

저온소성 마이크로파 유전체 세라믹스 복합체의 Tape Casting 특성

이우석 · 김창환 · 하문수* · 정순종* · 송재성* · 류봉기[†]

부산대학교 무기재료공학과

*한국전기연구원 전자기소자연구그룹

(2004년 10월 28일 접수; 2004년 12월 10일 승인)

The Characterizations of Tape Casting for Low Temperature Sintered Microwave Ceramics Composite

Woo-Suk Lee, Chang-Hwan Kim, Mun-Su Ha,* Soon-Jong Jeong,* Jae-Sung Song,* and Bong-Ki Ryu[†]

Department of Inorganic Materials Engineering, Pusan National University, Pusan 609-735, Korea

*Electric and Magnetic Devices Group, KERI, Chang-Won 641-120, Korea

(Received October 28, 2004; Accepted December 10, 2004)

초 록

마이크로파 유전체 세라믹스 BaO-Nd₂O₃-TiO₂(BNT)계 상용분말과 PbO-base의 결정화 유리프릿 복합체를 출발원료로 하여 테이프 캐스팅법으로 그린시트를 제조하기 위해 첨가유기물의 조성 변화에 따른 슬러리의 분산특성 및 유동특성 그리고 최종그린시트의 그린/소결밀도 변화를 연구하였다. 분산제량의 증가는 분산에 유효하였으나, 일정량 이상이 첨가되면 분산을 저해하는 요인으로 작용하였으며 복합체 분말에 1.75 wt%의 fish oil을 첨가하였을 때 분산특성이 가장 우수하였다. 준비된 모든 조성의 슬러리에서 의가소성거동(shear thinning)이 나타났고 파우더, 바인더 그리고 유기물의 전체 함량이 증가할수록 상대점도는 증가하는 경향을 나타내었다. 복합체 분말과 용매의 비율 65 : 35, 결합제는 6 wt%, 가소제는 3 wt%에서 테이프의 특성이 가장 우수하였다. 이때 슬러리의 점도는 677 cps, 그린/소결밀도는 3.3 g/cm³, 5.56 g/cm³로 각각 나타났다.

ABSTRACT

Sintering behavior of BaO-Nd₂O₃-TiO₂ with a Pb-based glassceramics frit were investigated in order to understand an effect of glassceramics as a low temperature sintering agent on dielectric ceramics. A green sheet form was fabricated through tape casting method with the glassceramic frit added BaO-Nd₂O₃-TiO₂. The dispersion properties, rheological properties and final density of dielectric composit slurry as a function of amount and composition of organic additives was examined. The dispersants' addition was effective in controlling dispersion of the ceramics in solution. The addition of excessive dispersant showed adverse effect on dispersion. The prepared slurries, containing ceramic powders, glass-ceramics and various kinds of organic viechles, exhibited typical shear thinning behavior. The best properties of tape casting appeared powder to solvent ratio 65 : 35 and amount of the binder 6 wt% and plasticizer 3 wt%. The viscosity of the slurry was 677 cps and green/sintered density in the tape was 3.3 g/cm³, 5.56 g/cm³ respectively.

Key words : BaO-Nd₂O₃-TiO₂, Glassceramics, Slurry, Tape casting

1. 서 론

최근 이동 통신 및 위성 통신 등 마이크로파 대역을 이용하는 통신 시스템의 보급이 활발하게 진행됨에 따라 저온동시소성세라믹스(Low Temperature Co-fired Ceramics, LTCC)기술을 이용하여 RF 소자 개발에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있다.¹⁾ 이 기술은 대량 생산성, 높은 3-D 집적도, 높은 신뢰성, 소형화 등의 장점을 가지고 있어

다양하게 응용이 가능하지만 마이크로파 대역에서 전기적 특성이 우수한 내부전극인 Cu나 Ag 전극과 저온 동시소결이 가능한 재료개발이 필수적이다. 저융점의 glass를 첨가하는 방법은 가장 간단하고 비용이 적게 들 뿐 아니라 소결온도 저하에 매우 효과적이어서 마이크로파 유전체 재료의 소결 온도를 낮추는데 가장 적절한 방법으로 응용되고 있으나 소성한 후의 잔존유리상의 존재로 인해 유전특성이 현저히 저하되는 단점을 가지고 있다.^{2,3)}

이에 비해 최근에 결정화 유리의 첨가를 통해 고유전율의 결정을 성장시켜 소결온도를 낮추는 동시에 유전특성을 향상시키는 고유전율의 마이크로파 유전체에 대한 연구가 진행 되고 있다. 또한 결정화 유리의 특성으로는

