文章编号:1007 - 4252(2022)06 - 0006 - 529　　DOI:10.20027/j.gncq.2022.0067

烧结工艺对 LTCC 低通滤波器与 Ag 共烧收缩匹配性的影响

王胜刚[1],赵祥广[1,*],陈志强[2],邓　兵[1],刘　玲[1],沈诗垚[1]
(1. 深圳振华富电子有限公司,深圳　518109;2. 中国电子信息产业集团有限公司,深圳 518057)

摘要:低温共烧陶瓷(LTCC)技术是制备多层片式射频低通滤波器的关键,但实现异质材料的匹配共烧一直是研究的难题。通过优化升温速率、保温时间、烧结温度,深入分析烧结工艺对共烧收缩匹配性的影响,提出在链式烧结炉中以烧结温度 860 ℃、升温速率 3.5 ℃/min、保温时间 45 min 制备出的低通滤波器,陶瓷基体与 Ag 电极共烧匹配良好,插入损耗从 1.19 降低至 0.88,瓷体强度从 15.67 N 提高至 32.28 N,1.5 倍额定电流冲击后开路率从 0.19%降低至 0.05%,极大地提高其电性能、力学性能与可靠性,为后续研究异质材料匹配共烧奠定了基础。

关键词:LTCC;烧结工艺;共烧收缩率;Ag 电极
中图分类号:TN61　　**文献标志码**:A

Effect of Sintering Process on the Shrinkage Matching of LTCC Low-Pass Filter and Ag Co-firing

WANG Sheng-gang[1], ZHAO Xiang-guang[1,*], CHEN Zhi-qiang[2], DENG Bing[1], LIU Lin[1], SHEN Shi-yao[1]
(1. Shenzhen Zhenhuafu Electronics Co, Ltd, Shenzhen 518109, China; 2. China Electronics Corporation, Shenzhen 518057, China)

Abstract: Low temperature co-fired ceramics (LTCC) is the key to fabricate multilayer chip RF low-pass filters, but it is always a difficult problem to realize the matching co-firing of heterogeneous materials. By optimizing the heating rate, holding time and sintering temperature, the influence of sintering process on the shrinkage matching of co-firing was deeply analyzed. It was proposed that the low-pass filter prepared in the chain sintering furnace with the sintering temperature of 860 ℃, the heating rate of 3.5 ℃/min and the holding time of 45 min is proposed. The ceramics matrix and Ag electrode are well co-fired, the insertion loss is reduced from 1.19 to 0.88, the porcelain body intensity is increased from 15.67 N to 32.28 N, and the open circuit rate is reduced from 0.19% to 0.05%, which greatly improves their electrical properties, mechanical properties and reliability, and lays a foundation for the follow-up study

收稿日期:2022-10-09;　　**修订日期**:2022-12-21
作者简介:王胜刚(1975-),男,四川南充人,硕士,主要研究方向为微波元件、磁性元件设计与工艺(E-mail:wsgzl888@163.com).
通信作者:赵祥广(1997-),男,四川泸州人,硕士,主要研究方向为 LTCC 工艺开发、引进、优化(E-mail:1345823180@qq.com).

on the matching co-firing of heterogeneous materials.

Key words: LTCC; Sintering Process; Co-firing Shrinkage; Ag Electrode

0 引言

低温共烧陶瓷(Low Temperature Co-fired Creamics,LTCC)技术是上世纪 80 年代休斯公司开发的新型材料技术,并于上世纪 90 年代在美国、日本等国家飞速发展[1-3]。进入 21 世纪后,移动通信的快速发展对产品的要求日益剧增,对产品的组装精密度提出了更高的要求,LTCC 技术以其突出的优势得到广泛关注,目前代表了电子元器件小型化、高频化、集成化和低成本化的发展方向,已经成为实现无源器件集成的主流技术[4-6]。随着 LTCC 技术的飞速发展,对滤波器的研究也迈入了新的世界。低通滤波器作为最常用的电磁兼容滤波器的一种,具有低损耗高抑制的特点,被广泛应用于各种通信系统中,是现代射频系统中不可缺少的器件之一。

