アルミナセラミックスのドクターブレード方式による キャスティング条件とそれが成形体に及ぼす 影響の研究 (第2報)

大塚 寛治・北村 和平*・大沢 義幸**・関 端正雄**

(株)日立製作所デバイス開発センター
* (株)日立製作所 武蔵工場
** (株)日立製作所 神奈川工場

A Study on the Alumina Ceramic Casting Conditions by the Doctor-Blade Method and Their Effect on the Properties of Green Tape (Part 2)

Kanji OTSUKA, Wahei KITAMURA*, Yoshiyuki OHSAWA** and Masao SEKIBATA**

Device Development Center of Hitachi, Ltd.
2326, Imai, Ome-shi, Tokyo 101
* Musashi Works of Hitachi, Ltd.
** Kanagawa Works of Hitachi, Ltd.

The thickness accuracy in alumina ceramic green tapes made by the doctor-blade method has been improved the experiment and calculated simulation. A minimized thickness dispersion in the green tape using the one-blade construction method was derived. In this study, the thickness accuracy of the green tape made by a two-doctor-blade construction method was examined. Calculated simulation was undertaken to correlate with the experimental results. The two-blade construction method improved the uniformity in thickness. In the 1st report, the parameter of the slurry reservoir level (H_R) has been the parameter responsible for the uniformity in thickness. Simulation of the two-blade construction method was derived as follows that H_R shared smaller.

$$H = l_2/l_1 \cdot h_1^2/h_2^2 \cdot H_R + 6\mu l_2/\rho g h_2^2 \cdot V_0(h_1 - h_2)$$

Where, H_R is 1st reservoir level, H is 2nd one, l_1 and l_2 are 1st and 2nd blade thickness, h_1 and h_2 are 1st and 2nd blade clearance respectively, and V_0 is carrier transfer speed. When the 2nd term in the right hand of the equation was made large, the effect of H_R could be made small. Consequently, the thickness accuracy was improved. In the experimental observation, 2nd reservoir slurry was drifted to the 2nd blade side by the transferred carrier tape. The apparent reservoir level (H) near the 2nd blade side became higher than that of mean value. The level was made the shape as sloped down to the 1st level. This sloped level had a dumping effect by shifted to forward and back. Subsequently, the apparent reservoir level (H) was kept constant. It improved to the thickness accuracy.

[Received February 13, 1986]

Key-words : Ceramic green tape or sheet, Doctor-blade method, Casting control

1. 緒 言

半導体パッケージ、又は基板に使われているアルミナセラミックスは、柔軟なグリーンシートを加工することにより種々の形に作られている。このグリーンシートの厚みの正確な制御が、高精度の完成品を作るための要因となっている。第1報¹⁾では図1のように、ドクターブレード法で作られたグリーンシートの厚みの制御要因について、検討を加えた。ブレードの寸法、その間隔、粘度、キャリアテープ速度、タンク中の液面レベルなどの要因の相互関係について、計算的シミュレーションと実際の実験結果と比較を行い、厚みに対する各要因の影響度を調べ

た。そしてそれぞれの要因の製造時の変動幅を計算式に代入し、厚みばらつき $\pm 6.2\%$ を導き出した。実際の製造時の厚みばらつき $\pm 4\%$ の改善方向を明らかにすることができた。しかしながら電子部品の小形化、高精度

Fig. 1. Schematic diagram of green tape casting machine.

化の要求から、第1報で検討した要因以外の工夫が望まれている。RunkとAndrejco²⁾はドクターブレードを2枚並べ、1段目のブレードでキャストされたスラリーを2枚目のブレードで更に高精度のレベルに仕上げる方法を提案している。しかし定性的に効果を述べているにすぎず、その有効性を効率よく引き出していない。本報では、この2段ブレード法の効果をより定量的に解析し、厚みの精度を第1報より高める手法を導き出すことを目的とした。

2. 実験方法

2.1. スラリーの調整方法

第1報で詳細に述べたため、ここでは要点を記述する。ここで取り上げたアルミナ質セラミック原料は第1報のものと同じである^{3)~5)}。すなわち、アルミナ、タルク、木節粘土とポリビニールブチラル・バインダー（顆粒状）を内径523 mm、幅600 mmの内寸法をもつボールミルで、25×25 mmのシリンダー状アルミナボールを用い、35 rpmの回転で3時間混合粉碎を行った。その後、ソルベントなどの液状有機物を投入し、3時間混合し、取り出してスラリーとした。スラリーは真空脱泡により内部気泡が除去されるが、この際、ソルベントが蒸発し粘度が変化する。この脱泡時間をコントロールすることにより粘度調整を行った。スラリーは非ニュートン性^{1),6)}があるため、シート加工する直前まで常にかくはんし、経時変化のないよう注意し、実験を行った。

