

알루미나 슬러리 조성에 따른 그린 테이프의 기계적 특성

이명현[†] · 박일석* · 김대준* · 이득용**

요업(세라믹)기술원 신소재분석평가팀

*한국과학기술연구원 재료연구부

**대림대학 재료정보공학과

(2002년 7월 23일 접수; 2002년 8월 19일 승인)

Influence of Alumina Slurry Composition on Mechanical Properties of Green Tapes

Myung-Hyun Lee[†], Il-Seok Park*, Dae-Joon Kim* and Deuk Yong Lee**

Advanced Material Analysis and Evaluation Team, Korea Institute of Ceramic Engineering and Technology, Seoul 153-023, Korea

*Material Research Division, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 130-650, Korea

**Department of Materials Engineering, Daelim College of Technology, Anyang 431-715, Korea

(Received July 23, 2002; Accepted August 19, 2002)

초 록

알루미나 함량비와 유기물의 첨가비를 변화시킨 각 조성의 알루미나 테이프를 제조하였다. 유기첨가물 조성이 알루미나 슬러리의 안정성에 미치는 영향을 확인하기 위해 각 조성의 슬러리에 대하여 상대점도를 측정하였다. 여러 조성 슬러리의 상대점도를 알루미나 부피분율의 함수로 나타내었을 때 동일한 곡선 상에 위치하였으며, 이로부터 유기물의 함량 및 조성이 캐스팅용 슬러리의 안정성에 큰 영향을 미치지 않음을 알 수 있었다. 준비된 각 조성의 슬러리를 성형하여 건조한 그린 테이프들을 상온에서 인장시험한 결과, 파괴변형율은 알루미나 함량비와 결합제 첨가비가 증가함에 따라 각각 363%에서 45%로, 68%에서 25%로, 연속적으로 감소하는 경향을 나타내었으나, 인장강도는 결합제의 첨가비가 증가함에 따라서는 0.5 MPa에서 4 MPa로 연속적으로 증가하는 경향을, 알루미나 함량비가 증가함에 따라서는 1 MPa까지 급격히 증가한 후 감소하는 변화를 나타내었다. 그린 테이프들은 20°C에서부터 80°C까지 승온한 조건에서 인장하였을 때 유기물의 열화로 인해 기계적 물성이 급격히 저하되었다.

ABSTRACT

Alumina slurries, having various amount of alumina and ratio of organic additives, were prepared for tape casting. The relative viscosities were compared to investigate influence of composition on stability of the slurry and plotted as a function of powder fraction. They raised with increasing powder fraction of slurries, revealing a exponential function curve, which means that stability of slurry was not affected by amount and composition of organic additives. Cast green tapes were tested under tensile condition at room temperature. The increase in alumina ratio and binder ratio was found to decrease strain to failure of green tapes from 363% to 45% and from 68% to 25%, respectively. Tensile strength of green tapes increased abruptly with increasing alumina ratio, which showed its maximum at 1 MPa. On other hand, Tensile strength increased continuously from 0.5 MPa to 4 MPa with increasing binder ratio. Mechanical properties of them were affected seriously and lost their properties by elevating temperature from 20°C to 80°C.

Key words : Alumina tape, Relative viscosity, Mechanical property

1. 서 론

테이프 캐스팅공정을 부품 제조 등에 응용할 경우 세라믹 테이프는 저장, 절단, 천공, 적층 등의 공정단계에서

그린 상태로 취급되므로 그린 테이프의 기계적 물성에 영향을 미치는 인자들에 대한 연구와 그 결과를 이용한 조성 조절이 필수적이다. Green tape의 기계적 물성에 관한 연구는 근래의 보고¹⁾로부터 시작되었으며, 이후 많은 연구들이 진행되어왔으나, MLCC, package 등 평판형 부품 제조를 목적으로 하는 유기 조성물 조절과 그에 따른 변형속도, 최대변형률, 인장률, 인장강도, 기공률 및 소결 밀도 등에 대한 관찰이 주를 이루었다.²⁻⁶⁾ 현재는 그린 테

[†]Corresponding author : Myung-Hyun Lee
E-mail : mhlee@kicet.re.kr
Tel : +82-2-3282-2465 Fax : +82-2-3282-2470

이프의 응용을 평판형 부품제조 뿐만 아니라 입체 형상 제조로 확장하는 연구들이 진행되고 있으며^{7,9)} 이러한 연구에 있어서 넓은 조성영역의 테이프 제조 및 특성변화에 대한 체계적인 연구가 요구되고 있다. 또한 입체 형상 제조공정에서 그린 테이프에는 승온된 분위기에서 인장 또는 압축응력이 가해지므로, 온도환경에 따른 그린 테이프의 기계적 물성 변화에 대한 연구도 반드시 필요하다.

한편 그린 테이프 및 소결체 물성과 점성거동간의 관계에 대한 연구에 따르면 슬러리의 점도는 기계적 물성 등 그린 테이프의 물성뿐만 아니라 소결체의 미세조직 등에도 영향을 미친다.¹⁰⁻¹²⁾ 특히 Braun 등에 따르면 결합제와 가소제의 첨가에 의해 슬러리의 분산 안정성이 변화될 수 있다.¹³⁾ 분산안정성은 이후 물성에 결정적인 영향을 미칠 수 있는 인자이므로, 세라믹 고형물과 결합제, 가소제 등 각 조성물 첨가비에서 결합제와 가소제의 첨가에 따른 유동 특성 연구가 선행되어야 한다.

