

Abschlussbericht

der BAM Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung

zum Teilvorhaben

„LTCC-Basisfolien und Co-Firing“

im Verbundvorhaben

Ansteuerung von LEDs durch LTCC-Ferrit-Module (ALFERMO)

Förderkennzeichen: **13N10666**
Laufzeit des Vorhabens: 01.06.2010 bis 31.05.2013
Berichtszeitraum: 01.06.2010 bis 31.05.2013
Leiter des Teilvorhabens: Dr. Torsten Rabe
Bearbeiter: Dr. Hamid Naghib-zadeh

BAM Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung

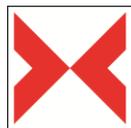
Fachbereich 5.5 Technische Keramik

Unter den Eichen 44-46

12203 Berlin

Telefon: +49 (0)30 8104-1542

Fax: +49 (0)30 8104-1547



BAM

Inhaltsverzeichnis

1. Kurze Darstellung	3
1.1 Aufgabenstellung	3
1.2 Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde	3
1.3 Planung und Ablauf des Vorhabens	4
1.4 Wissenschaftlicher und technischer Stand	5
1.5 Verwendete Fachliteratur	7
1.6 Zusammenarbeit mit anderen Stellen	7
2. Darstellung des Projektverlaufs	8
2.1 Erzielte Ergebnisse	8
2.1.1 AP1, 2 und 3: Integration von Ferrit-Werkstoffen in LTCC-Multilayer	8
2.1.2 AP4: Integration von Silber-Leiterbahnen in LTCC	26
2.1.3 AP4, 8 und 11: Entwicklung (Aufbau, Sinterung und Bewertung) von Multilayer- Transformatoren für LED-Baugruppen	31
2.2 Voraussichtlicher Nutzen, insbesondere Verwertbarkeit der Ergebnisse	44
2.3 Bekannt gewordene Fortschritte bei anderen Stellen	44
2.4 Veröffentlichungen der Ergebnisse	45

1. Kurze Darstellung

1.1 Aufgabenstellung

Ziele des Vorhabens waren die Entwicklung einer miniaturisierten, temperaturwechselstabilen Baugruppe und entsprechender Herstellungsverfahren für künftige lichtstarke Leuchtdioden (LED)-Arrays zur Energieeffizienz-Steigerung in der Beleuchtungstechnik. Wesentliche Komponenten der Baugruppe sind ein kompaktes Schaltnetzteil mit integriertem Leistungstransformator in keramischer Multilayertechnik sowie keramische Lichtreflektoren. Als Basis für den Transformator dient die über die letzten Jahre kontinuierlich erweiterte Low Temperature Co-Fired Ceramics (LTCC)-Technologie. Das Ziel der BAM im vorliegenden Projekt war die Co-Sinterung ferritischer Werkstoffe mit dielektrischen LTCC-Folien als Voraussetzung für die Herstellung defektfreier planarer Multilayer-Leistungstransformatoren. Folgende Teilaufgaben wurden an der BAM bearbeitet:

- Entwicklung der dielektrischer Werkstoffe und Herstellung entsprechender Grünfolien
- Co-Sintern von dielektrischen und magnetischen Folien
- Charakterisierung der co-gesinterten Multilayer
- Untersuchung zur Kompatibilität von LTCC-Folien, Ferrit-Folien und Silberleiterbahnen
- Sintern der Transformatoren bestehend aus dielektrischen Basistapes mit integrierten Ferritlagen und Silberleiterbahnen (Spulen)

1.2 Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

Der Fachbereich „Technische Keramik“ der BAM besitzt ausgewiesene Kompetenzen auf den Gebieten Werkstoffentwicklung, Keramiktechnologie, prozessbegleitende Prüfung und Kennwertermittlung. Für die vielfältigen Projektaktivitäten stehen eine komplette Folien- und Multilayerlinie sowie modernste Prüfeinrichtungen zur Verfügung.

Ein Schwerpunkt der F+E-Tätigkeit im Fachbereich „Technische Keramik“ ist seit mehreren Jahren die keramische Multilayertechnologie. Ein besonders hohes Entwicklungspotential besitzen Low Temperature Co-fired Ceramics (LTCC). Die BAM hat in der vergangenen Dekade im Rahmen sowohl von öffentlich geförderten F+E-Programmen (u.a. im BMBF-Projekt „NIKOL“) als auch von bilateralen Kooperationen mit der deutschen Industrie an der Einführung der LTCC-Technologie vor allem in den Bereichen Telekommunikation, Mikrosystemtechnik, Sensorik und Biotechnologie an führender Stelle mitgearbeitet.

Für das Vorhaben relevante Spezialkenntnisse betreffen die Glas- und Komposit-Entwicklung für maßgeschneiderte LTCC-Werkstoffe, die Festkörperchemie in Bezug auf Phasengrenzreaktionen beim Sintern sowie die Interdiffusion beim Co-Firing mit Silber, das Foliengießen und die keramische Multilayer-Technologie. Mit den vorhandenen modernen Anlagen kann die komplexe

Fertigungstechnologie vom Werkstoff, über die keramische Grünfolie bis zum gesinterten Multilayer sowohl im Labor- als auch Technikumsmaßstab realisiert werden.

1.3 Planung und Ablauf des Vorhabens

In Tabelle 1 sind die im Gesamtarbeitsplan für das Vorhaben ALFERMO fixierten BAM-Aufgaben dargestellt.

Tabelle 1: Plan für die Arbeitspakete mit BAM-Beteiligung

Arbeitspaket (AP) mit Bearbeitungszeitraum	Bezeichnung und Inhalte der Arbeitspakete	BAM Personalaufwand [Personen-monate]
AP 1 2. bis 30. Monat	Integrierte Ferrit-Folien <ul style="list-style-type: none"> - Werkstoffentwicklung Dielektrikum (für Basisfolien) - Foliengießen (Basisfolien) - Co-Firing von Basis- und Ferrittapes - Herstellung und Charakterisierung von Sintersperrschichten (in Kooperation mit SAG) 	18
AP 2 2. bis 30. Monat	Spritzguss & Extrusion von Ferritkernen <ul style="list-style-type: none"> - Adaption des Basis-Tapes und Co-Firing mit spritzgegossenen/extrudierten Kernen 	5
AP 3 2. bis 30. Monat	Ferrit-gefüllte Kavitäten <ul style="list-style-type: none"> - Adaption des Basis-Tapes und Co-Firing mit Ferrit-gefüllten Kavitäten 	3
AP 4 2. bis 22. Monat	Hochstrom-Leiterbahnen <ul style="list-style-type: none"> - Bewertung der Stabilität von Ag-Leiterbahnen 	4
AP 11 29. bis 36. Monat	Hoch integrierte, effiziente LED-Baugruppe <ul style="list-style-type: none"> - Sintern der Transformatoren 	4

Wie geplant war die BAM an der Bearbeitung von AP1, AP2, AP3, AP4 und AP11 beteiligt. Zusätzlich wurden auch Leistungen in AP 8 erbracht. Die Planungen für Bearbeitungszeiträume und Personalaufwand wurden weitgehend eingehalten.

1.4 Wissenschaftlicher und technischer Ausgangsstand

Keramische Folien auf Basis von Kompositen aus kristallinen Stoffen und Glas werden seit den 80er Jahren in der LTCC-Multilayer-Technologie als dielektrische Lagen („Basistapes“) verwendet [1]. LTCC-Schaltungsträger haben sich speziell bei technischen Anwendungen durchgesetzt, bei denen es auf hohe Zuverlässigkeit auch unter harschen Bedingungen ankommt. Die LTCC-Technologie – häufig in Verbindung mit der keramischen Dickschichttechnik - zeichnet sich durch hohe Flexibilität bei der Realisierung dreidimensionaler Strukturen aus und ermöglicht durch innenliegende Leiterbahnen, elektrische Verbindungen zwischen verschiedenen Ebenen (Vias) und die Einbettung von vergrabenen Komponenten eine hohe Integrationsdichte.

Es gibt inzwischen verschiedene Synthesekonzepte zur Herstellung von dielektrischen LTCC Materialien. Je nach Volumenverhältnis von Glas zu kristallinen Stoffen im Ausgangspulver unterscheidet man zwischen Sinterglaskeramik (GC), glaskeramischen Kompositen (GCC), glasgebundenen Keramiken (GBC) aber auch glasfreien, niedrig sinternden Keramiken [2,3]. LTCC-Basiswerkstoffe werden aktuell überwiegend auf GCC-Basis, d. h. mit mehr als 50 Vol.-% Glasanteil, hergestellt. Da sowohl die kristalline Keramikpulverkomponente als auch das Glaspulver bezüglich chemischer Zusammensetzung und Menge variiert werden können, bietet sich die Möglichkeit, LTCC-Werkstoffe mit maßgeschneiderten Eigenschaftsspektren herzustellen.

Magnetische Keramiken sind bereits als gesinterte Ferritkerne für induktive Bauteile auf dem Markt erhältlich. In letzter Zeit wurde öfter über niedrigsinternde Ferritwerkstoffe ($T_{\text{Sinter}} < 920 \text{ °C}$) - meistens auf der Basis von NiCuZn- bzw. MnZn-Ferriten - berichtet [4-8]. Im Gegenteil zu LTCC-Basiswerkstoffen werden magnetische LTCC grundsätzlich auf GBC-Basis, d. h. mit geringstmöglichen Zugaben an nichtmagnetischen Sinterhilfsmitteln (z.B. Glas, Bi_2O_3) hergestellt, um höchstmögliche Permeabilitätswerte zu erreichen.