LTCC 技术尽管为多层陶瓷带来了巨大的变化,但许多相关工艺技术尚不成熟或亟待开发。在 LTCC 滤波器工艺流程中,需要将陶瓷基体材料和导电材料(Au、Ag、Cu)等以叠层的方式交叠并烧制成独石结构,而异质材料共烧技术是目前 LTCC 领域公认的技术难题[7-9]。这是由于不同材料体系在热力学方面均有一定的差异,特别是烧结致密化温度和速率及热膨胀系数的不同,在共烧和后续冷却的过程中极易产生界面应力、玻璃相溢出覆盖引出电极、引出结构内缩、界面微裂纹、弯曲、翘曲等问题,极大地劣化了产品的力学性能,降低了产品的可靠性。通常在陶瓷基体材料与内电极银浆烧结过程中,内电极银浆往往先于陶瓷基体收缩,由于两者收缩率不一致,如果控制不好就会造成内电极与端电极之间开路失效[10-13]。在烧结成瓷过程中,由于两者之间的收缩差异极易导致内电极收缩过大,与端电极连接断开,而两者间收缩差异越大,这种开路的几率与严重程度就越大。因此研究共烧过程、优化烧结工艺、改善产品性能,对提高多层元器件的可靠性与应用寿命具有非常重要的意义。

1 实验

1.1 实验工艺流程

本文产品均采用传统 LTCC 工艺制备,具体流程为以 L7 粉为原料,加入适量的溶剂、分散剂等有机溶剂,放入球磨机中一次球磨 24 h,然后加入适量粘结剂、增塑剂后进行二次球磨 12 h,球磨完取出静置,得到分散均匀、具有一定流动性的浆料。然后经流延、裁切得到高质量的生瓷带,经激光打孔、印叠(印刷、叠压)、均压、切割、倒角后得到产品生坯,经排胶、烧结后得到 LTCC 多层片式射频低通滤波器。

1.2 仪器设备

本文中所有数据均由表 1 中设备测试所得。

表 1 主要设备与测试项目

Table1 The mainly use equipment and test items

设备名称	设备型号	测试项目
X 射线检测机	Cheetah EVO	内部结构
自动研磨抛光机	MOPAO 4S	破坏性物理分析(Destructive Physical Analysis)
金相显微镜	AXI0-LAB A1	DPA 后内部结构
钨丝灯扫描电子显微镜	Prisma E	微观形貌
引出端强度试验设备	MFM1000	瓷体强度
绝缘电阻仪	TH2683A	绝缘电阻
微波网络分析仪	E5071C	电性能

2 实验结果与分析

2.1 升温速率对滤波器共烧收缩匹配性的影响

图 1(a)为产品内缩程度随升温速率变化关系图。从图中可以看出,随着升温速率从 1.7 ℃/min 增加至 8 ℃/min,引出电极内缩程度从-7.37 μm 转变为+14.58 μm,在升温速率为 3.5 ℃/min 时,引出电极内缩程度为+0.23 μm。这是由于陶瓷材料与内电极银浆烧结收缩率不一致,出现烧结不匹配导致的。图 1(b)为 L7 材料和 A 银浆的 TMA 曲线,从静态热机械分析(TMA)曲线可以看出,L7 材料起始

收缩温度为 710 ℃,远远高于 A 银浆的起始收缩温度 308 ℃。而烧结致密化过程是循序渐进的,在一定的温度和时间下才能完成,当升温速率加快时,收缩率曲线会向高温方向偏移[14],因此在一定的升温速率下,内电极银浆的收缩和陶瓷材料的收缩匹配,引出电极不内缩。但是,如果升温速率过快物质间的传质来不及完成,气孔得不到及时排出,陶瓷内部的析晶等得不到充分反应,进而会导致内电极银浆与陶瓷材料烧结收缩不匹配,外溢程度逐渐增加。