따라서 결합제, 가소제 등의 유기 첨가제의 함량과 조성비 조절이 넓은 범위의 조성영역에서 제조된 슬러리의 유동특성의 관찰하였으며, 이들 슬러리로 성형한 테이프들의 충전밀도 등 물리적 특성과 승온 하에서 수행된 인장시험에서의 강도 및 변형률 등 기계적 특성변화를 관찰하여 유기물의 조성 및 함량과 그린 테이프의 기계적 물성간의 상관관계를 이해하고자 하였다.

2. 실험방법

2.1. 테이프 제조

알루미나 분말(AL-M43, Sumitomo, Japan)의 평균 입경은 $3\ \mu\text{m}$ 이고 순도는 99.9%이었으며 용매로는 MEK (Methyl Ethyl Ketone) 66 vol%와 EtOH(Ethyl alcohol) 34 vol%를 혼합한 복합용매를 사용하였다. 분산제는 polyester-polyamine copolymer(Solsperse 24000 SC; ICI Co, England)를 사용하였다. 결합이 없는 높은 밀도의 소결체를 얻기 위해서는 먼저 균일하고 고충진된 슬러리를 제조하는 것이 중요하다.¹⁴⁾ 이를 위해 선행연구에서 결정된 최적의 분산제량 0.5 wt%를 첨가하여 용매 내 분체의 분산안정성을 유지하도록 하였다.¹⁵⁾ 결합제는 Polyvinyl Butyral(Butvar 79; Monsanto, USA), 가소제는 DBP(Di-butyl Phthalate, Aldrich, USA)를 사용하였다. 결합제와 가소제의 총 첨가량과 조성비는 알루미나에 대한 알루미나와 유기물의 중량비($a/(a+o)$)와 결합제에 대한 결합제와 가소제의 중량비($b/(b+p)$)를 변화시켜 조절하였으며, $a/(a+o)$ 는 0.750에서 0.850까지, $b/(b+p)$ 는 0.300에서 0.700까지 변화시켰고, $a/(a+o)$ 를 변화시킬 때 $b/(b+p)$ 는 0.444로, $b/(b+p)$ 를 변화시킬 때 $a/(a+o)$ 는 0.816으로 각각 고정하였다. 여기서 a는 알루미나(alumina), b는 결합제(binder), p는 가소제(plasticizer), o는 결합제와 가소제의 총함

량(binder+plasticizer)을 의미한다.

분산제, 가소제 및 결합제를 동시에 혼합하면 유기물들이 입자 표면에 경쟁적으로 흡착되어 완전한 분산을 어렵게 하기 때문에¹⁶⁾ 분산제, 용매, 알루미나 분말을 알루미나 볼을 사용하여 볼 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 테이프를 성형하였다. 테이프 운반 속도는 30 cm/min이었으며, 캐스팅한 테이프는 상온의 convection chamber에서 건조하였다. 건조 후 그린 테이프의 두께는 약 0.5 mm가 되도록 하였다.

2.2. 물성 평가

제조된 슬러리들의 점도관찰은 Viscometer(Rheoset, Brookfield Co., U.S.A.)를 이용하였다. shear rate $330\ \text{sec}^{-1}$ 까지 점도를 측정하였으며, 측정시 온도는 약 20°C 이었다. 상대점도를 관찰하기 위해 일정 범위 내에서 알루미나, 결합제 및 가소제 각각의 비율과 총량을 조절한 슬러리에 대해 걸보기 점도를 측정하고, 각 조성의 슬러리에서 알루미나를 제외하고 모든 첨가물을 동일하게 혼합하여 제조한 슬러리의 걸보기 점도를 측정하였다.

그린 테이프의 인장강도와 최대 변형률은 universal testing machine(Instron 4465, U.S.A.)으로 측정하였다. 시편 제작 및 측정은 ASTM D 638M에 따라 행하였고, 측정시 시편은 기계적 고정에 의해 발생하는 파손 및 변형을 방지하기 위해 pressurized grip을 이용하여 고정하였다. 응력 변형률 곡선은 인장 속도에 의존하므로¹⁷⁾ 인장 속도를 50 mm/min으로 일정하게 유지하였다. 승온된 온도조건에서의 인장시험은 상온에서부터 80°C 까지 20°C 간격의 온도 조건에서 이루어졌으며, 시편을 thermostatic control이 가능하도록 세팅된 ring type 발열체로 둘러싸인 밀폐 공간에서 측정온도로 가열하고 5분간 유지하여 열적평형을 이루도록 한 후 실시하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 결합제와 가소제에 대한 함량비($b/(b+p)$)는 일정하게 하고, 유기물과 알루미나의 함량비($a/(a+o)$)를 변화시킨 테이프들을 성형하기 위해 제조한 각 슬러리의 상대점도(η_s/η_L)를 관찰한 결과이다. 상대점도는 고형물의 분율에 따른 유동 특성을 이해하는 데 유용한 개념이며, η_s 와 η_L 은 각각 고형물을 포함한 총 슬러리의 점도, 유체만의 점도를 의미한다. 정해진 조성비로 용매, 분말, 결합제만을 첨가하여 혼합한 슬러리의 상대점도(η_{Cb})는 알루미나의 함량비가 높아짐에 따라 완만히 증가하다가 최종 테이프의 알루미나의 함량비($a/(a+o)$)가 0.816 이상인 조