Die Permeabilität der NiCuZn- und MnZn-Ferrite ist außerdem abhängig von der Größe der Ferritkristalle und vom Spannungszustand im Ferritkörper. Je größer die Ferritkristalle und je geringer die inneren Spannungen im Ferrit, desto größer ist der Permeabilitätswert [9-12]. Zudem ist die Sinteratmosphäre entscheidend für die Entstehung hochpermeabler MnZn-Ferrite beim Sintern [13-15]. Hierfür sind thermodynamische Berechnungen zur Einstellung der Sinteratmosphäre sehr nützlich [16].

Um Kombinationslaminare bestehend aus Basis-LTCC und magnetischen LTCC defektfrei sintern zu können, müssen die thermische Ausdehnung und das Schwindungsverhalten beider Werkstoffe möglichst genau aufeinander angepasst sein [17,18]. Für diesen Zweck müssen die kristalline Keramikpulverkomponente und das Glaspulver in der Basis-LTCC bezüglich chemischer Zusammensetzung und Menge optimiert werden [19].

Silber wird als Leiterbahn bei der LTCC-Herstellung eingesetzt. Silber diffundiert während des Co-Sinterns in die Glasphase der umgebenden Basisfolie und senkt in der Nähe der Silberleiterbahnen den Transformationspunkt des LTCC-Glases durch Modifizierung der Glaszusammensetzung. Dadurch kommt es zu lokal unterschiedlichem Sinterverhalten, welches Verzug und Delaminationen in den Laminaten verursacht.

Da das Silber nur im oxidierten Zustand in die Glasphase diffundiert, kann die Silberdiffusion durch eine Sinterung unter Stickstoff minimiert werden [20].

Um den durch die Silberdiffusion verursachten Sinterverzug der Lamine zu verhindern, kann das Drucksintern eingesetzt werden. Für eine ausreichende Verdichtung der Ferritlage beim Drucksintern ist jedoch ein Mindestdruck von 1 MPa erforderlich [21].

- [1] R.R. Tummala, "Ceramic and Glass-Ceramic Packaging in the 1990s", J. Amer. Ceram. Soc, Vol. 74, pp. 895-908, 1991.
- [2] W.A.Schiller et al., "Über das Sintern von LTCC. Fortschrittsberichte der DKG, Band 21 Heft 1, S. 41-46, 2007.
- [3] W.A. Schiller, M. Eberstein, R. Müller, "Glass Ceramic Composites for Microsystems", Glass Sci. Technol., Vol. 76, No. C1, pp. 54-59, 2003.
- [4] R. Matz, D. Götsch, R. Karmazin, R. Männer, B. Siessegger, Low temperature cofirable MnZn ferrite for power electronic applications, J. Electroceram. 22[1-3], 209-215, 2009.
- [5] J. Mürbe, J. Töpfer, "Ni-Cu-Zn Ferrites for Low Temperature Firing: I. Ferrite Composition and its Effect on Sintering Behavior and Permeability", J. Electroceramics, Vol. 15, pp. 215-221, 2005.
- [6] J. Mürbe, J. Töpfer, "Ni-Cu-Zn Ferrites for Low Temperature Firing: II. Effects of Powder Morphology and Bi₂O₃ Addition of Microstructure and Permeability", J. Electroceramics, Vol. 16, pp. 199-205, 2006.
- [7] J. Töpfer, J. Mürbe, E. Müller, and F. Bechthold, "Sintering Behavior of Ni-Cu-Zn Ferrites for Multilayer Inductors," Ceram. Trans., 174, 225–235, 2006.
- [8] ESL Electroscience, Thick-Film Materials and Ceramic Tapes, <http://www.electroscience.com/>
- [9] M.T. Johnson, A. Noordermeer, M.M.E. Severin, W.A.M. Meeuwissen, Microstructural Dependence of the Complex Permeability in Fine Grained MnZn Ferrites. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 116, 169-176, 1992.
- [10] A. Globus, Some Physical Considerations about Domain Wall Size Theory of Magnetization Mechanisms. J. Phys., 38 Suppl. C1, 1-15, 1977.
- [11] N. Ramamanohar Reddy, M. Venkata Ramanaa, G. Rajithaa, E. Rajagopala, K.V. Sivakumara, V.R.K. Murthyb, Stress sensitivity of inductance in NiCuZn ferrites, Journal of Magnetism and Magnetic Materials 292, 159–163, 2005.
- [12] Kumagai M., Ikeda, Y. Stress-insensitive ferrite for microinductors, 5th International conference on ferrites, Bombay, India, January 10-13, 1989.

- [13] Bonsdorf G, Denecke M.A., Schäfer K., Christen S., Langbein H., Gunßer W., X-ray absorption spectroscopic and Mossbauer studies of redox and cation-ordering processes in manganese ferrite, *Solid State Ionics* 101, 351-357, 1997.
- [14] Toepfer J., Dieckmann R., Point defects and deviation from stoichiometry in $(\text{Zn}_{x-y/4}\text{Mn}_{1-x-3y/4}\text{Fe}_{2+y})_{(1-\delta/3)}\text{O}_4$, *J. Eur. Ceram. Soc.* 24, 603, 2004.
- [15] Bonsdorf G., Schäfer K., Teske K., Langbein H., Ullmann H., Stability region and oxygen stoichiometry of manganese ferrite, *Solid State Ionics* 110 (1-2), 73-82, 1998.
- [16] Barin I., *Thermochemical data of pure substances* (VCH Verlag, Weinheim), 1989.
- [17] C. Glitzky et al. "LTCC-Modules with Ferritic Layers – Strategies for Material Development and Co-Sintering," *J. Microelec. Elec. Packaging*, 6[1], 1–5, 2009.
- [18] Naghib zadeh, H., Rabe, T.; Glitzky, C.; Low fired high-K dielectrics buried into LTCC substrates. Proceedings of the IMAPS/ACerS - 5th International Conference and Exhibition on Ceramic Interconnect and Ceramic Microsystems, Denver, USA, April 20-23, 2009
- [19] T. Rabe, H. Naghib-zadeh, C. Glitzky, J. Töpfer, "Integration of Ni-Cu-Zn Ferrite in LTCC-Modules", *Int. J. Appl. Ceram. Technol.*, 9 [1], 18-28, 2012.
- [20] Rabe T., Glitzky C., Naghib zadeh H., Oder G., Eberstein M., Töpfer J., Silver in LTCC - Interfacial reactions, transport processes and influence on properties of ceramics. Proceedings of the IMAPS/ACerS - 5th International Conference and Exhibition on Ceramic Interconnect and Ceramic Microsystems, Denver, USA, April 20-23, 2009
- [21] R. Hsu, J.-H. Jean, and Y. Hung, "Stress Required to Densify a Low-Fire NiCuZn Ferrite Under Constrained Sintering," *J. Am. Ceram. Soc.*, 91 [6] 2051–2054, 2008.

1.5 Verwendete Fachliteratur

Zur fortlaufenden Literaturrecherche wurden die im web of science zugängliche Fachzeitschriften verwendet.

1.6 Zusammenarbeit

Während des Projektes wurde mit allen Projektpartner kooperiert. Besonders enge Zusammenarbeit bestanden mit:

- FH Jena (NiCuZn-Ferritentwicklung und deren Integration in Multilayer, einschließlich mehrerer gemeinsamer Publikationen)
- IKTS Dresden (Ag-Pastenentwicklung und deren Integration in Transformator)
- Via electronic GmbH (Multilayer-technologie zum Aufbau von Transformatoren)
- Siemens AG (Entwicklung von Mn-Zn-Ferriten und deren Integration in Multilayer)
- IKTS Hermsdorf (Folienentwicklung)

2. Darstellung des Projektverlaufs

2.1 Erzielte Ergebnisse

2.1.1 AP1, 2 und 3: Integration von Ferrit-Werkstoffen in LTCC-Multilayer

Multilayer mit NiCuZn-Ferritfolien

Für eine defektfreie Sinterung von Kombinationslaminate, bestehend aus Basis-LTCC und magnetischer LTCC, müssen die thermischen Ausdehnungskoeffizienten und das Schwindungsverhalten der LTCC-Komponenten angepasst sein. Außerdem ist die Ausbildung einer hochfesten Fügezone mit geringer Dicke erforderlich.

Kombiniert wurden die an der FH Jena entwickelte Ferritfolie NiZn100 mit der in der BAM entwickelten LTCC-Basisfolie BAM[474]. Die LTCC-Basisfolie BAM[474] weist ähnliche Ausdehnung wie NiZn100-Ferrit auf (Abb. 1, links). Nur im Bereich des Quarzsprungs bei 573 °C (BAM[474] enthält 20 Vol.-% Quarz) weichen beide Ausdehnungskurven voneinander ab. Weiterhin wurde das Schwindungsverhalten der BAM[474]-Basisfolie an das der Ferrit-Folie NiZn100 angepasst (Abb. 1, rechts). Durch verbliebene geringe Unterschiede in den Schwindungskurven von BAM[474] und NiZn100 kann jedoch der Constrained-Effekt (Behinderung der Schwindung in x- und y- Richtung) während des Sinterns nicht vollständig verhindert werden. Daher kommt es zu reduzierter Schwindung der Kombinationslaminate in lateraler Richtung. Außerdem nehmen die Schwindungsunterschiede durch Reduzierung der Aufheizrate während des Sinterns zu, was insbesondere in der zeitabhängigen Darstellung des Schwindungsverlaufes in Abb. 2 sichtbar wird. Aus diesem Grund wurde für das Sintern der Kombinationslaminate eine Aufheizrate von 5 K/min verwendet.