[†]Corresponding author : Bong Ki Ryu

E-mail : bkryu@pusan.ac.kr

Tel : +82-51-510-2384 Fax : +82-51-517-8838

유전특성을 조절하기 쉽고 기계적 강도를 증진시키고, 저온에서도 공정이 가능하다는 장점이 있어 앞으로 마이크로파유전체/결정화유리 복합체에 대한 효율성이 기대되고 있다.^{4,5)} LTCC 제조기술에는 테이프 캐스팅법, 스크린 프린트법 및 주입법 등이 있다. 이중 건식적층법인 테이프 캐스팅 공정은 얇은 두께로 고품질 대면적의 세라믹 시트를 제조하기 위한 저 비용공정으로 산업체에서 널리 쓰이는 공정이다.^{6,7)} 테이프 캐스팅법을 이용한 제조공정에 있어서 특히, 결합이 없는 높은 밀도의 소결체를 얻기 위해서는 먼저 균일하고 고충진된 그린시트를 제조하는 것이 중요하다. 이를 위해 먼저 용매내 분체의 분산안정성을 높여 균일한 슬러리를 이루어야 하며, 건조와 소성시 수축을 감소시키기 위해 슬러리 내부의 고형분의 분율(solid loading)을 높여 주어야 한다. 그리고 테이프 캐스팅에 적합한 점도와 의가소성거동(shear thinning)특성¹⁴⁾의 슬러리가 필요하다. 하지만 유전체 조성물 외에 다수 공정 첨가제(분산제, 가소제, 결합제)등이 사용된 슬러리의 화학적 복잡성으로 인하여 이들 계에 있어서의 안정화 기구를 규명하기는 상당히 어렵다.⁸⁾ 따라서 무엇보다 그린시트의 물성뿐만 아니라 소결체의 미세조직 등에도 직접적인 영향을 미치게 되는 슬러리의 유동특성 연구가 우선 선행되어야 한다.

본 연구는 BaO-Nd₂O₃-TiO₂계 세라믹스에 결정화유리를 첨가한 복합체 분말을 이용하여 복합체 분말/유기용매의

비 그리고 유기물의 조성비-함량등을 변화시켜 넓은 범위의 조성영역에서 제조된 슬러리의 유동특성을 관찰하였으며, 이들 슬러리로 부터 성형한 최종 시트의 그린/소결 밀도 변화를 관찰하여 공정변수의 상호관계를 관찰함으로써 테이프 제조 조건을 최적화하였다. 또한, 제조된 시트를 적층하여 저온 소결과 전극과의 반응특성을 조사하였다.

2. 실험 방법

2.1. 원료물질

마이크로파 유전체는 상용분말(MBRT-90, Fuji Titanium Industry, Japan)을 사용하였고, 저온소결을 위하여 첨가된 유리는 PbO-TiO₂-Al₂O₃-SiO₂계 결정화 유리를 사용하였다. 용매로는 MEK(Methyl Ethyl Ketone) 40 vol%와 EtOH(Ethyl alcohol) 60 vol%로 혼합한 복합용매를 사용함으로써 건조과정에서 화학양론비가 변화하지 않고 단일상과 같이 증발하는 공비조성을 사용했다.⁹⁾ 분산제는 fish oil(Aldrich, USA), 결합제는 PVB(Polyvinyl Butyral, Aldrich, USA), 가소제는 DBP(Dibutyl Phthalate, Aldrich, USA)를 각각 사용하였다.

조성 A1~A5는 복합체 파우더와 용매의 조성비 p/(p+s), 조성 B6~B10은 결합제와 가소제의 조성비 b/(b+pl), 조성 C11~C15는 복합체 파우더와 결합제/가소제의 조성함량비

Table 1. Slurries of Components Prepared in the Present Study and their Compositions

Sample name	Input factor			
	Powder/Solvent (ratio)	Binder (wt%)	Plasticizer (wt%)	Dispersant (wt%)
<i>Powder to solvent system</i>				
A1	62.5/37.5	6	3	1.75
A2	65/35	6	3	1.75
A3	67.5/32.5	6	3	1.75
A4	70/30	6	3	1.75
A5	72.5/27.5	6	3	1.75
<i>Binder to plasticizer system</i>				
B1	65/35	4.5	4.5	1.75
B2	65/35	5.2	3.8	1.75
B3	65/35	6	3	1.75
B4	65/35	6.8	2.2	1.75
B5	65/35	7.5	1.5	1.75
<i>Binder-plasticizer to powder system</i>				
C1	65/35	4	2	1.75
C2	65/35	6	3	1.75
C3	65/35	7.6	3.8	1.75
C4	65/35	9	4.5	1.75
C5	65/35	10.6	5.3	1.75

$(b+pl)/(p+b+pl)$ 를 변화시켜 조절하였고, Table 1과 같이 조합하였다. 여기서 p는 복합 유전체 분말(powder), s는 유기 용매(solvent), b는 결합제(binder), pl은 가소제(plasticizer)를 의미한다.

2.2. 슬러리의 분산특성

균일하고 고충진된 슬러리를 제조하는데 입자의 분산성은 무엇보다 중요하다. 입자에 미치는 분산제의 영향을 파악하기 위하여 침전실험과 점도측정을 실시하였다. 우선 10 vol% 현탁액에 대하여 침전실험을 행하였다. 복합체 파우더에 대한 분산제량을 각각 1, 2, 3, 4 wt%씩 첨가하여 24 h 동안 불밀한 후 유기 용매의 증발을 억제시키기 위하여 현탁액을 20 ml 용량의 유리튜브에 주입하고 주입구를 막고 시간의 경과와 더불어 더 이상 침전물의 높이 변화가 없을 때까지 침강시켰다. 여기서 다시 최적의 분산제량을 결정하기 위해서 분산제량을 파우더에 대한 중량비로 1 wt%에서 2.25 wt%의 범위로 조절하여 첨가한 슬러리를 제조하여 Viscometer(Rheoset, Brookfield, USA)로 상온에서 small sample adaptor를 사용하여 전단속도(shear rate) 264 sec^{-1} 에서 점성거동을 관찰하였다.