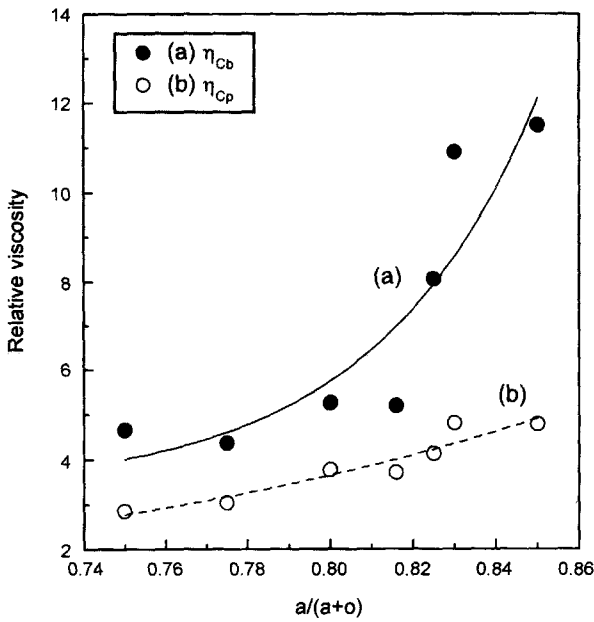


Fig. 1. Effect of $a/(a+o)$ ratio on relative viscosity of slurry, where the $b/(b+p)$ ratio was fixed as 0.444.

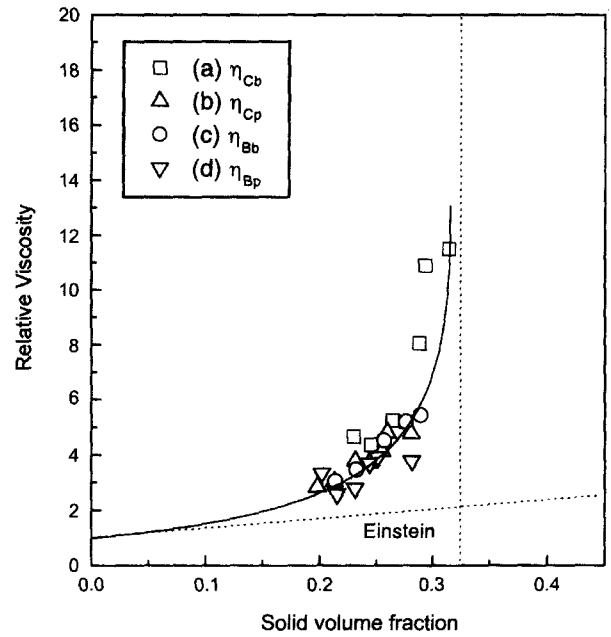


Fig. 2. Effect of solid volume fraction on relative viscosity.

성영역에서 급격히 증가하였다(Fig. 1(a)). 상대점도의 증가는 알루미늄 함량비가 높은 조성일수록 결합제 함량이 작아지고, 따라서 일정한 겔보기 점도유지를 위해 결합제를 용해시키고 알루미늄을 분산하는데 필요한 용매량이 줄어들기 때문이다. 상대점도가 $a/(a+o)=0.816$ 이상인 조성영역에서 급격한 증가를 나타낸 것은 일정량 이상으로 슬러리의 고형물 부피 분율이 증가하면 상대점도는 입도 분포, 입자표면의 영향 등으로 인해 Einstein 식²⁰⁾을 벗어나서 멱급수적으로 증가하는데 기인한다.¹⁸⁾ 용매, 분말, 결합제의 각 첨가량을 유지하고 가소제를 첨가하여 제조한 슬러리의 상대점도(η_{Cp})는 용매, 분말, 결합제만을 혼합한 슬러리의 상대점도(η_{Cb}) 보다 낮은 값을 나타내었다(Fig. 1(b)). 특히 용매, 분말, 결합제만을 첨가하였을 때 상대점도가 급격히 증가하였던 알루미늄 함량비 0.816 이상의 슬러리에서 가소제 첨가에 의해 상대점도가 큰 폭으로 감소하여, 각 조성의 슬러리들이 완만한 상대점도 변화를 나타내게 되었다. 관찰된 가소제 첨가에 의한 상대점도 감소 현상은 고형물 부피 분율 변화 효과¹⁹⁾에 의한 것으로 해석되어진다. 이러한 설명은 결합제만을 첨가하여 혼합한 슬러리의 상대점도와 결합제와 가소제를 함께 첨가하여 혼합한 슬러리의 상대점도 값들을 고형물 부피 분율에 대한 함수로 나타내면 각각 Fig. 2에서처럼 동일한 곡선 상에 위치하는 것에 의해 뒷받침된다. 점선으로 나타낸 증가직선은 뉴턴 유체에 상호작용하지 않는 입자들이 분산된 dilute solution($\phi < \sim 0.1$)에서 입자 분율에 따른 슬러리의 상대점도를 나타내는 Einstein 식을 나타낸 것이다.