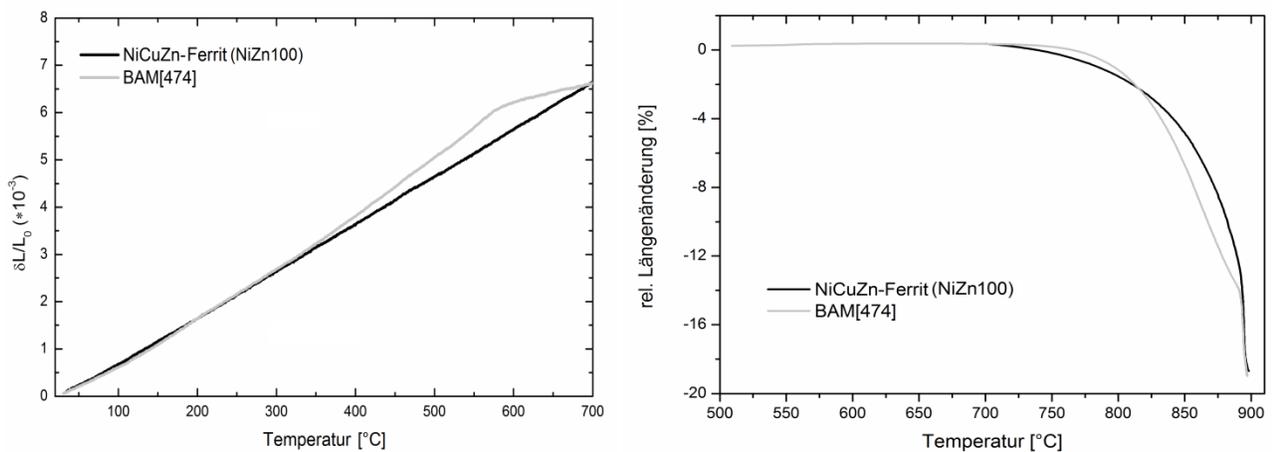


Abb. 1: Ausdehnungs- (links) und Schwindungsverhalten (rechts) der NiZn100-Ferritfolien und der LTCC-Basisfolien BAM[474] bei 5 K/min Aufheizrate.

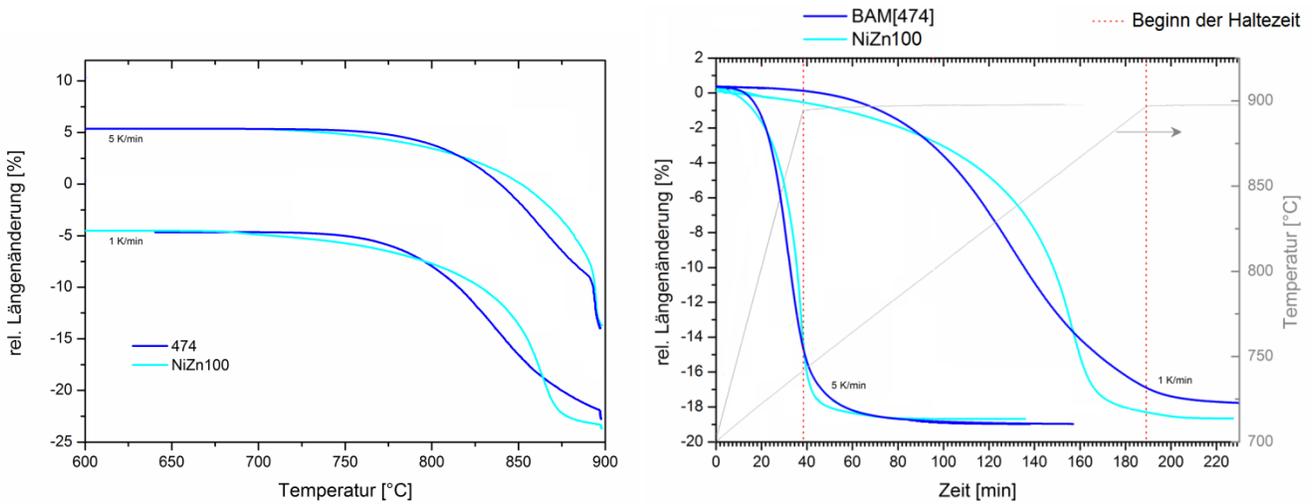


Abb. 2: Vergleich der temperatur- (links) und zeitabhängigen (rechts) Schwindungskurven von BAM[474] und NiZn100-Ferrit bei unterschiedlichen Aufheizraten (1 K/min und 5 K/min).

Gesinterte Kombilaminare aus NiZn100-Ferrit und LTCC-Basisfolien BAM[474] sind dicht und weigehend eben. REM Untersuchungen an Querschliffen der Kombinationslaminare bestätigen die gute Kompatibilität der Basis-Folie BAM[474] und der Ferrit-Folie NiZn100 (Abb. 3). An den Grenzflächen wurden keine Gefügedefekte wie große Poren, Risse oder Delaminationen gefunden. In Abb. 3 (rechts) ist ein gesintertes Laminat dargestellt, das bezüglich Dicke und Anordnung von Ferrit- und Basisfolien bereits an die Demonstrator-Konzepte im ALFERMO-Projekt angepasst wurde.

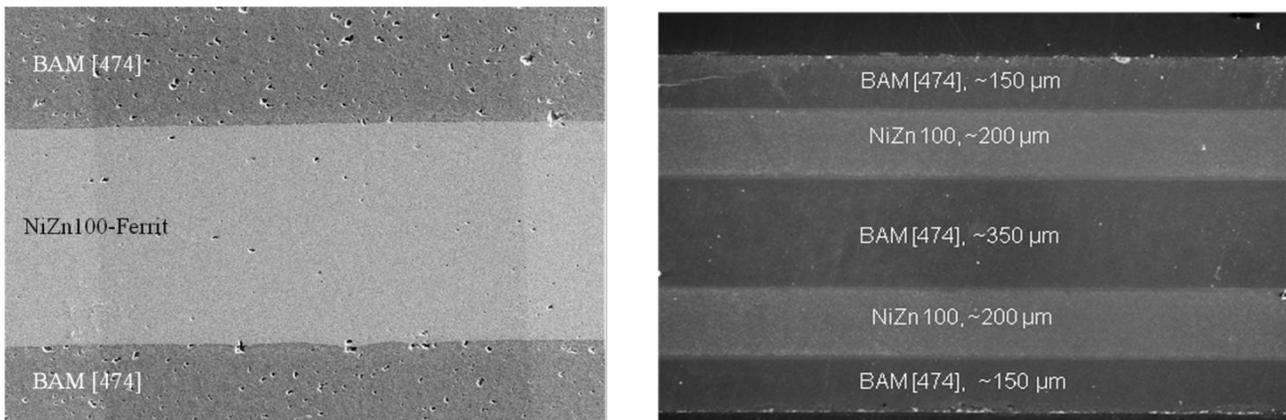


Abb. 3: Querschliff des 3-lagigen (links) und des 5-lagigen (rechts) Laminates aus NiZn100-Ferritfolie und BAM[474]-Basisfolie.

Von besonderem Interesse ist die Fügezone zwischen Ferrit- und Basiswerkstoff. Während in den REM Bildern in Abb. 3 keine Grenzschicht erkennbar ist, kann durch die Bestimmung der Sauerstoffverteilung mittels Mikrosonde eindeutig die Existenz einer 10 bis 20 µm dicken Grenzschicht belegt werden (Abb. 4).

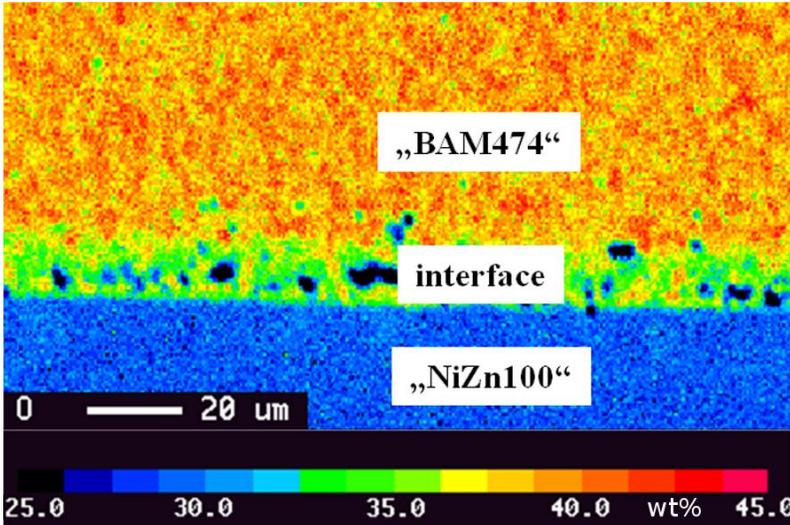


Abb. 4: Sauerstoffverteilung in der Grenzschicht zwischen NiZn100 und BAM[474]

Im Vergleich zu separat gesinterten NiZn100-Ferriten mit einer Permeabilität von 900 ist die Permeabilität des mit Basisfolien co-gesinterten NiZn100-Ferrits drastisch reduziert ($\mu' < 500$). Um die Ursache für die Permeabilitätsabnahme in co-gesintertem NiZn100-Ferrit aufzuklären, wurden Kombinationslaminare aus BAM[474]-Basisfolien und unterschiedlich dicken NiZn100-Ferritschichten (Anzahl der eingebetteten Ferritfolien: 2, 6, 12 bzw. 16 Folien, siehe Abb. 5) hergestellt und bei 900 °C / 2 h gesintert.