2.3. 그린시트 제조 및 물성평가

분산제, 가소제 및 결합제를 동시에 혼합하면 유기물들이 입자 표면에 경쟁적으로 흡착되어 완전한 분산을 어렵게 하므로¹⁰⁾ 분산제, 용매, 복합유전체 파우더를 지르코니아 불을 매체로 사용하여 12 h 동안 1차 혼합 불밀하고, 다시 결합제를 첨가하여 12 h 동안 2차 혼합한 후 마지막으로 가소제를 첨가하여 6 h 동안 3차 혼합하였다. 탈포작업을 거친 후 닥터 블레이드(STC-14A, Hansung Systems, Korea)을 사용하여 PE필름 40 cm/min의 속도로 이동시키면서 그린 시트를 제작하였다. 이때, 닥터 블레이드의 안쪽과 바깥쪽 gap size는 $350 \mu\text{m}$, $300 \mu\text{m}$ 로 각각 고정하여 건조 후 $100 \mu\text{m}$ 의 균일한 두께의 최종 그린시트를 얻을 수 있었다. 그린/소결 밀도는 아르키메데스법을 이용하여 측정하였으며, SEM(S-4200, Hitachi, Japan)을 이용하여 각 시편의 미세구조를 관찰하고 EDS(6074H, Horiba, Japan)를 사용하여 저온 소결과 전극과의 반응특성을 조사하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 분산제 첨가에 따른 슬러리 특성

입자의 분산성에 미치는 분산제의 영향을 파악하기 위하여 분말 10 vol% 현탁액에 대하여 침전실험을 행하였다. Fig. 1은 분산제 양에 따른 침전물의 높이를 시간의 범위로 보여 준다. 침전이 완료된 이후 2 wt%일때 침전 높이가 가장 낮았고 첨가량이 증가할수록 침강속도가 가장 빨랐지만 최종 침전높이는 증가하여 오히려 분산에 불

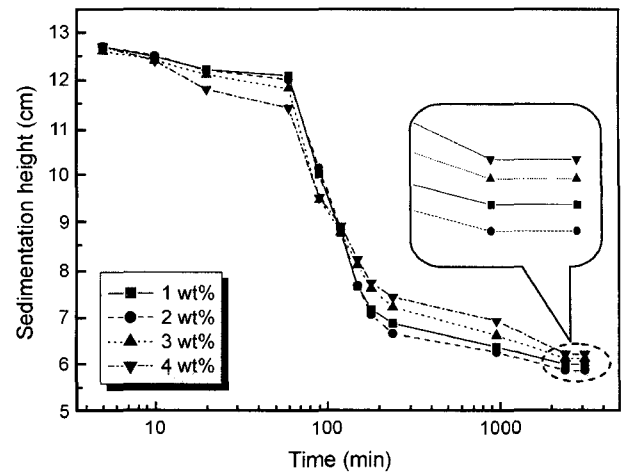


Fig. 1. Plots of sedimentation height vs. time for 1/10 ratio diluted solutions with 1 wt%, 2 wt%, 3 wt%, and 4 wt% dispersants.

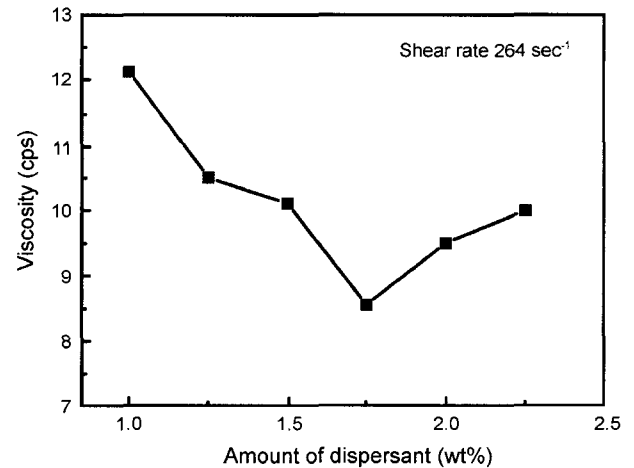


Fig. 2. A plot of dispersant vs. viscosity for a ceramic slurry under a condition of shear rate 264 sec^{-1} .

리해짐을 알 수 있었다. Fig. 2는 침전법에서 가장 좋은 특성을 보인 2 wt%에서 다시 세분화하여 최적의 분산제량을 결정하기 위하여 1~2.25 wt%까지 변화하여 제조한 슬러리의 점도를 전단속도 264 sec^{-1} 에서 관찰한 결과이다. 초기 분산제의 첨가량이 부족하여 입자들레를 완전히 둘러쌀 만큼 충분하지 못해 입자들의 응집이 발생하여 점도가 높게 나타나다가 첨가량의 증가에 따라 점도가 감소하였다. 1.75 wt%에서 최소의 점도를 나타낸 후 분산제의 함량이 증가함에 따라 다시 점도가 증가함을 볼 수 있다. 분산제는 분말 표면에 흡착되어 분자사슬을 형성하게 되며 이때 입자와 입자 사이의 충분한 거리가 확보되어 낮은 점도값을 나타내는 입체 안정화 효과가 이루어진다. 그러나 분산제가 과잉으로 흡착된 경우에는 분산제는 분말표면에 더 많은 분자사슬을 만들어 형성된 분자사슬은