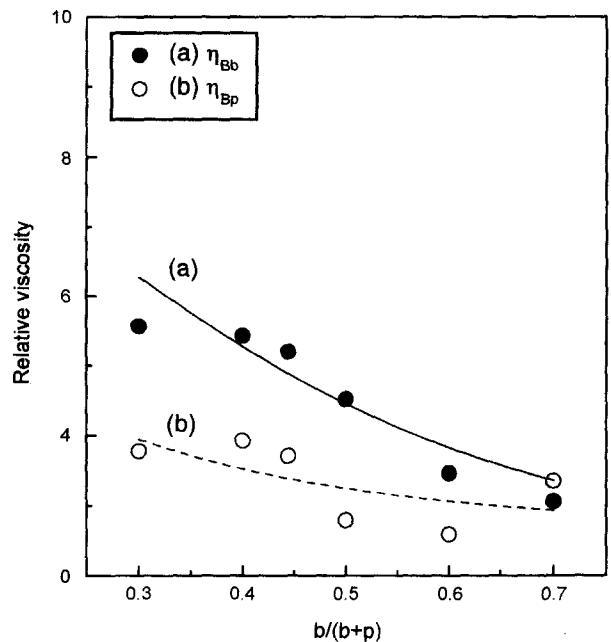


Fig. 3. Effect of $b/(b+p)$ ratio on relative viscosity of slurry where the $a/(a+o)$ was fixed as 0.816.

Fig. 3은 총 유기물의 양은 일정($a/(a+o)=0.816$)하게 하고 결합제와 가소제의 상대함량비($b/(b+p)$)를 조절한 테이프들을 성형하기 위해 제조한 슬러리들의 유동특성을 관찰하여 얻은 상대점도 결과이다. 분말, 용매, 결합제만을 혼합한 슬러리에서 결합제의 함량비가 클수록 상대점도(η_{Bb})가 감소하였다(Fig. 3(a)). 이는 일정한 겔보기 점도

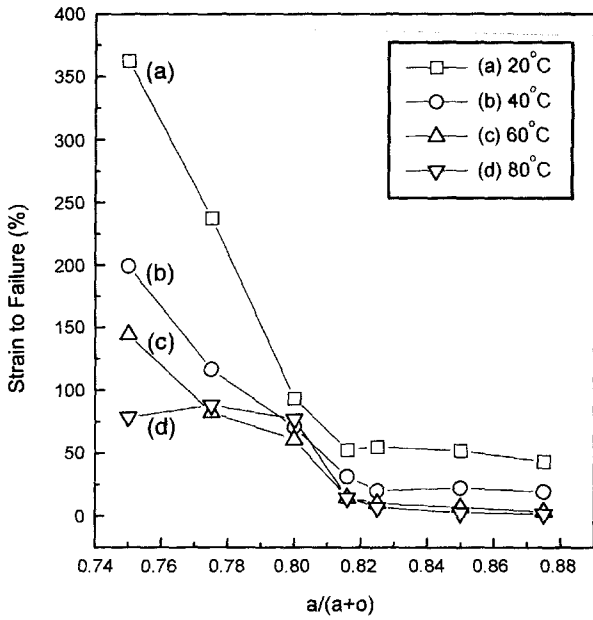


Fig. 4. Strain to failure of green tapes as a function of $a/(a+o)$ weight ratio at various elevated temperatures.

를 유지하기 위해 결합제의 상대량이 높은 조성일수록 첨가되는 용매 양이 많아지고 따라서, 총 함량 중 세라믹스 분말의 부피분율이 줄어들었기 때문이다. 알루미늄 함량비를 조절한 슬러리에 대한 상대점도 관찰에서처럼 분말, 용매, 결합제를 혼합한 슬러리 조성물은 가소제 첨가에 의해 상대점도(η_{Bp})가 감소하였다(Fig. 3(b)). 이들도 역시 고형물 부피 분율의 함수로 도시하면 모두 Fig. 2의 곡선상에 위치하였다. 따라서 알루미늄나 또는 슬러리의 유기물의 함량비 변화에 있어서 결합제, 가소제, 용매의 분율변화는 모두 상대점도 변화에 동일한 작용을 나타냄을 확인할 수 있었고, 슬러리의 상대점도 변화를 일정 유체와 알루미늄의 부피분율의 변화에서와 유사한 거동으로 이해할 수 있었다.

Fig. 4는 알루미늄과 유기물의 총량에 대한 알루미늄의 함량($a/(a+o)$)을 변화시켜가면서 제조한 슬러리들로 성형한 그린 테이프들을 여러 조건의 온도에서 인장하며 관찰한 파괴 변형률 결과이다. 상온에서의 파괴 변형률(Fig. 4(a))은 알루미늄 분율이 $a/(a+o)=0.750$ 일 때 363%를 나타내었으며, $a/(a+o)=0.800$ 정도까지는 알루미늄 증가함에 따라 급격히 감소하다가, 그 이상에서는 완만히 감소하여, $a/(a+o)=0.875$ 에서는 45%의 값을 나타내었다. 파괴 변형률의 변화는 알루미늄 분율에 따른 충전밀도 변화와 미세구조관찰로 설명되어진다.¹⁵⁾ 이에 따르면 $a/(a+o)=0.825$ 까지는 알루미늄의 첨가비가 증가함에 따라 즉, 유기물 감소에 따라 입자간 거리가 감소하여 충전밀도가 증가하나, 그 이상에서는 알루미늄 첨가비 증가에도 불구하고 충전밀도가 일정하게 유지되었다. 파괴 변형률은 충전

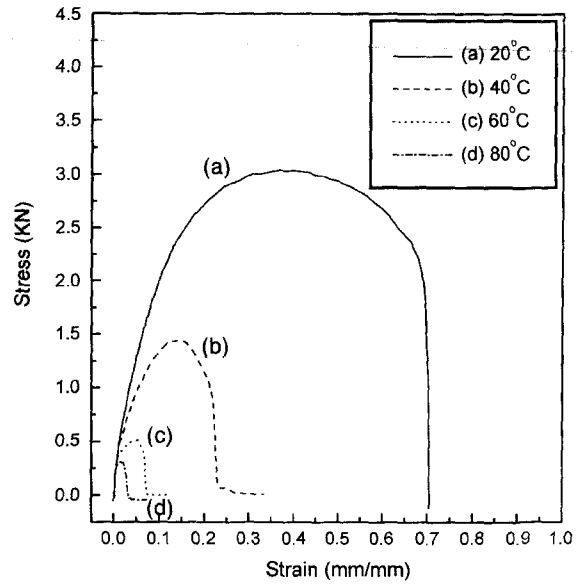


Fig. 5. Stress-strain curves of green tape having constituents with an $a/(a+o)$ ratio of 0.850 and $b/(b+p)$ ratio of 0.444 at various elevated temperatures.