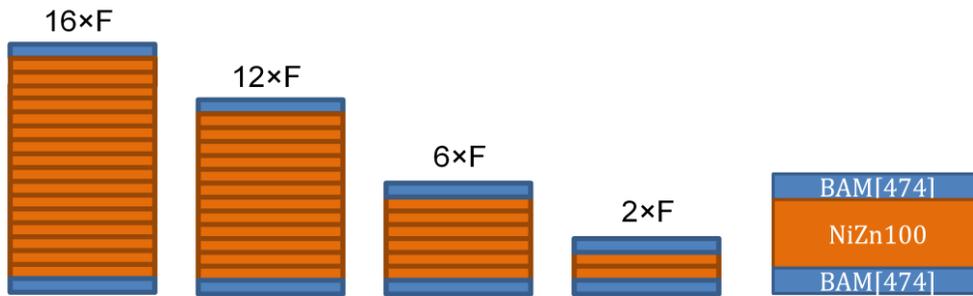


Abb. 5: Schematischer Aufbau der Kombinationslaminare mit verschiedenen Ferritschichtdicken.

In Tabelle 2 sind Permeabilität und Porosität der co-gesinterten Ferrite aufgelistet. Für die Porositätsbestimmung an den co-gesinterten Ferritschichten wurden die Basisfolien mit Flusssäure abgetragen.

An den co-gesinterten Ferriten wurden Permeabilitäten zwischen 153 und 372 bestimmt. Generell sind die Werte deutlich geringer als die Permeabilität des separat gesinterten Ferrits ($\mu' = 900$), sie steigen aber mit zunehmender Ferritschichtdicke. Zwischen Ferritschichtdicke, Porosität und Permeabilitätsanstieg ist eine eindeutige Korrelation erkennbar.

Tabelle 2: Permeabilitäts- und Porositätswerte der co-gesinterten Ferrite mit verschiedenen Ferritschichtdicken.

Anzahl der eingebetteten Ferritfolien (Dicke der Ferritschicht)	2×F (ca. 160 µm)	6×F (ca. 540 µm)	12×F (ca. 980 µm)	16×F (ca. 1320 µm)
Permeabilität bei 2 MHz	153	317	359	372
Porosität [%]	15	9,8	7,5	6,9

Aus der Literatur ist bekannt, dass die Permeabilität der Ferrite sehr stark von der Größe der Ferritkristalle abhängig ist. Daher wurden die Gefüge der separat- und co-gesinterten Ferrite im Rasterelektronenmikroskop untersucht.

Separat gesinterte NiZn100-Ferrite weisen durchgängig grobkörnige Gefüge mit bis zu 60 µm großen Kristallen auf (Abb. 6).

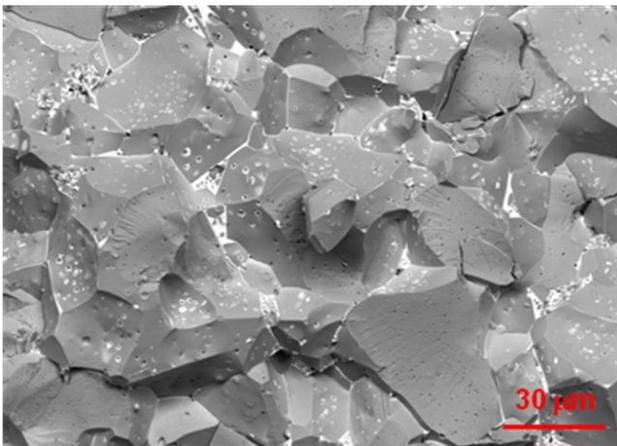


Abb. 6: Gefüge der separat bei 900°C/ 2h gesinterten NiZn100-Ferrite (Bruchfläche)

Gefügeaufnahmen der co-gesinterten NiZn100-Ferrite mit zwei verschiedenen Ferritschichtdicken (160 µm und 980 µm) sind in Abb. 7 dargestellt. Es ist zu beobachten, dass bei den co-gesinterten NiZn100-Ferriten kein Kristallwachstum stattgefunden hat und der mittlere Kristalldurchmesser, wie im Ferrit-Ausgangspulver, bei ca. 1 µm liegt.

Da eine hohe Permeabilität an große Ferritkristalle gekoppelt ist, kann ein wichtiger Grund für die Permeabilitätsabnahme beim Co-sintern mit Basisfolien die Unterdrückung des Kristallwachstums im Ferrit sein.

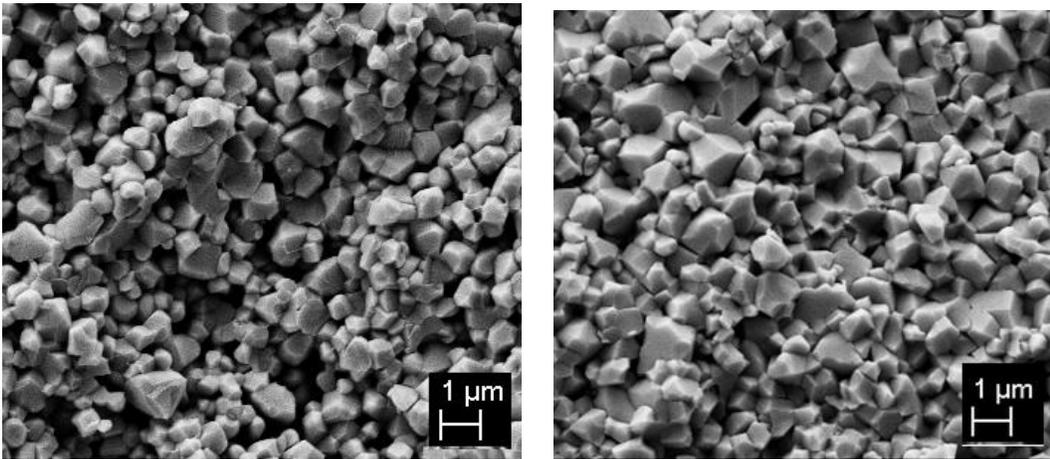


Abb. 7: Gefüge der mit BAM[474] auf Ober- und Unterseite co-gesinterten NiZn100-Ferrite mit verschiedenen Ferritschichtdicken: 160 µm (links) und 980 µm (rechts)

Denkbar ist auch die Beeinflussung der Permeabilität durch innere mechanische Spannungen im Multilayer. Diese können sowohl durch den Constrained-Effekt beim Aufheizen aufgrund verbliebener Unterschiede im Schwindungsverhalten als auch durch geringe Unterschiede im thermischen Ausdehnungskoeffizienten beider Materialien beim Abkühlen entstehen.

Zur Bestimmung etwaiger Eigenspannungen im co-gesinterten Ferrit wurden röntgenographische Untersuchungen durchgeführt. In der röntgenographische Spannungsanalyse (RSA) nutzt man aus, dass die inneren Spannungen zu elastischen Gitterdehnungen, das heißt zu einer Veränderung der Netzebenenabstände in den einzelnen Kristalliten führen, die gemäß Braggscher Gleichung:

$$n \lambda = 2 d^{hkl} \cdot \sin \theta^{hkl}$$

λ : Die Wellenlänge der verwendeten Strahlung

n : Die Beugungsordnung

d^{hkl} : Netzebenenabstand

θ^{hkl} : BRAGGScher Glanzwinkel

eine messbare Verschiebung des BRAGG Winkels θ^{hkl} zur Folge haben. Zur Bestimmung der Eigenspannungen werden die Gitterabstände d^{hkl} einer bestimmten Netzebenenschar hkl unter einer vorgegebenen Azimutalrichtung φ für verschiedene Neigungswinkel ψ zwischen der Oberflächennormalen \mathbf{P}_3 und der Messrichtung \mathbf{N}_{hkl} ermittelt (Abb. 8). Liegt innerhalb der Eindringtiefe der Röntgenstrahlung beispielsweise ein Druckeigenzustand vor, so werden Netzebenen parallel zur Probenoberfläche ($\psi = 0$) gestaucht (Querkontraktionseffekt), während solche mit einer großen Neigung ($\psi = \psi_2$) zur Oberfläche gerade eine Kompression erfahren (Abb. 8). Trägt man nun die derart ermittelten Netzebenenabstände $d_{\varphi\psi}^{hkl}$ gegen den quadratischen Sinus des Neigungswinkels, also $\sin^2\psi$, auf, so ist der Anstieg der entsprechenden Regressionsgeraden m gerade dem Betrag der inneren Spannung proportional.