2.2. グリーンシートの成形

図1に示すキャストイング機にスラリーを投入（第1段目のタンク）し、ドクターブレードのすき間より一定の厚さにスラリーを調整し、乾燥させ、キャリアテープよりはがして、グリーンシートを作製した。図2にブレード

Fig. 2. Diagram for the simulation model of casting flow.

ド部の詳細を示す。この2段ブレード構造における制御要因について検討を加えた。

3. 2段ブレードキャストイング条件とシート厚みの関係式の導入

第1報で導入した手法をそのまま利用する。図2はドクターブレードの構成を示すダイアグラムである。1段目のブレードのキャストイング流量 Q_1 は第1報(19)式より、

$$Q_1 = \frac{\rho g H_R}{12 \mu l_1} \cdot h_1^3 + \frac{1}{2} V_0 \cdot h_1 \quad (1)$$

である。ここでそれぞれのパラメーターは図2に説明されている。2段目のブレードにおいても同様の式で Q_2 が与えられる。 $Q_1 > Q_2$ の条件で、2段目のブレードの背面にスラリーがたまり、2枚のブレード間隔 L を適当に取れば、図2のように第2タンクで H なる高さにスラリーが貯蔵される。 H が增大するとともに2段目のブレード下の圧力は高まり、流量 Q_2 は増大し、 $Q_1 = Q_2$ で平衡に達する。この関係を時間の変化で表すと、

$$\frac{dH}{dt} = \frac{Q_1 - Q_2}{L} \quad (2)$$

となる。この式では1段、2段目のブレード間が水平な状態でスラリーがたまりと仮定した。(2)式は(1)式の関係から、

$$\begin{aligned} \frac{dH}{dt} &= \frac{\frac{\rho g h_1^3}{12 \mu l_1} \cdot H_R + \frac{1}{2} V_0 h_1 - \frac{\rho g h_2^3}{12 \mu l_2} \cdot H - \frac{1}{2} V_0 h_2}{L} \\ &= \frac{\frac{\rho g h_1^3}{12 \mu l_1} \cdot H_R + \frac{1}{2} V_0 (h_1 - h_2)}{L} \\ &= -\frac{R_2}{L} \cdot H + \frac{E}{L} \end{aligned} \quad (3)$$

となる。ここで R_2 , E は

$$R_2 = \frac{\rho g h_2^3}{12 \mu l_2}, \quad E = \frac{\rho g h_1^3}{12 \mu l_1} \cdot H_R + \frac{1}{2} V_0 (h_1 - h_2)$$

とする。次の関数因子をとると、

$$f(t) = \frac{R_2}{L}, \quad F(t) = \frac{R}{L} t, \quad g(t) = \frac{E}{L}$$

となり、(3)式は線型微分方程式となり、 H に関して次のような解が得られる。

$$\begin{aligned} H &= e^{-\frac{R_2}{L} t} \left[\int \frac{E}{L} e^{\frac{R_2}{L} \cdot t} dt + C \right] \\ &= \frac{E}{R_2} + C e^{-\frac{R_2}{L} \cdot t} \\ &= \frac{12 \mu l_2 \left[\left(\frac{\rho g h_1^3}{12 \mu l_1} \right) \cdot H_R + \frac{1}{2} V_0 (h_1 - h_2) \right]}{\rho g h_2^3} \\ &\quad + C \exp \left(-\frac{\rho g h_2^3}{12 \mu l_2 L} \cdot t \right) \\ &= \frac{l_2}{l_1} \cdot \frac{h_1^3}{h_2^3} \cdot H_R + \frac{6 \mu l_2}{\rho g h_2^3} V_0 (h_1 - h_2) \end{aligned}$$

$$+ C \exp\left(-\frac{\rho g h_2^3}{12 \mu l_2 L} \cdot t\right) \quad (4)$$

ここで境界条件は $t=0$ のとき、 $H=0$ のため、

$$C = -\left[\frac{l_2}{l_1} \cdot \frac{h_1^3}{h_2^3} \cdot H_R + \frac{6 \mu l_2}{\rho g h_2^3} \cdot V_0 (h_1 - h_2)\right]$$