밀도가 급격히 증가하는 영역에서는 입자간 결합력, 유연성 및 가소성을 갖도록 하는 유기물의 상대적 함량 감소로 급격히 감소한다. 반면, 충전밀도가 비교적 일정하게 유지되는 영역에서는 유기물은 입자간 결합을 유지하고 변형은 적은 양의 입자간 유기물에 의존하므로 파괴 변형률은 매우 낮은 값을 유지한다. 한편, 그린 테이프들의 파괴 변형률은 온도가 증가함에 따라 상온에서의 경향을 유지하며 급격히 감소하였다. 상온에서 알루미늄의 함량변화에 따라 파괴 변형률이 급격히 변화하는 조성 영역에서는 온도 증가에 따라 파괴 변형률이 큰 폭으로 감소하였고, 승온 시에도 파괴 변형률 변화 경향이 상온에서처럼 충전밀도에 의존하였다. 상온에서 비교적 일정한 파괴 변형률을 나타내는 $a/(a+o)=0.825$ 조성 이상의 그린 테이프들은 40°C 이상에서 인장할 때 조성변화 및 온도변화에 상관없이 매우 낮은 변형률을 나타내었다.

Fig. 5는 알루미늄과 유기물의 총량에 대한 알루미늄의 함량($a/(a+o)$)이 0.850인 그린 테이프를 각 온도조건에서 인장하며 관찰한 응력-변형곡선이다. 그린 테이프의 파괴 변형률은 온도가 증가함에 따라 급격히 감소하는 것이 관찰되었다. 이러한 관찰은 Pinner 등의 보고와도 일치하는 것으로서, 이에 따르면 폴리비닐계 필름의 변형은 유리전이온도에 이르기까지는 지속적으로 증가하다가 최대 값을 나타낸 후 급격히 감소하였다.²²⁾

Fig. 6은 변형률을 관찰한 그린 테이프들의 인장강도 측정 결과를 도시한 것이다. 상온에서 인장강도는 파괴 변형률에서와 다르게 연속적인 변화를 나타내지 않았다. 인장강도는 $a/(a+o)=0.800$ 인 조성까지는 증가하여 1.0 MPa

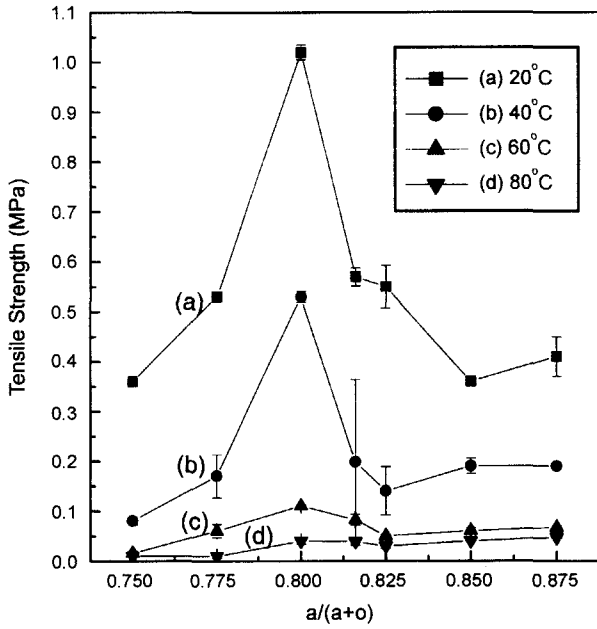


Fig. 6. Tensile strength of green tapes as a function of $a/(a+o)$ ratio at various elevated temperatures.

의 최대값을 나타내고, $a/(a+o)=0.800$ 에서 0.850 사이 조성에서는 0.36 MPa까지 감소하며, $a/(a+o)=0.850$ 이상의 조성영역에서는 다시 증가하거나 일정한 값을 나타내었다. 이러한 변화도 알루미나 함량비에 따른 그린 테이프의 충전밀도의 변화로 설명될 수 있다.¹⁵⁾ $a/(a+o)=0.750$ 에서 0.800의 영역은 입자간 접촉이 일어나기 전의 영역으로서 유기물 함량이 공극을 채우고 각 입자들을 분리시킬 정도로 충분하여 소성 변형이 이루어지는데, 알루미나의 양이 증가할수록 충전밀도가 급격히 증가하고 알루미나의 분산 강화 효과가 커져 인장강도가 증가하였다. $a/(a+o)=0.800$ 에서 0.850 사이 조성영역은 임계영역으로서 입자들을 결합시키고 공극을 채우던 유기물이 알루미나 함량 증가에 따라 감소하면서 부분적으로 채워지지 않은 공극들이 발생하고 이들이 결합으로 작용하여 인장강도의 급격한 감소가 일어난다. 즉 그린 테이프의 강도는 첨가되는 유기물 고유의 특성뿐만 아니라 분말과 유기물의 혼합 시 발생하는 결합에도 의존하는 것이다. 임계 영역을 지나 유기물 분율에 상관없이 알루미나 입자간 거리 감소가 일어나지 않으며, 충전밀도가 일정해지기 시작하는 $a/(a+o)=0.85$ 이상의 조성 영역에서는 입자들이 접촉되어 있고 이들은 유기물에 의한 결합이 유지되거나 공극 등이 결합으로 작용하여 파괴가 일어나는 것이다. 이러한 알루미나 함량에 따른 기계적 물성변화는 Descamps 등²³⁾에 의해서도 보고된 바가 있다.