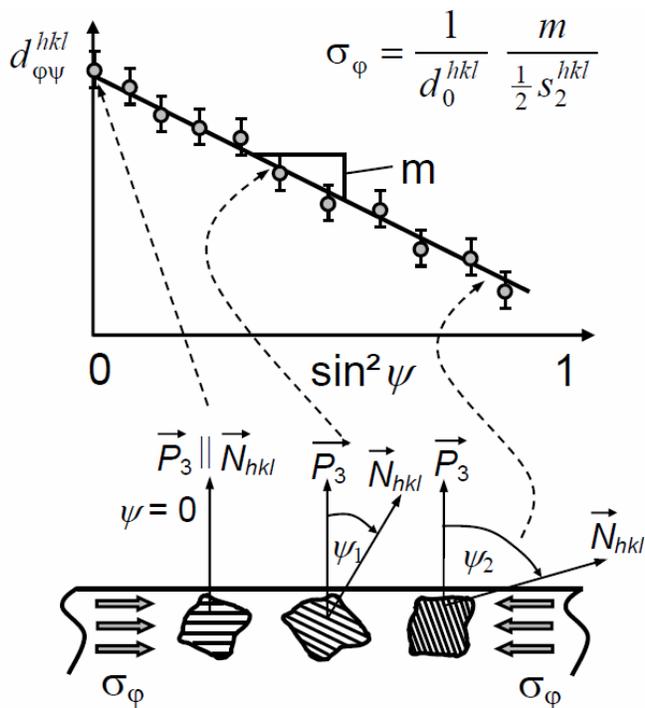


Abb. 8: Das Prinzip der $\sin^2\psi$ -Messtechnik zur Analyse von Eigenspannungen. d_0^{hkl} bezeichnet den Netzebenenabstand des spannungsfreien Kristallgitters, $\frac{1}{2} S_2^{hkl}$ ist die diffraktionelastische Konstante (Quelle: Genzel Ch. und Klaus M., Helmholtz-Zentrum Berlin)

Es wurden Eigenspannungsanalysen an drei Proben durchgeführt. Eine Probe bestand ausschließlich aus dem NiZn100-Ferrit während bei den beiden anderen Proben 5 bzw. 10 Ferritfolien zwischen zwei BAM[474]-Basisfolien co-gesintert wurden. Die Veränderung der Netzebenenabstände $d_{\varphi\psi}^{hkl}$ in Abhängigkeit vom $\sin^2\psi$ für Ferrit-Interferenzen 220 und 440 wird in Abb. 9 dargestellt. Die $d_{\varphi\psi}^{hkl}$ vs. $\sin^2\psi$ -Verteilungen zeigen nahezu konstante Verläufe, daher ist davon auszugehen, dass im ferritischen Material praktisch keine bzw. lediglich geringe Eigenspannungen vorliegen.

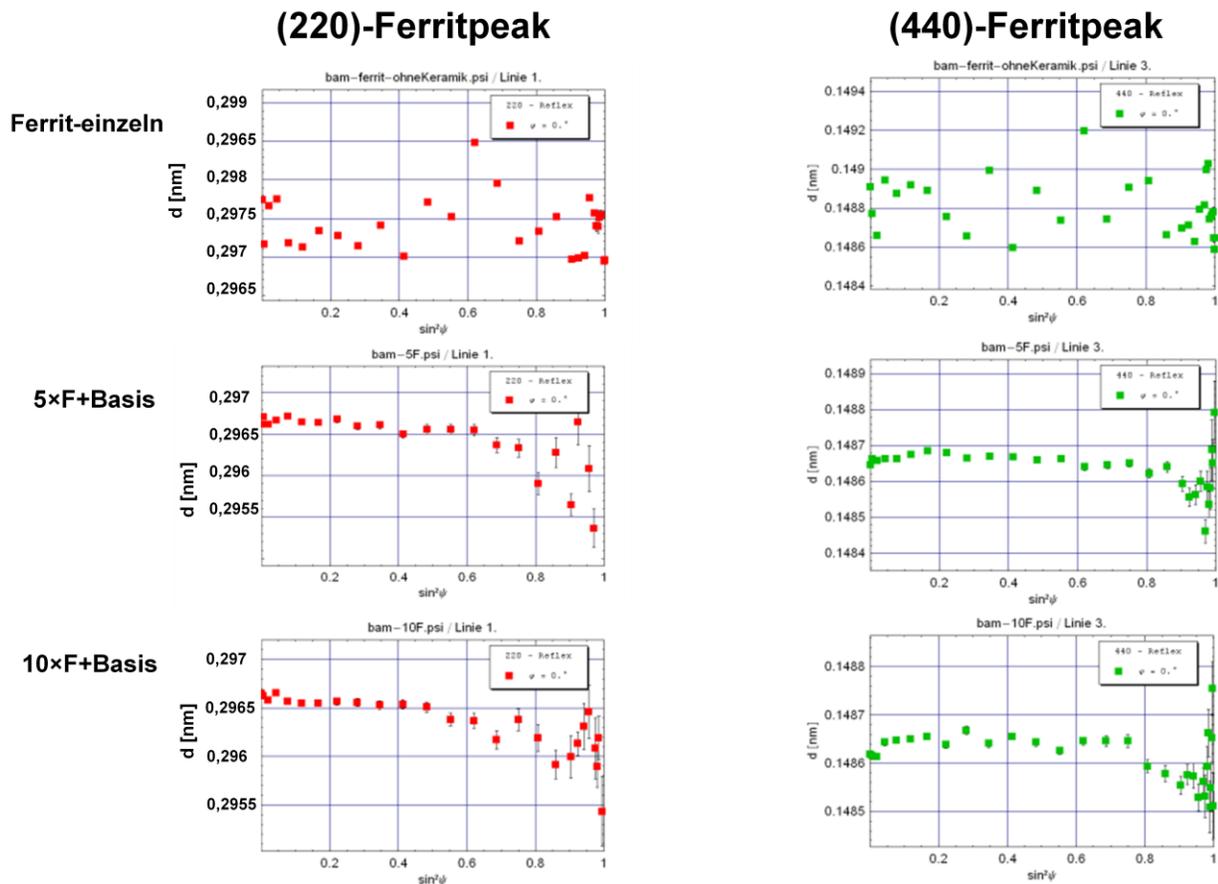


Abb. 9: d vs. $\sin^2\psi$ -Verteilungen für NiZn100-Ferrit

Um die Ergebnisse der röntgenographischen Untersuchungen zu verifizieren, wurde ein Ferrit-Ring (NiZn100) in eine geschlossene Kavität einer BAM[474]-Probe gelegt. Die Kavität war größer als der Ferrit-Ring, so dass nach der uniaxialen Lamination der Ferrit-Ring in der Kavität frei beweglich war (Abb. 10). Daher ist davon auszugehen, dass während des Sinterns keine Spannung durch BAM[474] auf den Ferrit ausgeübt werden konnte. Nach dem Sintern wurde die Hülle aus BAM[474] zerstört, und der Ferrit-Ring entnommen. Der Ferrit-Ring wies ein feinkörniges Gefüge, analog dem in Abb. 7 gezeigten Gefüge eines co-gesinterten Ferrits auf. Die Permeabilität lag bei 450, d. h. sie ist ca. 50% kleiner als die Permeabilität des separat gesinterten Ferrits ($\mu' = 900$). Diese Ergebnisse bestätigen die Hypothese, dass nicht Gefügespannungen, sondern die Verhinderung des Kristallwachstums in der Ferritschicht für die Permeabilitätsabnahme des co-gesinterten Ferrits verantwortlich ist.



Abb. 10: Schematischer Aufbau des BAM[474]-Laminats mit in der Kavität frei beweglichem Ferritring

Weiterhin wurde untersucht, ob durch wechselseitige Diffusion einzelner Elemente aus BAM[474] bzw. NiZn100 eine Änderung der Zusammensetzung und des Gefüges bei den co-gesinterten Ferriten zu verzeichnen war. Abb. 11 zeigt die Ergebnisse der ESMA-Analysen der BAM[474]-Hauptelemente in der Nähe der Grenzschicht zwischen BAM[474] und NiZn100. In der Grenzschicht sind Sr, Ca und Ba angereichert, der Mg-Gehalt ist reduziert. Es wurden jedoch keine, der in BAM[474]-Folien enthaltenen Hauptkomponenten in der Ferritschicht nachgewiesen.

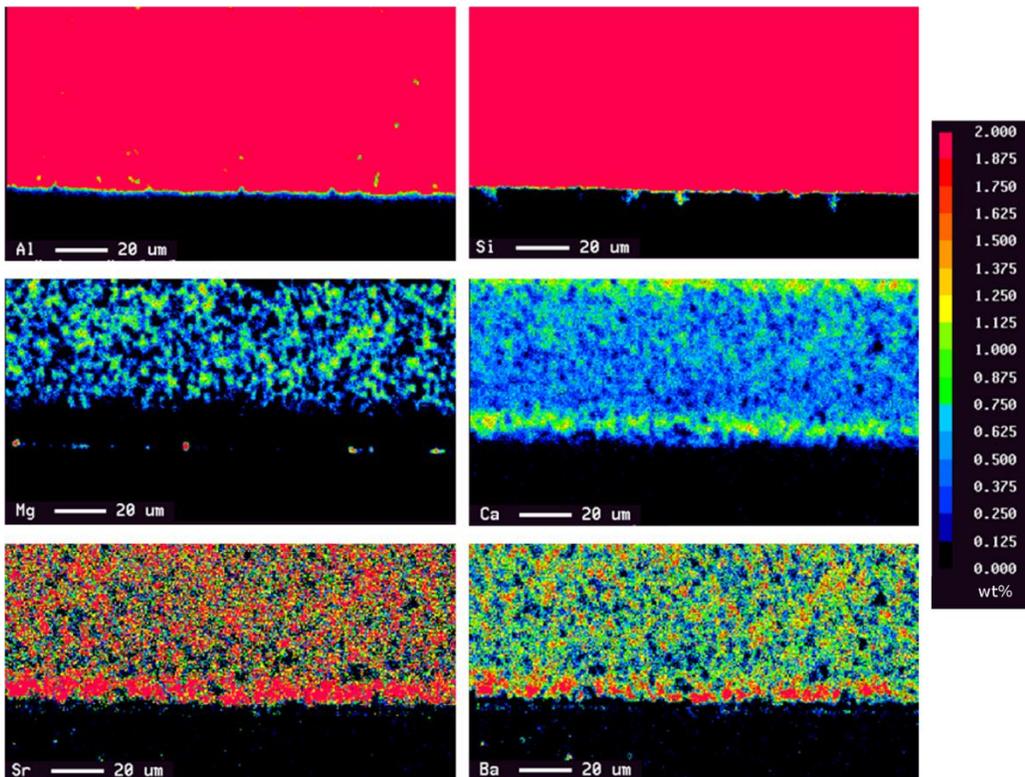


Abb. 11: Ergebnisse der ESMA-Untersuchungen zur Verteilung der BAM[474]-Hauptelemente in der Grenzschicht zwischen BAM[474] und NiZn100