となる。したがって、 H は、

$$H = \left[\frac{l_2}{l_1} \cdot \frac{h_1^3}{h_2^3} \cdot H_R + \frac{6 \mu l_2}{\rho g h_2^3} \cdot V_0 (h_1 - h_2)\right] \left[1 - \exp\left(-\frac{\rho g h_2^3}{12 \mu l_2 L} \cdot t\right)\right] \quad (5)$$

となる。 H が安定するときは $Q_1=Q_2$ すなわち $t=\infty$ であり $\exp$ 項は 0 となるため、このときの H を H_s とすると

$$H_s = \frac{l_2}{l_1} \cdot \frac{h_1^3}{h_2^3} \cdot H_R + \frac{6 \mu l_2}{\rho g h_2^3} \cdot V_0 (h_1 - h_2) \quad (6)$$

となる。

第 1 報で H_R のばらつきが Q_1 すなわち、ブレード通過後のスラリーの厚み T_1 をばらつかせる最大の要因であると指摘した。この観点から (6) 式を見ると、 H_R の関与しない右辺第 2 項を大きくすれば全体として、 H_R のばらつきの寄与率を小さくできることが分かる。図 3 は第 2 ブレードのすき間 h_2 を振ったときの $H_s(t=\infty)$ の変化と右辺第 2 項成分の大きさを見たものである。この条件では右辺第 2 項の成分は小さいことが判明する。したがって、右辺第 2 項成分を大きくすると思われるキャリアテープ送り速度とスラリー粘度をパラメーターにし H_R と H_s の関係をとった。これを図 4 に示す。

Fig. 3. Second slurry reservoir level (head) related with the second blade height by Eq. (6).

Fig. 4. Relationship between the first slurry reservoir level and second one's level on the steady state by Eq. (6).

ここで $H_R=0$ のときの H_s の値が右辺第 2 項の値であり、粘性 μ を高く送り速度 V_0 を大きくすることが右辺第 2 項を大きくする効果的方法であることが分かった。第 1 ブレードのスラリー高さ H_R を低くすることも相対的效果が期待できる。

4. 第 1 段スラリータンクの液面高さばらつきにおける、第 2 段のその計算的シミュレーションと実験結果の比較と考察

第 1 段スラリータンクへのスラリーの供給はノズルより断続的にオン/オフ制御で行われている。したがって、液面高さ H_R はその中心と最大又は最小の差を ΔH_R とすると、 $H_R \pm \Delta H_R \sin \omega t$ となり、この周期的変動を表す式は、

$$f(t) = A e^{-\alpha t}, -\pi < x < \pi \quad (7)$$

となり、これを連続的に扱うにはフーリエ展開を行う必要がある。しかしこの展開式*は複雑なため、正弦波に置き換えた近似を行うことにした。すなわち、

$$H = \left[\frac{l_2}{l_1} \cdot \frac{h_1^3}{h_2^3} (H_R + \Delta H_R \sin \omega t) + \frac{6 \mu l_2}{\rho g h_2^3} V_0 (h_1 - h_2)\right] \cdot \left[1 - \exp\left(-\frac{\rho g h_2^3}{12 \mu l_2 L} \cdot t\right)\right] \quad (8)$$

となる。ここで ω は角周波数である。(8) 式中には仕

* $F(y) = \frac{2A}{\pi} \sin \alpha x \left[\frac{1}{2\alpha} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n \cdot \frac{a \cos nt + n \sin nt}{a^2 + n^2}}{a^2 + n^2} \right]$

ここで A は周期 0 のときの $f(x)$ の値

Fig. 5. Transient variation of the second reservoir slurry level.