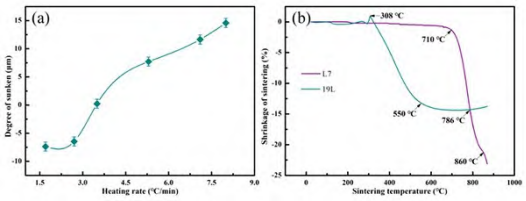

图 1　(a) 内缩程度随升温速率变化关系图;(b) L7 材料和 A 银浆的 TMA 曲线

Fig. 1 (a) The relationship between degree of sunken and heating rate; (b) The TMA curves of L7 material and A silver paste

2.2　保温时间对滤波器共烧收缩匹配性的影响

图 2 为产品内缩程度随保温时间的变化关系图。从图中可以看出,随着保温时间从 0 min 增加至 60 min,引出端电极内缩程度变化不明显,在保温时间为 45 min 时最小,为+0.72 μm。图 3 为不同保温时间下产品的扫描电子显微镜(SEM)图,从 SEM 图中可以看出,当保温时间低于 45 min 时,陶瓷内部存在大量气孔,致密性较低;当保温 45 min 时,晶粒充分生长,气孔减少,致密性较高;当保温时间到 60 min 时,部分晶粒异常长大,气孔增多,致密性变低。

2.3　烧结温度对滤波器共烧收缩匹配性的影响

图 4 为产品内缩程度随烧结温度的变化关系图。从图中可以看出,随着烧结温度的增加,引出端电极内缩程度从 830 ℃的+7.58 μm 先减小到860 ℃的+0.54 μm,然后增加至 870 ℃的+4.15 μm。图 5 为不同烧结温度的产品 SEM 图,从图中可以看出,当烧结温度低于 860 ℃时,陶瓷未烧结成瓷,瓷体内部孔洞较多;当烧结温度为 860 ℃时,瓷体烧结致密,内部孔洞减小;当烧结温度为 870 ℃时,陶瓷呈现过烧状态,内部孔洞增多,致密性降低。随后使用推拉力试验机对产品进行瓷体强度测试,测试结果如图 5(f)所示,随着烧结温度的升高,瓷体强度从

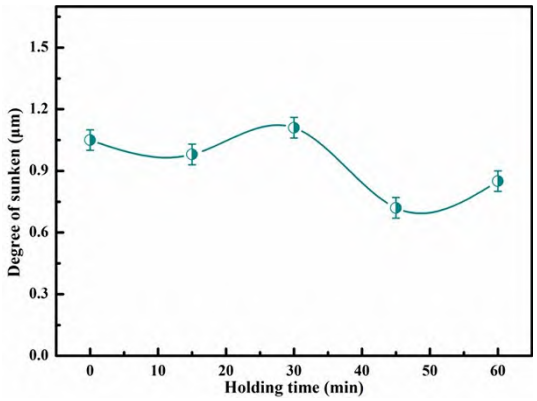

图 2　内缩程度随保温时间变化关系图

Fig. 2 The relationship between degree of sunken and holding time

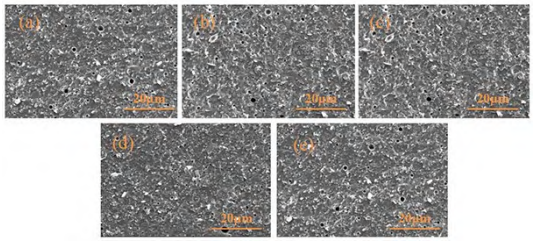

图 3　不同保温时间的 SEM 图:(a) 0 min;(b) 15 min;(c) 30 min;(d) 45 min;(e) 60 min

Fig. 3 The SEM images of different holding time: (a) 0 min; (b) 15 min; (c) 30 min; (d) 45 min; (e) 60 min