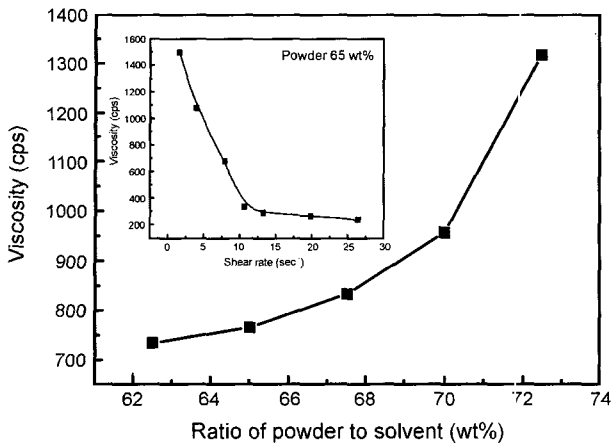


Fig. 3. A plot of ratio of powder to solvent vs. viscosity, where $b/(b+pl)$ ratio, $b+pl/(b+pl+p)$ ratio was 67 wt% and 9 wt%, respectively.

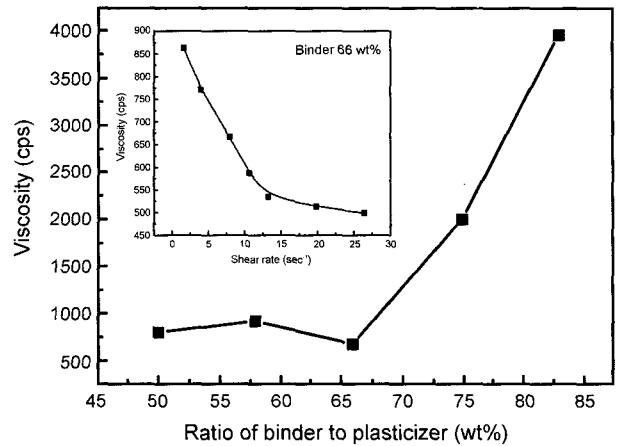


Fig. 4. A plot of ratio of binder to plasticizer vs. viscosity, where $p/(p+s)$ ratio, $b+pl/(b+pl+p)$ ratio was 65 wt% and 9 wt%, respectively.

서로 꼬이게 되어 분말의 응집을 증가시켜 분산효과를 떨어뜨리게 된다.^{11,12)} 본 실험에서는 분산제가 1.75 wt% 첨가되었을때 가장 우수한 분산특성을 나타냈다.

3.2. 유기물 첨가에 따른 유동특성

용매량이 너무 많으면 장시간 탈포공정이 요구되며 또한 공정의 효율성을 위해 적정한 점도가 되도록 용매량의 조절이 필요하다. Fig. 3에는 A1~A5의 조성으로 분말과 유기용매의 비율 $p/(p+s)$ 을 변화시켜 점도의 변화를 나타내었다. 분말의 함량비가 증가할수록 점도는 증가하는 경향을 나타내는데 이는 분말의 함량비가 높아짐으로서 용매량이 줄어들어서 결합제를 용해시키고 분말을 분산시키는데 필요한 용매량이 줄어들기 때문으로 판단된다. Fig. 3의 작은 그래프에서는 65 wt%일때의 전단속도에 따른 점도변화를 나타내었다. 전단속도가 높아짐에 따라 점도는 낮아지는 것을 확인할 수 있었다. 이는 슬러리 내의 입자간 상호작용에 의해서 형성된 응집구조가 파괴되고 또한 이때 응집체 사이에서 부동화된 분산매가 유출되어 유동성이 증가하게 된 것이다.¹³⁾ 이러한 점성을 가진 슬러리의 유동특성을 의가소성(shear thinning)거동이라 한다. 이러한 특성을 나타내는 슬러리는 성형도중에는 큰 전단변형에 의해 낮은 점도를 나타내고 성형 후에는 다시 전단 변형이 없어져 점도가 상승하여 성형체의 형상을 유지함으로써 테이프 캐스팅시에 유리하다.¹⁴⁾ 본 실험의 모든 조성에서 의가소성거동이 나타났다.

Fig. 4에는 B6~B10의 조성으로 결합제 가소제의 첨가비 $b/(b+pl)$ 의 변화를 나타내었다. 결합제의 양이 증가할수록 점도는 높아지는 경향을 나타내었다. 결합제 양에 따른 점도의 지수함수적인 증가는 결합제의 입자간 가교역할에 의한 영향으로 사료된다. 특히, 67 wt% 첨가조성에서 바인더의 첨가량에 따른 전반적인 점도 증가경향에

서 벗어나 가장 낮은 점도를 나타냈다. Li¹⁵⁾ 등은 결합제와 가소제의 첨가량이 최적의 비 일때 가장 분산성이 좋은 유동특성을 나타내는 결과로 이때 최저의 점도를 내고 최고의 밀도값을 나타낸다고 했다. 따라서 결합제와 가소제의 비율이 2:1의 조성에서 테이프 캐스팅을 하기에 최적의 슬러리 조건으로 판단된다.