Um die Ursachen des unterdrückten Kornwachstums im Ferrit beim Co-Sintern aufzuklären, wurden weitere ESMA-Analysen durchgeführt. Dazu wurden Proben mit dem in Abb. 12 gezeigten Aufbau hergestellt. Bei Probe 1 wurden die Ferritfolien zwischen Al_2O_3 -Opferfolien bei Probe 2 zwischen BAM[474]-Folien laminiert. Die Dicke der Ferritschicht war bei beiden Kombinationen ähnlich. Die Laminate wurden bei 1,8 MPa und 900 °C druckgesintert, um dichte Ferritschichten herzustellen. Die Al_2O_3 -Opferfolie blieb während des Sinterns porös, während BAM[474] vollständig verdichtet.

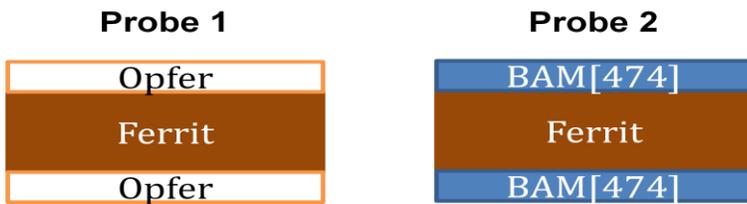


Abb. 12: Schematischer Aufbau der zwei Kombinationslaminare bestehend aus NiZn100-Ferritfolien und Al₂O₃-Opferfolien (Probe 1) bzw. BAM[474]-Basisfolien (Probe 2)

Für die Proben 1 und 2 wurden Permeabilitäten von 700 bzw. 400 gemessen. Die Gefüge beider Kombinationen sind in Abb. 13 dargestellt. Die Schichtdicke aus kleinen Ferritkristallen ist in Probe 1 mit 120 µm wesentlich kleiner als in Probe 2 mit 220 µm. Erwartungsgemäß hat die Probe 1 mit dem höheren Anteil an großen Ferritkristallen auch die größere Permeabilität.

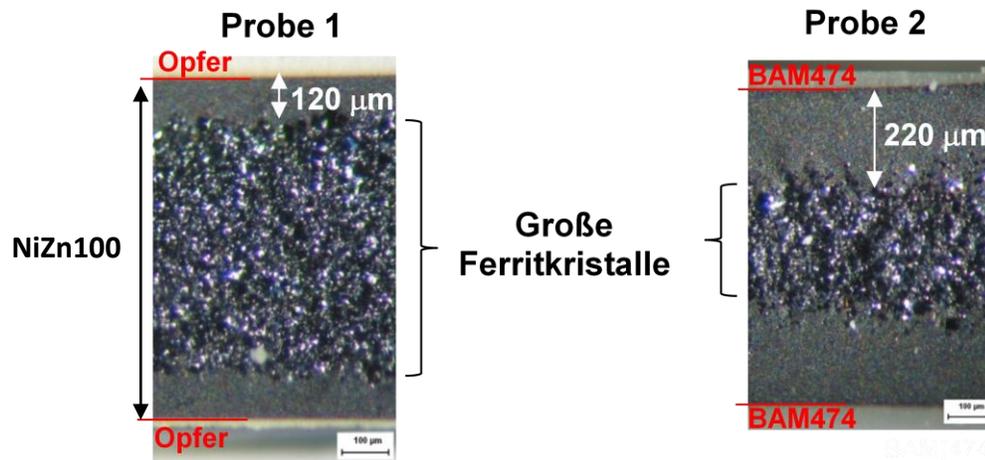


Abb. 13: Gefüge der zwei Kombinationslaminare Al₂O₃/NiZn100/Al₂O₃ und BAM[474]/NiZn100/BAM[474] nach dem Drucksintern unter 1,8 MPa bei 900 °C

Ergebnisse der ESMA-Analyse in der Umgebung der Grenzschicht Al₂O₃/Ferrit bzw. BAM[474]/Ferrit sind in Abb. 14 visualisiert. Da die Al₂O₃-Opferfolien während des Sinterns porös bleiben, können ggf. einzelne Elemente aus der Ferritschicht während des Sinterns durch die Opferschicht entweichen.

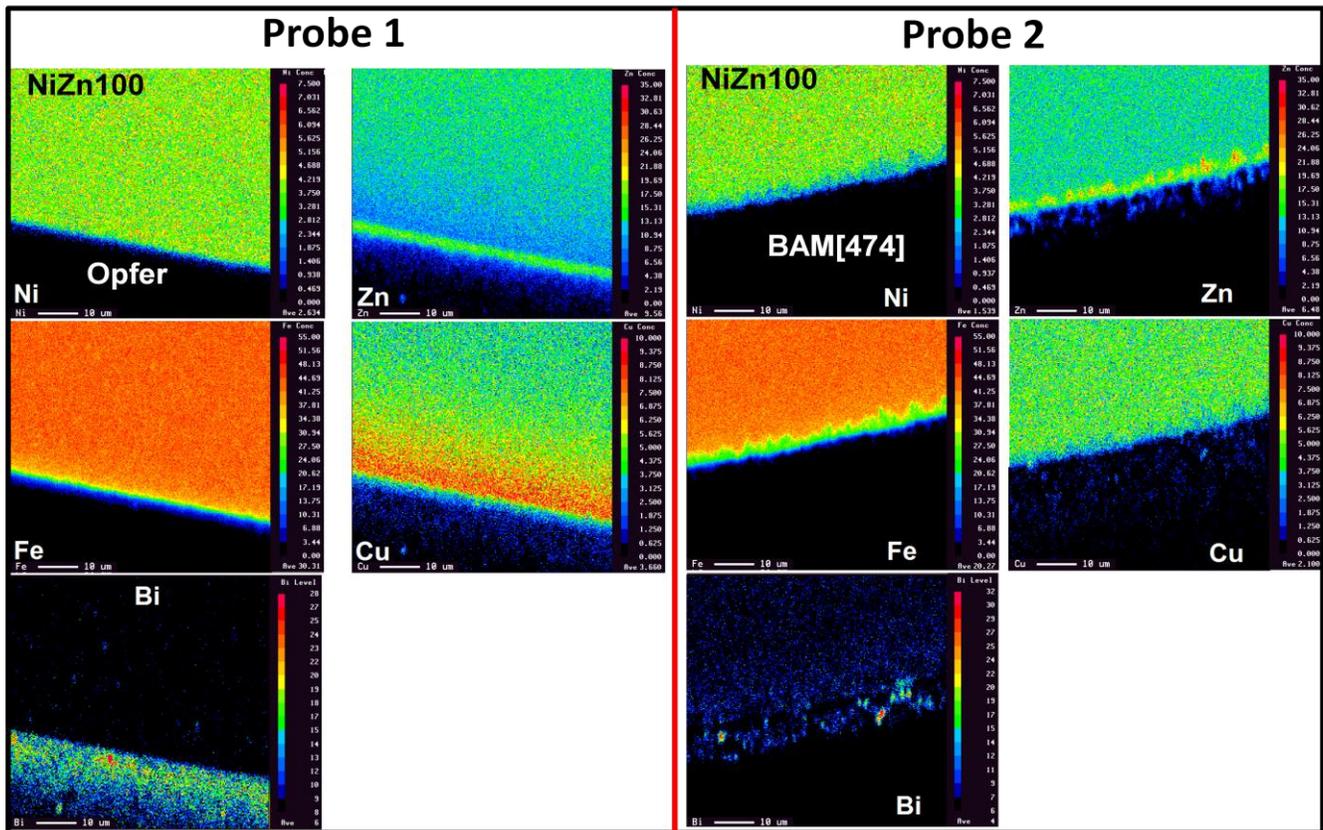


Abb. 14: Ergebnisse der ESMA-Untersuchungen in der Grenzschicht NiZn100/Al₂O₃ (Probe1) und NiZn100/BAM[474] (Probe2)

Die Ni- und Fe-Verteilungen sind in beiden Proben ähnlich. Eine geringe Diffusion von Zn und Cu in die Opferschicht bzw. die BAM[474]-Folie ist ebenfalls in beiden Proben zu beobachten. Nur in Probe 1 wurde eine Anreicherung von Kupfer im Ferrit im Grenzbereich zur Opferfolie beobachtet. Auffälligster Unterschied zwischen beiden Proben ist jedoch die Verteilung des Bismuts. In Probe 1 ist das Bismut aus dem Ferrit in die Opfer-Schicht diffundiert. Bei der Probe 2 wurde dagegen kein Bismut in der BAM[474]-Schicht nachgewiesen. Bismut ist offenbar auch nach dem Sintern im Ferrit enthalten.