온도 증가에 따른 파괴 변형률의 감소이외에도 그린 테이프의 인장시 최대응력의 급격한 감소를 관찰할 수 있었는데(Fig. 5), 이와 같은 온도 증가에 따른 인장강도의

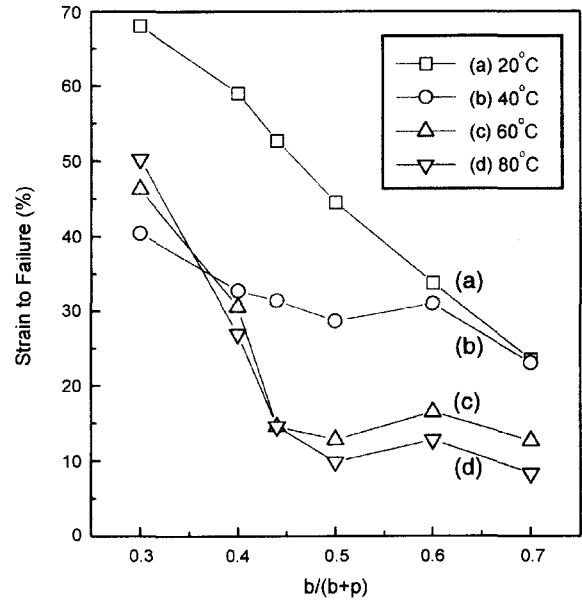


Fig. 7. Strain to failure of green tapes as a function of $b/(b+p)$ ratio at various elevated temperatures.

감소는 모든 그린 테이프에서 관찰되는 현상이었다(Fig. 6). 특히 상온에서 최대강도를 나타낸 $a/(a+o)=0.800$ 조성 그린 테이프를 관찰하면, 온도가 증가함에 따른 유기물의 열화로 강도가 급격히 감소하여 60°C 이상에서는 조성에 상관없이 일정하게 매우 낮은 값을 나타내었다.

Fig. 7은 유기물 함량을 일정($a/(a+o)=0.816$)하게 하고 결합제와 가소제의 비($b/(b+p)$)를 변화시켜 제조한 그린 테이프들을 상온에서부터 80°C까지 승온한 상태에서 인장하며 관찰한 파괴변형을 결과이다. 그린 테이프는 상온에서 결합제의 상대함량 증가에 따라 최대 변형률이 68%에서 25%로 감소하였다. 이러한 변화는 알루미나 함량비에 따른 최대 변형률 변화가 상온에서 363%에서 45%로 감소하였던 것에 비교하면 작은 범위의 값으로 그린 테이프의 최대변형률은 결합제와 가소제의 함량비($b/(b+p)$)보다는 알루미나와 유기물의 총함량비($a/(a+o)$) 조절에 크게 의존함을 알 수 있었다. 상온에서 인장실험을 수행한 각 조성 테이프들의 파괴 변형률을 가열된 온도조건에서 관찰하면 온도증가에 따라 결합제에 의한 물성증진효과가 급격히 감소하고 60°C 이상에서는 조성에 따른 물성의 차이가 거의 관찰되지 않았다. 예상했던 것과 달리 $b/(b+p)=0.300$, $b/(b+p)=0.400$ 조성의 그린 테이프들이 40°C에서 인장될 때에 비해서 60°C, 80°C에서 인장될 때 크거나 비슷한 파괴 변형을 나타내는 것은, 측정 전 열평형을 위해 유지하는 시간동안 자체의 무게로 인한 변형이 발생하였기 때문이며, 따라서 결과 해석시 이들을 배제하였다. Fig. 8에 $b/(b+p)=0.600$ 조성의 테이프를 승온하며 측정된 응력-변형곡선을 나타내었다. 온도 증가

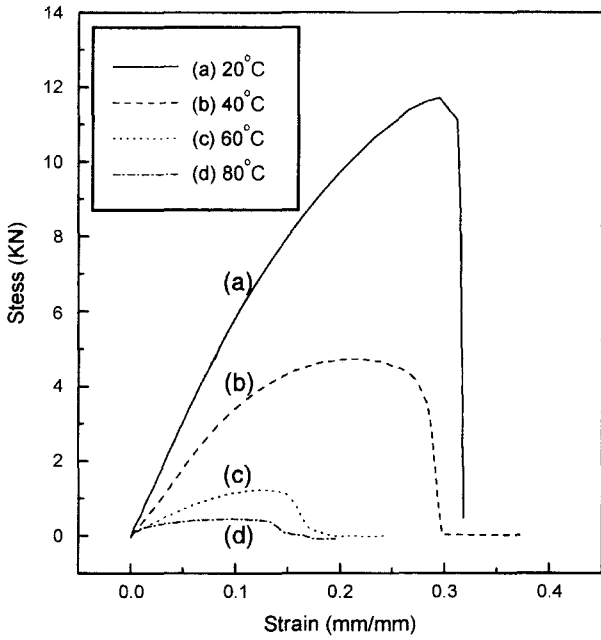


Fig. 8. Stress-strain curves of green tape having constituents with an $a/(a+o)$ ratio of 0.816 and $b/(b+p)$ ratio of 0.600 at various elevated temperatures.