830 ℃的 15.67 N 先增加到 860 ℃的 32.28 N,然后降低至 870 ℃的 28.65 N,这也印证了 SEM 图中的变化趋势。

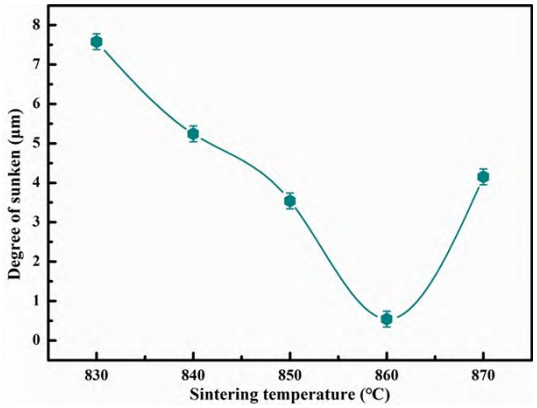

图 4　内缩程度随烧结温度变化关系图

Fig. 4 The relationship between degree of sunken and sintering temperature

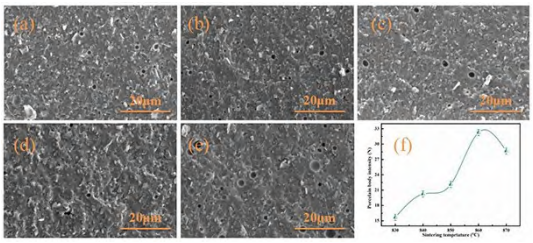

图 5 不同烧结温度的 SEM 图：(a) 830 ℃；(b) 840 ℃；(c) 850 ℃；(d) 860 ℃；(d) 870 ℃和(f)瓷体强度随烧结温度变化关系图

Fig. 5 The SEM images of different sintering temperature: (a) 830 ℃; (b) 840 ℃; (c) 850 ℃; (d) 860 ℃; (d) 870 ℃ and (f) the relationship between porcelain body intensity and sintering temperature

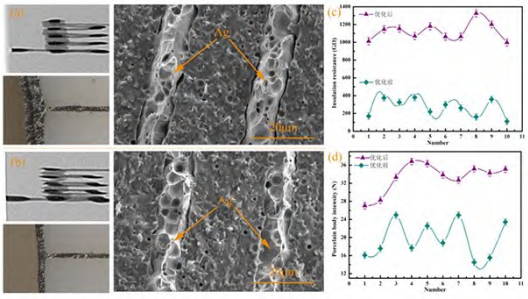

图 6 优化前后对比图：(a) 优化前 X 光、DPA、SEM；(b) 优化后 X 光、DPA、SEM；(c) 绝缘电阻；(d) 瓷体强度

Fig. 6 The images of before and after optimization: (a) X-ray、DPA、SEM of before optimization; (b) X-ray、DPA、SEM of after optimization; (c) insulation resistance; (d) porcelain body intensity

2.4 验证实验

根据本章实验结果进行最佳烧结条件验证实验。采用传统 LTCC 工艺流程，以 L7 粉为原料制浆，然后经流延、裁切得到高质量的生瓷带，经激光打孔、印叠(印刷、叠压)、均压、切割、倒角后得到产品生坯，经排胶后在链式烧结炉中烧结，烧结温度为 860 ℃，升温速率为 3.5 ℃/min，保温时间为45 min。烧结后样品经涂银、端头处理得到 LTCC 叠层片式射频低通滤波器，对其进行可靠性验证。优化前后 X 光、DPA、SEM、绝缘电阻、瓷体强度对比如图 6 所示，电性能、可靠性验证结果列于表 2。从图 6(a)和图 6(b)对比可以看出，优化后的产品引出端无内缩，陶瓷基体与 Ag 电极结合紧密，无明显分层现象；从图 6(c)和图 6(d)中可以看出优化后绝缘电阻大幅提升，瓷体强度明显提高。从表 2 中可以看出，优化后产品插入损耗、驻波比降低，截止频率提高，1.5 倍额定电流冲击开路率大幅降低。经验证后，最佳烧结条件烧结的产品可靠性得到大幅度提升，产品质量得到保障。

表 2 优化前后电性能和可靠性数据对比

Table 2 The electrical performance and reliability data of before and after optimization