Weiterhin wurde gefunden, dass nach dem Sintern in den Bereichen mit kleinen Ferrit-Kristallen signifikant mehr Bismut als in den Bereichen mit großen Kristallen vorhanden ist (siehe Abb. 15).

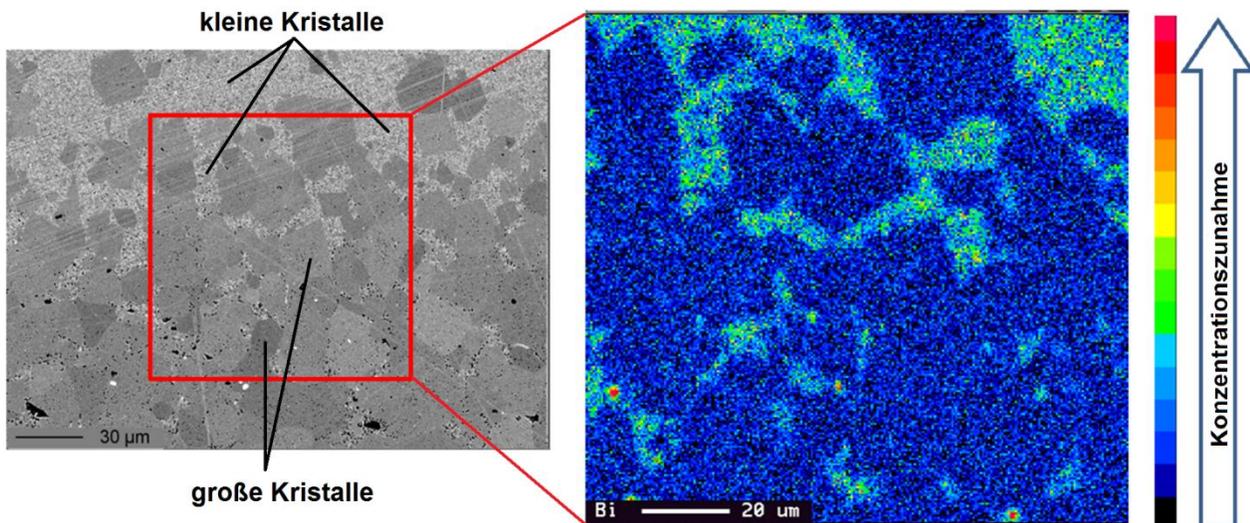
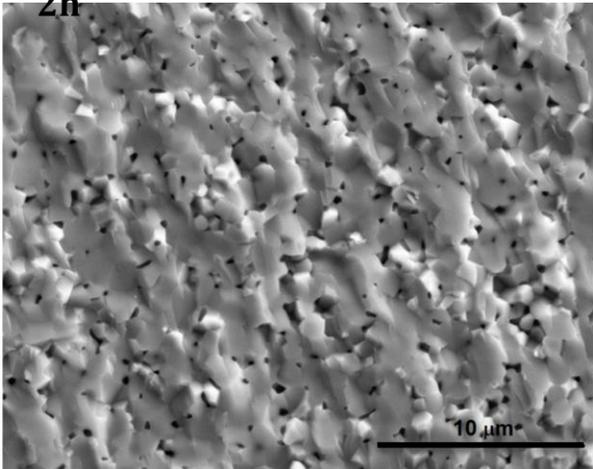


Abb. 15: Verteilung des Bismuts im Übergangsbereich zwischen kleinen und großen Ferritkristallen.

Aus den ESMA-Untersuchungen kann geschlussfolgert werden, dass der Bismutgehalt die Gefügeausbildung und damit die Permeabilität des NiCuZn-Ferrits stark beeinflusst. Vermutet wird, dass die Reduzierung des Bismutgehaltes in der Ferritschicht während des Sinterns für Kornwachstum und hohe Permeabilität notwendig ist. Das Entweichen des Bismuts aus dem Ferrit wird beim Co-Sintern durch die äußeren, frühzeitig dichten Basis-Folien verhindert.

Im Berichtszeitraum wurden zwei neue NiCuZn-Ferrite (ALF03 und ALF04) mit erwünschten hohen Curie-Temperaturen ($> 200\text{ °C}$) durch die FH Jena entwickelt und vom IKTS Hermsdorf in Folienform zur Verfügung gestellt. Im Vergleich zu NiZn100 ($\text{Ni}_{0,2}\text{Cu}_{0,2}\text{Zn}_{0,62}\text{Fe}_{1,98}\text{O}_{3,99}$) haben die neuen Ferritwerkstoffe höhere Ni- und geringere Zn-Gehalte. ALF04 hat die Zusammensetzung $\text{Ni}_{0,3}\text{Cu}_{0,2}\text{Zn}_{0,52}\text{Fe}_{1,98}\text{O}_{3,99}$ und enthält 0,5 Ma.% Bi_2O_3 als Sinteradditiv, während ALF03 mit der gleichen Zusammensetzung kein Bi_2O_3 enthält. ALF03 und ALF04 erreichen nach dem Sintern bei $900\text{ °C} / 2\text{h}$ Permeabilitäten von 300 bzw. 500. Die Permeabilität von ALF03 kann jedoch durch geringfügig höhere Sintertemperatur (915 °C) auf $\mu' = 480$ erhöht werden. Ursache dafür ist eine Verringerung der Porosität im Vergleich zu dem bei 900 °C gesintertem ALF03-Ferrit (siehe Gefügebildungen in Abb. 16).

**ALF03, gesintert bei 900 °C /
2h**



**ALF03, gesintert bei 915 °C /
2h**

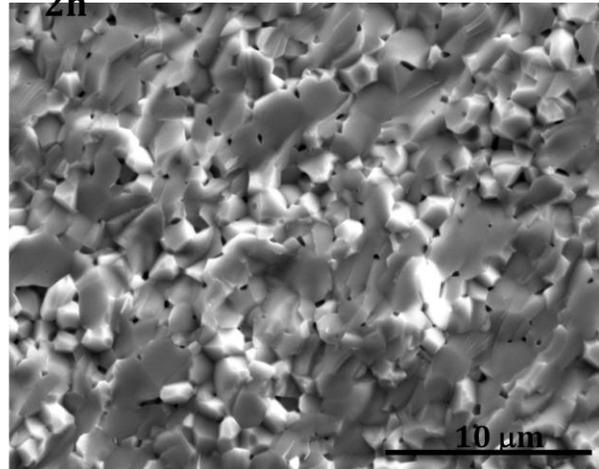


Abb. 16: Gefüge der ALF03-Ferrite nach dem Sintern bei 900 °C (links) und bei 915 °C (rechts)

In Abb. 17 sind die Schwindungskurven von ALF03, ALF04 und der Basisfolie BAM[474] gegenübergestellt. Die Schwindungskurve der BAM[474]-Basisfolie ist insgesamt gut angepasst an die der beiden Ferritfolien. Insbesondere oberhalb 850 °C sind BAM[474]-Basisfolie und ALF03 besser kompatibel.

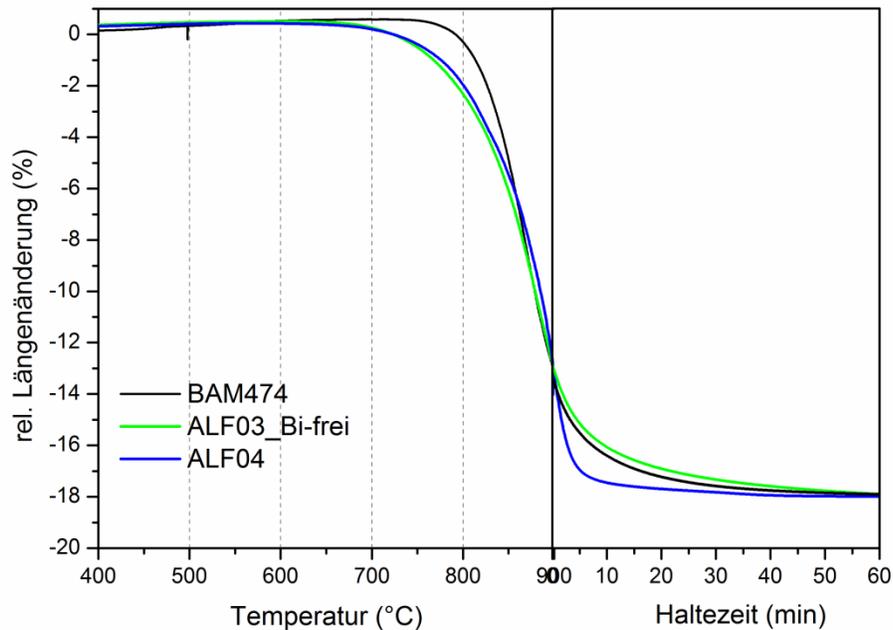


Abb. 17: Schwindungskurven von BAM[474], ALF03-Ferrit (Bi-frei) und ALF04-Ferrit (Aufheizrate 5 K/min)

Für die Herstellung der Kombinationslaminare wurden ALF03- und ALF04-Ferritfolien zwischen BAM[474]-Basisfolien laminiert und bei 900 °C bzw. 915 °C für 2 Stunden gesintert. Die

Permeabilitäten der co-gesinterten Ferrite im Vergleich zu separat gesinterten Ferriten sind in Tabelle 3 aufgelistet.