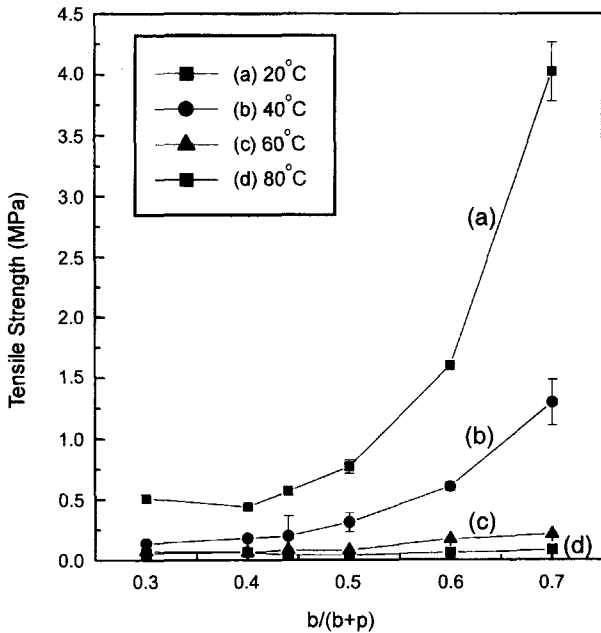


Fig. 9. Tensile strength of green tapes as a function of $b/(b+p)$ ratio at various elevated temperatures.

에 따라 응력 및 파괴 변형을 감소 및 파괴유형 변화가 관찰되었는데, 온도가 증가할수록 가해지는 인장에 대해서 최대응력을 나타내고 바로 파괴되는 유형에서 최대응력을 나타낸 이후에도 파괴되기 전까지 변형을 하는 유형으로 변화하였다.

Fig. 9는 각 조성 테이프의 여러 측정온도에서의 인장강도 결과이다. 상온에서 $b/(b+p)=0.300$ 조성의 테이프는 0.5 MPa의 인장강도를 나타내었으며, $b/(b+p)$ 가 증가함에 따라 급격히 증가하여 $b/(b+p)=0.700$ 조성의 테이프에서는 4 MPa의 값을 나타내었다. 이것은 결합제 량이 증가함에 따라 알루미늄 분말과 유기물 사이의 강도와 유기물 자체의 강도가 증가하기 때문이다. 이러한 변화는 유기물의 총첨가량을 변화시키는 $a/(a+o)$ 의 조절에 따라 인장강도가 0.36 MPa에서 1 MPa 사이의 값을 나타낸 것과 비교할 때 상대적으로 큰 값이다. 따라서, 결합제의 조성비 조절에 따른 결합력 증진효과가 그린 테이프의 인장강도에 미치는 영향이 유기물 총 첨가량 조절에 의한 효과보다 더욱 우수하다는 것을 확인할 수 있었다.

알루미늄 함량비에 따른 그린 테이프의 인장강도가 그린 테이프의 충전밀도에 크게 의존하였으므로 결합제 조성변화에 따른 강도의 변화도 충전밀도에 대하여 살펴봐야 한다. 결합제와 가소제의 비를 제어한 경우 알루미늄이나 테이프의 충전밀도는 결합제의 상대함량($b/(b+p)$)이 증가함에 따라 저하되는데, 이러한 충전밀도 감소 현상은 유기물 총함량을 일정하게 하고 결합제와 가소제의 비를 변화시킬 때 나타나는 가소제의 윤활 효과에 따른 충전밀도 변화에 관한 Antolini 등의 보고와 일치한다.²⁴⁾ 그러나 $b/(b+p)$ 를 변화시킨 그린 테이프의 인장강도는 충전밀도의 저하와 상관없이 급격히 증가함을 관찰할 수 있었다. 이렇게 알루미늄 함량을 변화시킬 때와 상이한 결과가 관찰되는 것은 $b/(b+p)$ 값에 따른 충전밀도 변화는 결합제와 가소제의 상대비만 조절하였기 때문에 매우 작은 범위에서 이루어지는 반면에 결합제의 함량증가에 따라 나타나는 결합제의 물성 증진 효과가 우월하기 때문이다. 한편 $b/(b+p)$ 의 변화에 따라 큰 변화를 나타내던 그린 테이프의 인장강도는 파괴 변형률과 마찬가지로 온도증가에 따라 급격히 감소하고, 60°C에 이르면 결합제와 가소제의 함량비에 따른 차이가 거의 관찰되지 않는, 매우 낮은 값을 나타내었다.

4. 결 론

PVB와 DBP를 각각 결합제와 가소제로 사용하여 알루미늄 함량비($a/(a+o)$)와 결합제 및 가소제의 첨가비($b/(b+p)$)를 변화시켜 제조한 알루미늄 슬러리의 점성거동 관찰과 이들 슬러리를 이용해 제조한 그린 테이프의 상온 및 승온 조건에서의 인장실험 관찰 결과는 다음과 같다.

알루미늄 또는 슬러리의 유기물의 함량비 변화에 있어서 결합제, 가소제, 용매의 분율변화는 모두 상대점도 변화에 동일한 작용을 나타내므로, 분산성에 영향을 미치지 않았음을 확인할 수 있었고, 슬러리의 상대점도 변화를 일정 유체와 알루미늄의 부피분율의 변화에서와 유사한

거동으로 이해할 수 있었다.

