로 고정시킨후 온도가 각각 25°C, 35°C, 45°C, 60°C일때의 Y비에 따른 TF magnitude와 TF phase 변화를 관찰한 결과이다. 각각의 온도에서 Y비가 증가함에 따라 TF magnitude가 증가하는 경향을 보였으며 점성-탄성 거동의 정도를 나타내는 TF phase는 위상각이 점점 감소하는 탄성거동 특성을 나타내었다. 이는 Y비가 각각 0.3, 0.4, 0.444, 0.5로 증가함에 따라 유리전이온도가 -8°C, 1.8°C, 8°C, 18°C로⁹⁾ 증가하여 측정 온도에서의 점성이 떨어지기 때문이다. Y 비의 커짐에 따른 TF magnitude의 증가와 점성-탄성 거동의 정도를 나타내는 TF phase의 감소는 결합제량의 증가가 점탄성 특성에 있어서 알루미늄 분말의 증가때와 마찬가지로 테이프의 높은 탄성계수를 갖게 함을 보여 주고 있다. 이것은 Y비가 증가함에 따라 세라믹 입자사이에서 윤활작용을 하여 그린 테이프의 유동특성을 증진시키는¹⁰⁾ 가소제량이 유기물 중에서 줄어들어 테이프내의 알루미늄 입자와 입자 사이의 움직임을 제한하여 유동특성을 최소화하기 때문이다. 결합제 함량에 따른 complex modulus값의 변화는 알루미늄 함량에 의한 변화값보다 큰 기울기를 갖는데 이는 결합제와 가소제의 비에 따라 유리전이온도가 결정되는데 반해, 알루미늄과 유기물의 비는 유리전이온도에 영향을 주기 않기 때문이며,⁹⁾ 결국 유리전이온도가 complex modulus를 결정하는 중요한 인자임을 알 수 있다.

4. 결 론

본 실험에서는 알루미늄 그린 테이프의 alumina/(alumina+organics)비(X비)와 binder/(binder+plasticizer)비(Y비)가 증가함에 따른 알루미늄 테이프의 complex modulus 변화를 관찰하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 알루미늄 그린 테이프의 X비와 Y비가 증가함에 따라 complex modulus의 절대값(TF magnitude)은 커지고 위상각(TF phase)은 작아지는 경향을 보였으며 이는 알루미늄 분말에 대해서는 유기물 총합량비가, 유기물에 대해서는 가소제 함량비가 점성거동을 결정하는 요소이기 때문이다. 특히 알루미늄 함량비에 비해 결합제 함량비가 complex modulus 값에 큰 영향을 미쳤으며, 이는 유리전이온도가 complex modulus에 영향을 미치는 주된 요소이기 때문이다.

2. 온도가 25°C, 35°C, 45°C, 60°C로 증가함에 따라 각각의 조성에서 TF magnitude는 감소하는 경향을 가지며, TF phase는 증가하는 경향을 보였다. 이는 유리전이온도 이상의 온도에서 온도가 증가함에 따라 유기물의 점성거동이 시작되어 탄성의 성질을 잃고 점차 점성의 성질로 변하게 되며 결국 이는 테이프의 유동성을 증

가 시키는 역할을 한다.

3. 알루미늄 그린 테이프의 기계적 성질 측정 결과인 25°C 알루미늄 그린 테이프의 성형 가능한 영역으로부터, 입체성형이 가능한 입체조성인 X에서의 알루미늄 그린 테이프의 성형 가능한 영역으로부터, 입체성형이 가능한 입체조성인 X에서의 알루미늄 그린 테이프의 성형 가능한 영역으로부터, 입체성형이 가능한 입체조성인 X=0.83, Y=0.444에서 진동수 5 Hz일때의 TF phase는 약 17° 임을 알 수 있으며, 이 위상각으로부터 그 이상의 값에서는 성형가능함을 그 이하의 값에서는 성형이 불가능함을 알 수 있었다.

REFERENCES

1. E. P. Hyatt, "Making Thin, Flat Ceramics : a Review," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **65**(4) 637-638 (1986).
2. 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.
3. Dae-Joon Kim, Myung-Hyun Lee and Chang-Eun Kim. "Fabrication of IN-CERAM Core by Sheet Forming Process," *Bioceramics*, **10**, 211-214 (1997).
4. Y.M. Haddad, "Viscoelasticity of Engineering Materials," pp. 33-35, pp.70-92 Chapman&Hall, 1995.
5. J.S. Field, M.V. Swain and N. Phan-Thien, "An Experimental Investigation of the use of Random Squeezing to Determine the Complex Modulus of Viscoelastic Materials," *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **65**, 177-194 (1996).
6. A. Kristoffersson and Elis Carlstrom, "Tape Casting of Alumina in Water with an Acrylic Latex Binder," *Journal of the European Ceramic Society*, **17**, 289-297 (1997).
7. Takayuki Murayama, "Molecular Interpretation," in "Dynamic Mechanical Analysis of Polymeric Material," pp. 60-96, Elsevier Scientific Publishing Co., New York, 1978.
8. William N. Findley, James S. Lai and Kasif Onaran, "Creep and Relaxation of Nonlinear Viscoelastic Materials," pp.1-5, pp.40-48, North-Holland Publishing Co., 1976.
9. Myung-Hyun Lee, Jeong-Hoon Lee, Chang-Eun Kim, Dae-Joon Kim and Nam-Sik Oh, "Effect of Organic Additive Composition on Glass Transition Temperatures and Storage Moduli of Al₂O₃ Green Tapes," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **35**(7), 726-732 (1998).
10. Rodrigo Moreno, "The Role of Slip Additives in Tape Casting Technology : Part2-Binder and Plasticizers," *American Ceramic Society Bulletin*, **71**(11), nov (1992).
11. R. E. Wetton, "Dynamic Mechanical Method in the Characterization of Solid Polymers," *Polymer Testing*, **4**, 117-129 (1984).

12. James E. Mark, "Physical Properties of Polymers," 2nd edition, ACS Professional Reference Book, American Chemical Society, Washington DC, 1993.
13. Christensen, "Restrictions upon Viscoelastic Relaxation Functions and Complex Moduli," *Trans. Soc. Rheol.*, **16**, 603-614 (1972).
14. Orbey N. and Ded J.M., "Determination of Relaxation System from Oscillatory-Shear Data," *J. Rheol.*, **35**, 1035-1049 (1991).
15. Biot M. A., "Theory of Stress-Strain Relationship in Anisotropic Viscoelasticity and Relaxation Phenomena," *J. Applied. Phys.*, **25**(11), 1385-1391 (1954).
16. Shalaby W. Shalaby, "Thermoplastic Polymers," in Thermal Characterization of Polymeric Materials, pp 235-354, Ed. by Edith A. Turi, Academic Press, New York, 1981.
17. Richard P. Chartoff, "Thermoplastic Polymers," in Introduction to Polymer Viscoelasticity, pp. 486-547, John Wiley & Sons Inc, New York, 1983.