유기물의 첨가량이 지나치면 유동특성이 나빠질 뿐만 아니라 탈바인더 공정에서도 어려움이 있어 슬러리내의 용매가 충분히 용해를 시킬 수 있는 적정량을 선정하여 테이프캐스팅시 효율을 극대화할 필요성이 있다. Fig. 5는 조성 C11~C15의 조성으로 분말과 전체유기물의 결합제/가소제의 함유량 $(b+pl)/(b+pl+p)$ 에 따른 슬러리의 점성거동이다. 전체 유기물의 함유량이 증가 할수록 입자간 가교역할을 하여 점도 증가시키는 역할을 하는 결합제의 상

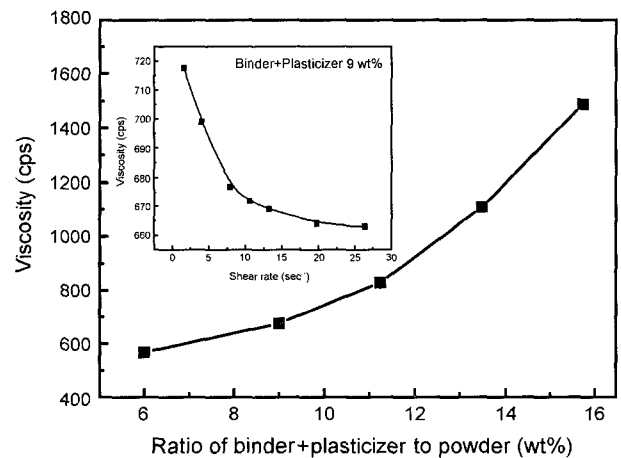


Fig. 5. A plot of ratio of binder and plasticizer to powder vs. viscosity, where $p/(p+s)$ ratio and $b/(b+pl)$ ratio was 65 wt% and 67 wt%, respectively.

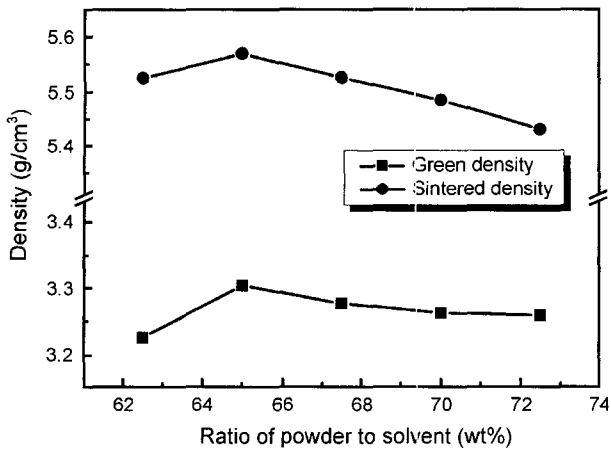


Fig. 6. Plots of ratio of powder to solvent vs. density in forms of green tape and sintered tape, where $b/(b+p)$ ratio and $b+pl/(b+pl+p)$ ratio were 67 wt% and 9 wt%, respectively.

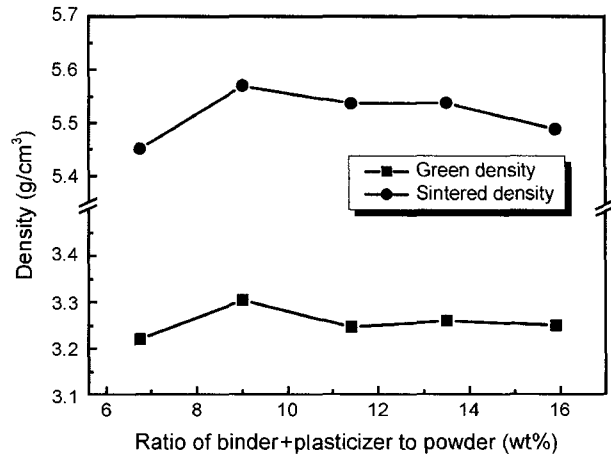


Fig. 8. Plots of ratio of binder and plasticizer to powder vs. density in forms of green tape and sintered tape, where $p/(p+s)$ ratio and $b/(b+pl)$ ratio were 65 wt% and 67 wt%, respectively.

대량이 일정한 비로 증가하여 점도는 증가하였으며 또한 이들 유기물들을 완전히 용해시킬 수 있는 유기용매의 량 역시 상대적으로 줄어들어 들어 점도는 계속 상승하였다.

3.3. 시트의 밀도 변화특성

Fig. 6에는 $p/(p+s)$ 의 그린/소결밀도 변화를 나타내었다. 그린 밀도와 소결밀도 모두 분말의 첨가량 증가에 따라 슬러리 내의 solid loading의 증가로 인하여 밀도가 증가하다가 67.5 wt%에서 다시 밀도가 감소하게 되는데 이는 과도한 파우더의 함량으로 인한 용매 부족으로 입자 배열에 필요한 시간이 더욱 오래 걸려 결국 분산효과가 떨어져 부분적인 결집 또는 결함이 나타난 것으로 판단된

다. Fig. 7은 $b/(b+pl)$ 의 변화로 결합제의 첨가량에 따라 그린/소결밀도이다. 결합제가 분말입자들을 서로 연결하는 역할을 하며 용매증발 후에도 강한 접착을 갖게 하여 슬러리 내부의 solid loading을 높여 시트의 밀도가 높아진 것으로 사료된다. 그러나 67 wt% 이상 첨가 시 밀도는 다시 감소한다. 이는 가소제의 부족으로 인한 것으로 가소제는 입자간 윤향역할을 해서 입자의 이동도를 증가시켜 입자간의 배열을 용이하게 하는 작용을 한다. 따라서 결합제가 67 wt%의 첨가에서 최고의 밀도값을 나타냄으로써 최적의 첨가 조성임을 알 수 있었으며 앞선 실험의 점도 결과와도 일치함을 보여준다. Fig. 8은 $(b+pl)/(b+pl+p)$ 변화로 결합제/가소제의 함량에 따른 그래프이다. 그린/소결밀도는 적정의 유기물의 첨가에 의해 밀도가 향상됨을 알 수 있다. 하지만 유기물의 함유량이 많아질수록 입자간의 거리가 증가하여 시트의 충전 밀도가 감소함에 따라 밀도는 다시 저하됨으로서 슬러리는 유기물의 양이 작아질수록 높은 solid loading을 유지하고 있는 것으로 판단된다.