알루미나 그린 테이프들의 기계적 물성은 상온에서 각 충전밀도와 결합제 함량에 의존하며 변화하였다. 결합제 첨가비 변화에 따라 인장강도는 0.5 MPa에서 4 MPa까지 증가하고, 파괴 변형률은 68%에서 25%까지 감소하는 연속적인 변화를 나타내었다. 그러나, 알루미나 함량비 변화에 따라서는, 파괴 변형률은 363%에서 45%로 감소하여 연속적으로 변화하였으나, 인장강도는 0.36 MPa에서 1 MPa로 급격히 증가한 후 감소하는 변화를 나타내었다. 이러한 알루미나 함량비에 따른 인장강도의 비연속성은 충전밀도의 변화에 의존하여 발생하는 것이었다. 각 조성의 그린 테이프들은 승온하여 인장할 때 온도 증가에 따른 유기물의 열화로 급격한 물성저하가 일어나, 60°C 이상의 온도에서는 0.3 MPa 이하의 매우 낮은 강도를 나타내었다.

REFERENCES

1. S. Forte, J. R. Morris, Jr. and W. R. Cannon, "Strength of Tape Casting Tapes," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **64** [5] 724-25 (1985).
2. E. Streicher, T. Chartier and P. Boch, "Influence of Organic Components on Properties of Tape-cast Aluminum Nitride Substrates," *Ceram. Int.*, **16** 247-52 (1990).
3. R. A. Gardner and R. W. Nufer, "Properties of Multilayer Ceramic Green Sheets," *Solid State Technology*, **5** 38-43 (1974).
4. A. Karas, T. Kumagai and W. R. Cannon, "Casting Behavior and Tensile Strength of Cast BaTiO₃ Tape," *Adv. Ceram. Mater.*, **3** [4] 374-77 (1988).
5. B.-H. Ryu, M. Takahashi and S. Suzuki, "Effect of Added Organics on Mechanical Properties of Alumina Green Sheets Prepared by Doctor Blade Method," *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **100** [4] 422-25 (1992).
6. M. Descamps, G. Ringuet, D. Legerm and B. Thierry, "Tape-casting : Relation Between Organic Constituents and the Physical and Mechanical Properties of Tapes," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **15** 357-62 (1995).
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** 678-79 (1994).
8. K. P. Plucknett, C. H. Careres, C. Hughes and D. S. Wilkinson, "Processing of Tape-cast Laminates Prepared from Fine Alumina/Zirconia Powders," *J. Am. Ceram. Soc.*, **77** [8] 2145-53 (1994).
9. D.-J. Kim, M.-H. Lee and C.-E. Kim, "Mechanical Properties of Tape Cast Alumina-glass Dental Composites," *J. Am. Ceram. Soc.*, **82** [11] 3167-72 (1999).
10. K. Otsuka, Y. Ohsawa, K. Yamada and Sekibata, "A Study on the Alumina Ceramics Casting Conditions by the Doctor-Blade Method and Their Effect on the Properties of Green Tape(Part)," *Yogyo-Kyokai-Shi*, **94** [3] 351-59 (1986).
11. K. Otsuka, Y. Ohsawa, K. Yamada and Sekibata, "A Study on the Alumina Ceramics Casting Conditions by the Doctor-Blade Method and their Effect on the Properties of Green Tape(Part)," *Yogyo-Kyokai-Shi*, **94** [11] 1136-41 (1986).
12. K. Nagata, "Rheology Behavior of Suspension and Properties of Green Sheet-effect of Compatibility between Dispersant and Binder," *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **100** [10] 1271-75 (1992).
13. L. Braun, J. R. Morris, Jr. and W. R. Cannon, "Viscosity of Tape-casting Slips," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **64** [5] 727-29 (1985).
14. Y. W. Kim and J. G. Lee, "Tape Casing of Silicon Nitride," *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **287** 265-70 (1993).
15. M.-H. Lee, I.-S. Park, D.-J. Kim and D.-Y. Lee, "Effect of Organic Additive Composition on Isostatic Thermocompression Behavior of Alumina Tapes," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **37** [8] 824-31 (2000).
16. R. Moreno, "The Role of Slip Additives in Tape-casting Technology: Part I Solvents and Dispersants," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **71** [10] 1521-31 (1992).
17. ASTM D 638-95, In: 1996 Annual Book of ASTM Standards Vol. 08.01, Sect 8, American Society for Testing and Materials, Philadelphia, PA, 1996.
18. T. Dabak and O. Yuul, *Rheol. Acta.*, **25** 527-33 (1986).
19. M. Rajala, "Using the Mooney Equation for Analyzing the Sensitivity of Casting Clays," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **71** [12] 1817-19 (1985).
20. J. S. Reed, "Rheology of Saturated Systems (Slurries and Pastes)," pp. 277-309 in *Principals of Ceramics Processing*, 2nd Edition, John Wiley and Sons, NY., (1995).
21. T. F. Tadros, "Rheology of Concentrated Suspensions," *Chem. Ind.*, **1** 210 (1985).
22. S. H. Pinner, "Properties of PVC at Elevated Temperatures," *Plastics*, **5** 82-5 (1965).
23. M. Descamps, G. Ringuet, D. Legerm and B. Thierry, "Tape-casting : Relation Between Organic Constituents and the Physical and Mechanical Properties of Tapes," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **15** 357-62 (1995).
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** 2187-92 (1996).