	电性能			可靠性数据(1K 样品开路率)		
	插入损耗(dB)	截止频率(MHz)	驻波比	高低温冲	电老化	1.5 倍额定电流冲击
优化前	1.19	235.29	1.31	0%	0%	0.19%
优化后	0.88	262.77	1.19	0%	0%	0.05%

3 结论

本文针对 LTCC 低通滤波器共烧收缩匹配性问题展开系统分析，优化烧结工艺，从升温速率、保温时间、烧结温度三个方面讨论了烧结对引出电极内缩程度和瓷体微观结构的影响。实验表明：

(1)随着升温速率从 1.7 ℃/min 增加至 8 ℃/min，引出电极内缩程度从−7.37 μm 转变为+14.58 μm，在升温速率为 3.5 ℃/min 时最小，为+0.23 μm。

(2)随着保温时间从 0 min 增加至 60 min，引出端电极内缩程度变化不明显，在保温时间为 45 min 时最小，为+0.72 μm。并且保温时间为 45 min 时瓷体晶粒充分生长，气孔最少。

(3)随着烧结温度的增加，引出端电极内缩程度从 830 ℃的+7.58 μm 先减小到 860 ℃的+0.54 μm，然后增加至 870 ℃的+4.15 μm。860 ℃烧结产品瓷体烧结致密，内部孔洞最少，瓷体强度最大。

(4)根据试验结果进行工艺验证，验证结果表明优化后明显改善了共烧匹配性，增加了瓷体强度，优化了电性能，极大降低了产品可靠性试验开路率，保障了产品质量，为研究 LTCC 低通滤波器烧结收缩匹配性奠定了基础。

参考文献：

[1]Alex B. Miniature filter for digital receiver [J]. IEEE MTT-

S Digest Part, 1997, 2: 999-1002.

[2]牛　毅. 低温共烧陶瓷(LTCC)技术在材料学上的进展研究 [J]. 包装世界, 2021, 7: 37-54.

[3]杨　斌, 王　荣, 张　晗, 等. LTCC 材料及其器件——产业发展与思考 [J]. 电子元件与材料, 2021, 40(3): 205-210.

[4]Rauscher C. Design of dielectric-filled cavity filters with ultrawide stopband Characteristics [J]. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 2005, 53(5): 1777-1786.

[5]Scrantom C Q, Lawson J C. LTCC technology: where we are and where we're going II [J]. IEEE Int Microwave Symp Dig, 1999, 1(3): 193-200.

[6]Sheen J W, Lawson J C. A compact semi-lumped low-pass filter for harmonics and spurious suppression [J]. IEEE Microwave Guided Wave Letter, 2000, 3(10): 92-93.

[7]Cui X M, Li B, Shen J H, et al. The Co-fired behavior between Ag and glass-ceramics in LTCC [J]. Journal of Electroceramics, 2008, 21: 541-544.

[8]王　茂. 多层复合铁氧体-电介质-银电极共烧行为研究 [D]. 北京: 清华大学硕士论文, 2002, 12.

[9]Chung LL, Bi S C, Jenq G D, et al. Low temperature sintering and crystallisation behavior of low loss anorthite-based glass-ceramics [J]. Journal of Materials Sciences, 2003, 38(4s): 693-698.

[10]左如忠. 异相陶瓷界面对多层陶瓷电容器介电性能的影响 [J]. 功能材料, 2001, 32(2): 196-197.

[11]催学民, 周　济, 王悦辉, 等. 异质材料共烧匹配性调制在 LTCC 领域的研究进展 [J]. 电子元件与材料, 2005, 24(10): 50-55.

[12]徐自强, 杨邦朝, 石　玉. LTCC 异质材料匹配共烧研究 [J]. 功能材料, 2011, 6: 1079-1082.

[13]Dernovsek O, Naeini A, Preu G, et al. LTCC glass-ceramics composites for microwave application [J]. Journal of the European Ceramic Society, 2001, 21(10-11)s: 1693-1697.

[14]候清健, 游　韬, 王子鸣, 等. 烧结升温速率对低温共烧陶瓷基板性能的影响 [J]. 硅酸盐通报, 2022, 41(3): 1039-1042+1052.