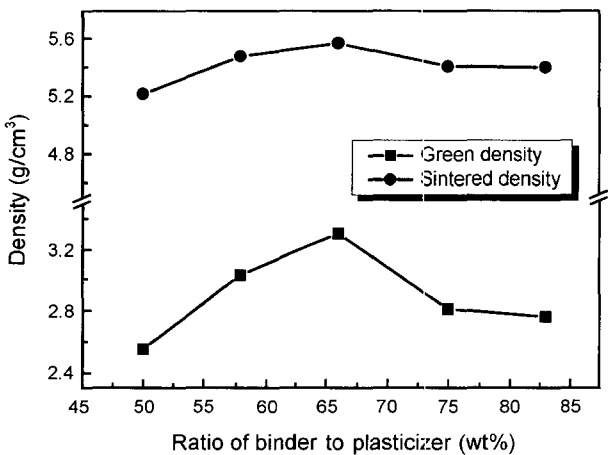


Fig. 7. Plots of ratio of binder to plasticizer vs. density in forms of green tape and sintered tape, where $p/(p+s)$ ratio and $b+pl/(b+pl+p)$ ratio was 65 wt% and 9 wt%, respectively.

3.4. 미세구조 변화 관찰

Figs. 9와 10은 $b/(b+pl)$ 로 결합제의 첨가량에 따른 그린/소결 시트의 미세구조사진이다. 67 wt%의 첨가량에서 그린/소결 시트의 미세구조가 가장 두드러지게 치밀한 구조를 나타냄을 확인할 수 있었다. 이로써 유동특성과 밀도 변화 그리고 미세구조가 전부 잘 일치함을 보여주었고 결합제, 가소제의 상대 비 조절이 슬러리 제조 시 중요한 변수임을 확인할 수 있었다.

금속과 동시소결공정에 따른 소자의 특성은 결정상 및 전극의 확산현상에 의존하며 금속전극의 확산은 전극의 형태 및 금속전극/세라믹 계면의 유전상수를 변화시켜 누

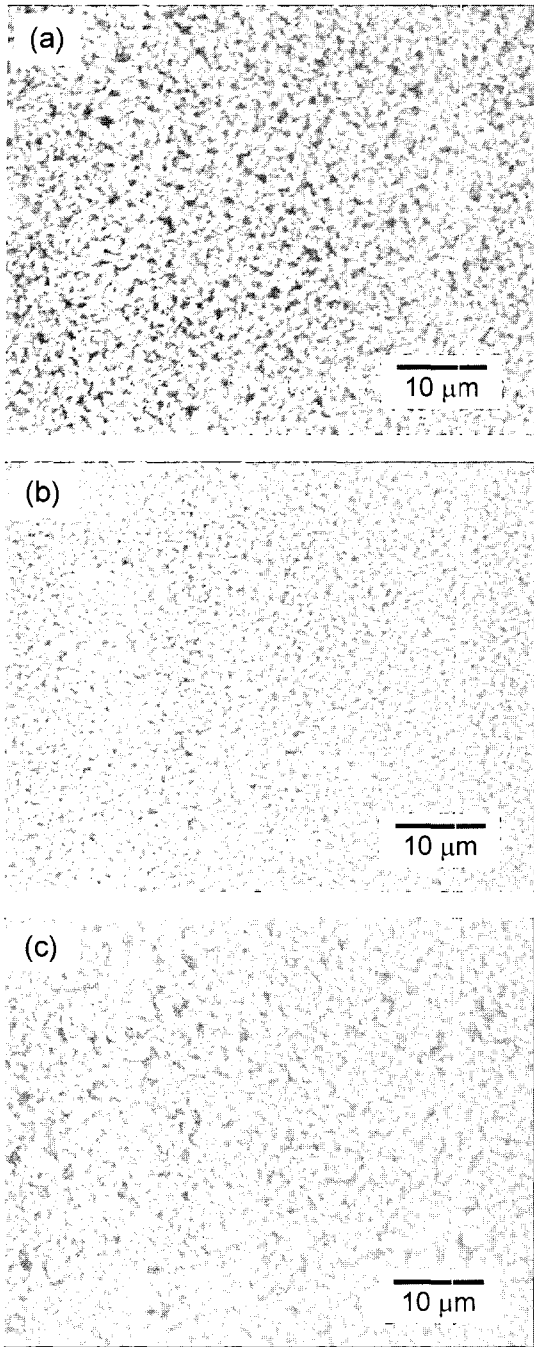


Fig. 9. SEM images showing the surface of green sheets with b/(b+pl) ratio (a) 50 wt%, (b) 67 wt%, and (c) 83 wt%.