事伝達というばね成分がないため、共振的要素はない。また、発散するかどうか伝達関数の導入による確認が必要であるが、通常、 $H_R \gg \Delta H_R$ であり、大きな容量の中での変動なので発散しない。図5は現実的な条件をそれぞれのパラメーターに代入し、周波数 ω を2点とったときの(8)式の過渡時の変化をとったものである。また、同時に同じパラメーターでの実験結果もプロットした。図5のパラメーター群から分かるように第1タンクの液面ばらつきは $3.0 \pm 0.1 \text{ cm}$ 、すなわち、 $\pm 3.33\%$ であったものが第2タンクの液面ばらつきでは、最終的に計算上で $4.79 \pm 0.15 \text{ cm}$ 、すなわち $\pm 3.2\%$ にしか改善されていない。これは式中右辺第2項が非常に小さい値であったためである。しかしながら実験結果は $4.98 \pm 0.07 \text{ cm}$ ($\pm 1.4\%$)と大幅な改善がなされていることが判明した。右辺第2項に関係なく液面ばらつきが改善されている理由は何かについて種々の実験的観察を慮みた結果、次のようなことが明らかとなった。

まず、図5より、実験曲線は非常に滑らかな立ち上りで、かつ、平衡に達する時間の早いことが分かる。(8)式の指数項を-1にしたときの時間 t_c を時定数とする、

$$H = 0.63 H_s$$

となるため、この関係から実験値の t_c を求めると1300 sとなる。なお計算式でのそれは $t_c = 4200 \text{ s}$ であるため、実験値のその3.2倍遅いことが定量的に導びき出せる。このような大きな差は計算式のモデルと実際のスラリーの挙動との間に異なった部分があるものと推定される。図5の実験値 H の測定点は第2ブレードの近傍であったが、第2タンク全面での H の動きを観察したところ、図6で示した模式図のように H は各時点で水平

レベルでないことが確認された。すなわち、 H の測定点における高さ(第2ブレードの近傍)に比べ第1ブレード近傍ではレベルが低く、シミュレーションモデル(水平とした)と異なっている。これはスラリー自身の粘性でキャリアテープに索引された結果と思われる。また、これが t_c を早くした原因となり、図中液面形状5の点線で示したように H_R の変動を吸収し、測定点 H を安定させるダンピング効果を作る働きをすることにもなっている。なお、平衡後の H のレベルは水平には達しないが、シミュレーションモデルと近似した扱いができるのではないと思われる。図5の実験値 $H_s = 4.98$ 、シミュレーションのそれは $H_s = 4.79$ が近似していることから裏付けられたと考える。以上のシミュレーションと一致しない現象について、別の観点から実験的に確認し

Fig. 6. Slurry level feature of the second reservoir depending upon time.

Table 1. A typical tape thickness dispersion from the simulation of the two-blade casting method.

Parameters	Design value	Dispersion	Effect of T	(Effect of T) ²	Reference
l_2	1.2cm				
V_0	0.425cm/sec	0.0005cm/sec	0.00015	2.25×10^{-8}	
h_2	0.15cm	0.002cm	0.00144	207.36×10^{-8}	Actual dispersion
H	5.14cm	0.07cm	0.00023	5.29×10^{-8}	Assuming from Fig.8
Slurry temperature	25 C	1.5 C			Actual dispersion
$u_{D=1}$	300g/cm sec	26g/cm sec	0.00149	222.01×10^{-8}	
T	0.074cm	0.0021		4.37×10^{-6}	
(2.8%)					

Note: Condition of other parameters

$$l_1=1.2\text{cm}, h_1=0.17\text{cm}, H_R=3.0\text{cm}, H=0.1\text{cm}(3.33\%), \rho=2.4\text{g/cm}^3, \mu=\text{sec}$$

H value is derived from Equation (8), T is derived from Equation (10)

ておく必要がある。このために第1タンクに1回限りスラリーを供給し、その経時変化を見た。第1タンクの液面と第2タンクの第2ブレード近傍の液面の変化を見た結果、図7に示すようになった。 H_R が大幅に変化しているにもかかわらず、 $H=1.1\sim 1.2\text{cm}$ (ばらつき $\pm 4.3\%$)を保持して、大きなダンピング効果のあることが判明した。

Runkらの2段ブレードの提案での実験内容はまさに図7と同じ条件、すなわち、第1タンクにスラリーを1回だけ供給したものであり、テープの厚み $0.127 \pm 0.005\text{cm}$ (ばらつき $\pm 4\%$)を得ている。このばらつきから H のばらつきを推定すると $\pm 2.7\%$ 程度となろう。Runkらの実験条件は $V_0=1.27\text{cm/s}$, $\mu=420\text{g/cm}\cdot\text{s}$, $h_1=h_2=0.36\text{cm}$ (H_R , l_1 , l_2 , L , ρ は不明)であるが、(8)式の右辺第2項が比較的大きくなる条件であり、この点と液面せり上がり効果が重畳されて図7の実験ばらつき値($\pm 4.3\%$)より良い結果を得たものと推測される。