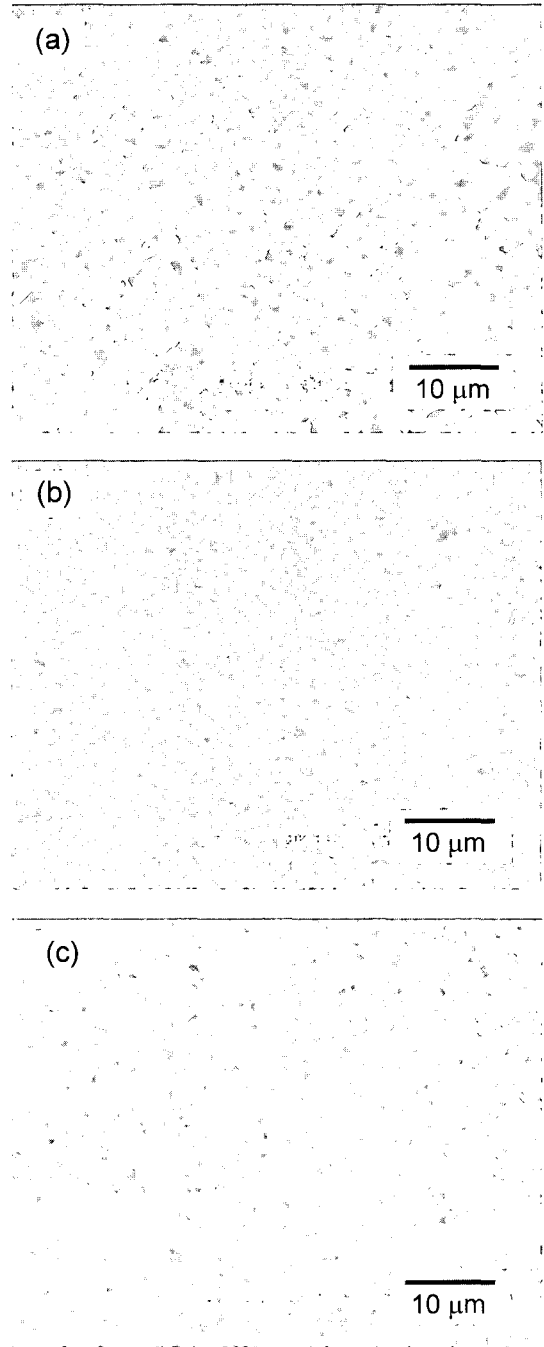


Fig. 10. SEM images showing the surface of sintered sheets with b/(b+pl) ratio at 1050°C (a) 50 wt%, (b) 67 wt%, and (c) 83 wt%.

설전류, 유전체의 절연파괴 등과 같은 현상을 일으킬 수 있다. Fig. 11에는 시트에 Ag-Pd 전극을 인쇄한 후 적층 가압하여 소성한 적층체의 미세구조사진이 적층한 시트 부분과 전극부분이 치밀한 구조를 하고 있음을 알 수 있었고, 적층방향으로 파단된 면을 EDS 분석을 통해 확인한 결과 전극이 세라믹스내 확산이 일어나지 않았음을 확인할 수 있었다.

4. 결 론

BaO-Nd₂O₃-TiO₂계 마이크로파 유전체 세라믹스에 20 wt%의 결정화유리를 첨가하여 세라믹-결정화유리 복합 유전체 분말을 제조한 후, 슬러리의 최적 공정첨가제 조성 및 시트의 특성들을 조사하였다.

침전실험과 점도측정을 통하여 fish oil의 함량이 1.75 wt%

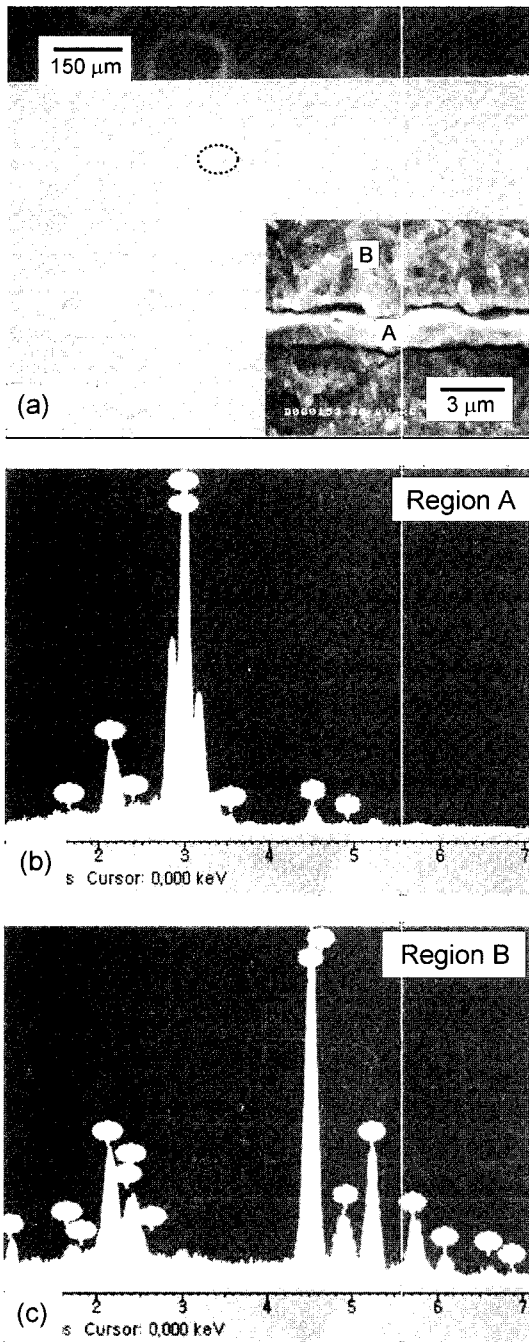


Fig. 11. (a) SEM image showing the cross section of cofiring-processed multi-layer device, designed with stacking the dielectric sheet and electrode sheet alternately, and (b) energy dispersive spectroscopy analysis of A region and (c) B region indicated in an image located in right-hand of (a).

에서 복합체 유전분말의 최대분산도를 확인하였고 분산제의 함량이 증가할수록 분말표면에 흡착하는 분산제의 양이 증가하여 분말의 응집을 초래하는 현상을 보였다. 일정한 유기물(결합제/가소제)함량에서 최적조성비는 결

합제의 양을 증가하면서 조건을 찾을 수 있었고 바인더가 67.5 wt%의 첨가량에서 이를 확인할 수 있었다. 이때 슬러리는 최저의 점성 변화값을 나타냈으며 밀도값과 표면미세구조사진에서도 일치하는 경향을 보였다. 복합 유전체 분말과 용매의 비율 65 : 35 결합제는 6 wt%, 가소제는 3 wt% 첨가량에서 가장 우수한 점도특성과 그린밀도/소결밀도가 나타났다. 제조된 시트를 내부전극과 동시 소결한 결과 확산등의 반응없이 치밀한 구조를 보여 접합성도 우수하게 나타났다. 따라서 본 연구에서 얻어진 슬러리 조건은 앞으로 LTCC 제조공정에서 효과적임을 확인할 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 산업자원부의 지역혁신 인력양성사업의 연구결과로 수행되었음.

REFERENCES

1. R. R. Tummala, "Ceramic and Glass-Ceramic Packaging in the 1990s," *J. Am. Ceram. Soc.*, **74** [5] 895-908 (1991).
2. S. Hirano, T. Hayashi, and A. Hattori, "Chemical Processing and Microwave Characteristics of $(Zr,Sn)TiO_4$ Microwave Dielectrics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **74** [6] 1320-24 (1991).
3. J. H. Jean and S. C. Lin, "Low-Fire Processing of ZrO_2 - SnO_2 - TiO_2 Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, **83** [6] 1417-22 (2000).
4. D. Koo and K. H. Auh, "A Study on the Glass Fabrication and Sintering Behaviour of Glass/Ceramics for SiO_2 - TiO_2 - RO (RO : BaO, CaO, SrO) System," *Kor. Assoc. Cryst. Growth*, **8** [4] 189-94 (1999).
5. D. S. Heo, W. S. Lee, S. J. Jeong, J. S. Song, F. Utsuno, and B. K. Ryu, "Sintering and Dielectric Properties of BaO - Nd_2O_3 - TiO_2 Microwave Ceramics with Glass-Ceramic," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **41** [61] 444-49 (2004).
6. R. E. Mistler, D. J. Shanefield, and R. B. Runk, "Tape Casting of Ceramics," pp. 411-88 in *Ceramic Processing Before Firing*, Edited by G. Y. Onoda and L. L. Hench, Wiley, New York (1978).
7. Q. Zhang, X. Luo, W. Li, and H. Zhuang, "Tape Casting of AlN /Glass Composites for LTCC Substrate," *J. Mat. Sci.*, **38** 1781-85 (2003).
8. A. Karas, T. Kumagai, and R. Cannon, "Casting Behavior and Tensile Strength of Cast $BaTiO_3$ Tape," *Adv. Ceram. Mater.*, **3** [4] 374-77 (1988).
9. R. E. Mistler and E. R. Twinn, "The Tape Casting Process"; pp. 132-33 in *Tape Casting Theory and Practice*, *Am. Ceram. Soc.*, U.S.A. (2000).
10. R. Moreno, "The Role of Slip Additives in Tape-Casting Technology : Part I Solvent and Dispersants," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **71** [10] 1521-31 (1992).
11. Y. Liu and L. Gao, "Deflocculation Study of Aqueous Nanosized Y-TZP Suspensions," *Mater. Chem. Phys.*, **78**

- 480-85 (2002).
12. C. Galassi, E. Roncari, C. Capiani, and P. Pinasco, "PZT-Based Suspensions for Tape Casting," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **17** [3] 361-71 (1997).
 13. J. H. Kim, T. Y. Yang, Y. B. Lee, S. Y. Yoon, and H. C. Park, "Effect of Solvent Mixtures on Dispersion and Rheology of Alumina/Zirconia Tape Casting Slurries," *Kor. J. Mater. Res.*, **11** [6] 519-26 (2001).
 14. R. Moreno, "The Role of Slip Additives in Tape-Casting Technology : Part II Binders and Plasticizers," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **71** [11] 1647-57 (1992).
 15. F. Li, C. M. Wang, and K. A. Hu, "Optimization of Non-Aqueous Nickel Slips for Manufacture of MCFC Electrodes by Tape Casting Method," *Mater. Res. Bull.*, **37** 1907-21 (2002).