第1報よりブレード吐出後のキャスト厚み T は、

$$T = \frac{\rho g H}{12 \mu' l_2 V_0} h_2^2 + \frac{h_2}{2} \quad (9)$$

となり、乾燥後の厚み T' は、

$$T' = \alpha \left(\frac{\rho g H}{12 \mu' l_2 V_0} h_2^2 + \frac{h_2}{2} \right) \quad (10)$$

となる。ここで α は厚み方向の乾燥収縮率である。第1報の1段ブレードで(10)式の計算から、 H のばらつき要因が T' のばらつきの $2/3$ を占めていた。2段ブレードでは(8)式の右辺第2項の値を制御することができ、液面せり上がり効果を期待できることから、 H のばらつきを小さく、結果として T' のばらつきを小さくすることができる。その一つのモデルを示すと表1のようになる。 H の影響はこのモデルではほとんど無視できるレベルにまで改善され、スラリー温度変化に伴うスラリー粘度変化とブレード設定寸法のばらつきが大きな要因となった。

第2タンク液面のせり上がり効果をシミュレーション式に組み入れるためには、スラリー流れの流体力学的な解析が必要であり、今後の課題としたい。しかしながら実用上2段ブレードを有効に使用する(8)式の右辺第2項を大きくする指針が得られ、液面のせり上がりは自動的にこの効果に重畳することから、高精度なキャストイングシートを作る方法論が明らかになったと考えられる。

5. 総括

アルミナセラミックスのグリーンシート作製に対し、2段ブレード方式を採用することにより、シート厚み精度を向上させるための検討を行った。第1報に引き続いてシミュレーション式の導入を行い、実験結果と比較し、次の結論が導かれた。

(1) 2段ブレードにおけるモデルにより、(8)式が導びかれたが、第2タンク液面の挙動に差があり、非定常状態で、実験との整合性がとれなかった。しかし、

Fig. 7. Transient variation of the slurry reservoir level in one time slurry feeding.

定常状態での液面レベルのよい一致がみられた。

(2) 非定常状態での第2タンク液面は、第2ブレード近傍でせり上がり、第2タンク液面を水平としたモデルと異なり、これがシミュレーションの差となったと思われる。

(3) 液面せり上がり効果が、第1タンクの液面ばらつき ΔH_R を第2タンクの液面に直接伝えないダンピングの役目を果たすることが明らかになった。

(4) シミュレーション式((8)式)の右辺第2項を大きくすることは第2液面 H での第1液面 H_R のばらつき影響を小さくすることであり、シート厚 T' を高精度に保つ一つの指針である。

(5) (4) 項の指針と実験結果で得られた H のばらつきを総合した実用条件で、シート厚 T' のばらつきの試算を第1報と同様に行ったところ、1段ブレードでの

T' ばらつき6.2% (第1報) に対し、2段ブレードのそれは±2.8%と改善され、 H のばらつきはもはや無視できるほど小さく、次の改善項目として、スラリー温度ばらつきとブレード間隔設定精度がクローズアップされた。

文 献

- 1) 大塚寛治, 大沢義幸, 山田耕一郎, 窯協, 94, 351-59 (1986).
- 2) R. B. Runk and J. Andrejco, *Am. Ceram. Soc. Bull.*, 54, 199-200 (1975).
- 3) 大塚寛治, 宇佐美 保, 山田耕一郎, 関端正雄, 神力喜一, 窯協, 84, 101-10 (1976).
- 4) 大塚寛治, 宇佐美 保, 関端正雄, 窯協, 89, 309-18 (1981).
- 5) 大塚寛治, 荻原 寛, 窯協, 93, 28-35 (1985).
- 6) L. Braun, J. R. Morris, Jr. and W. R. Cannon, *Am. Ceram. Soc. Bull.*, 64, 727-29 (1985).

訂 正

窯業協会誌 94 [6] 577-82 (1986) 掲載の、芦塚正博・木村泰之・藤井秀樹・阿部浩市・窪田吉孝“イットリア部分安定化ジルコニアの熱衝撃破壊”の著者名に誤字がありましたので、下記のように訂正します。

芦塚正博・木村泰之・藤井秀樹・阿部浩市・窪田吉孝