Tabelle 3: Permeabilität und Porosität der separat gesinterten bzw. co-gesinterten ALF03 und ALF04-Ferrite

Brennregime	5 K/min Aufheizrate 900 °C / 2 h (drucklos)		5 K/min Aufheizrate 915 °C / 2 h (drucklos)	
	ALF04 separat	ALF04 mit BAM[474]	ALF03 (Bi-frei) Separat	ALF03 (Bi-frei) mit BAM[474]
Permeabilität	550	240	480	470

Die Permeabilität des mit BAM[474] co-gesintertem ALF04-Ferrit erreicht weniger als 50 % der Permeabilität des separat gesinterten Ferrits (ähnlicher Effekt wie bei NiZn100-Ferriten). Die Permeabilität des mit BAM[474] co-gesinterten ALF03-Ferrits (Bi-frei) ist jedoch nahezu identisch mit der Permeabilität des separat gesinterten ALF03-Ferrits.

In Abb. 18 sind die Sintergefüge von separat und mit BAM[474] co-gesinterten ALF04-Ferriten gegenübergestellt. Der separat gesinterte ALF04-Ferrit weist ein durchgehend grobkörniges Gefüge (wie NiZn100 in Abb. 6) auf. Das Gefüge des co-gesinterten Ferrits ist dagegen feinkörnig.

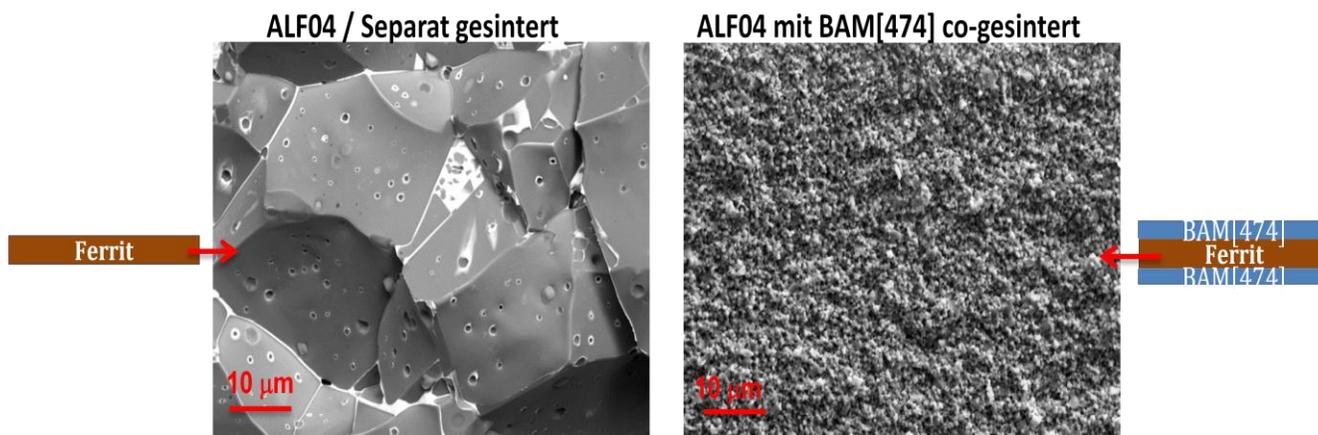
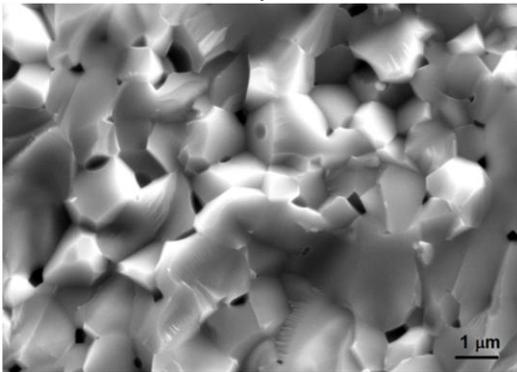


Abb. 18: Gefüge der separat gesinterten (links) und co-gesinterten (rechts) Ferrite.

In Abb. 19 sind die Sintergefüge von separat gesinterten und co-gesinterten ALF03-Ferriten gegenübergestellt. Beide Proben weisen ähnliche Kristallgrößenverteilungen mit mittleren Kristallgrößen zwischen 1 und 2 µm auf.

**ALF03 / Separat gesintert,
bei 915 °C / 2 h**



**ALF03 mit BAM [474] co-gesintert,
bei 915°C / 2 h**

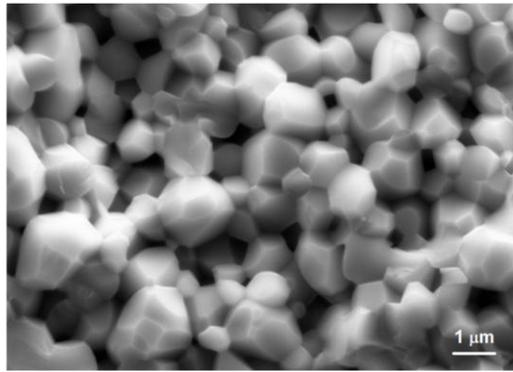


Abb. 19: Gefüge von ALF03-Ferriten separat gesintert (links) und co-gesintert mit BAM[474],

Die Ergebnisse der Co-Sinterung mit neuen NiCuZn-Ferritwerkstoffen (ALF03 und ALF04) bestätigen die Hypothese, dass Gefüge und Permeabilität der NiCuZn-Ferrite stark durch den Bismutgehalt beeinflusst werden. Bi-freie Ferrite (ALF03) zeigen keinen Einfluss der Co-Sinterung auf Kristallgröße und Permeabilität.

Laut Berechnungen des Projektpartners Siemens ist bereits eine Permeabilität von 200 für den im Rahmen des ALFERMO-Projekts zur realisierenden Demonstrator ausreichend. Diese Permeabilität kann bei beiden Ferriten (ALF03 und ALF04) nach dem Co-Sintern mit den Basisfolien gewährleistet werden. Die bismutfreie Variante erreicht jedoch deutlich höhere Permeabilitäten auch mit geringer Ferritschichtdicke.

Multilayer mit MnZn-Ferritfolien

Kombiniert wurde die bei Siemens entwickelte LTCC-kompatible MnZn-Ferritfolie mit der in der BAM entwickelten LTCC-Basisfolie BAM[562]. BAM[562] und MnZn-Ferrit weisen ähnliche Ausdehnungskoeffizienten auf (Abb. 20 links). Ein Großteil der Sinterschwindung (ca. 8 %) beim MnZn-Ferrit findet während der Haltezeit bei 900 °C statt. Um die Schwindungskurve der Basisfolie an die der MnZn-Ferritfolie anzupassen, wurde BAM[562] mit optimierter Glaszusammensetzung (Glas mit höherer T_g) entwickelt. Auch bei BAM[562] findet ein großer Teil der Schwindung (ca. 5 %) während der Haltezeit statt (Abb. 20 rechts).

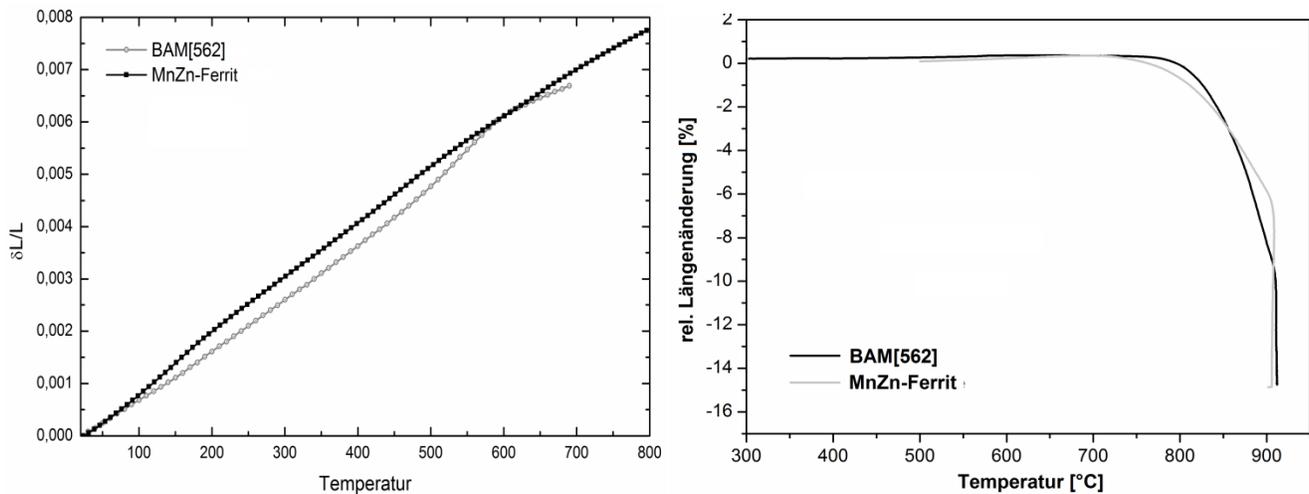


Abb. 20: Ausdehnungs- (links) und Schwindungsverhalten (rechts) der MnZn-Ferritfolie und der LTCC-Basisfolie BAM[562] bei 5 K/min Aufheizrate.

MnZn-Ferrite müssen unter Stickstoffatmosphäre gesintert werden, um die Bildung/Stabilität des Ferrits zu gewährleisten. Abb. 21 zeigt einen Querschliff eines Kombinationslaminats bestehend aus MnZn-Ferritfolien und Basisfolien BAM[562]. Es sind keine Risse bzw. Delaminationen erkennbar und sowohl Ferritwerkstoff als auch Basiswerkstoff sind ausreichend verdichtet (Porosität < 5 %).

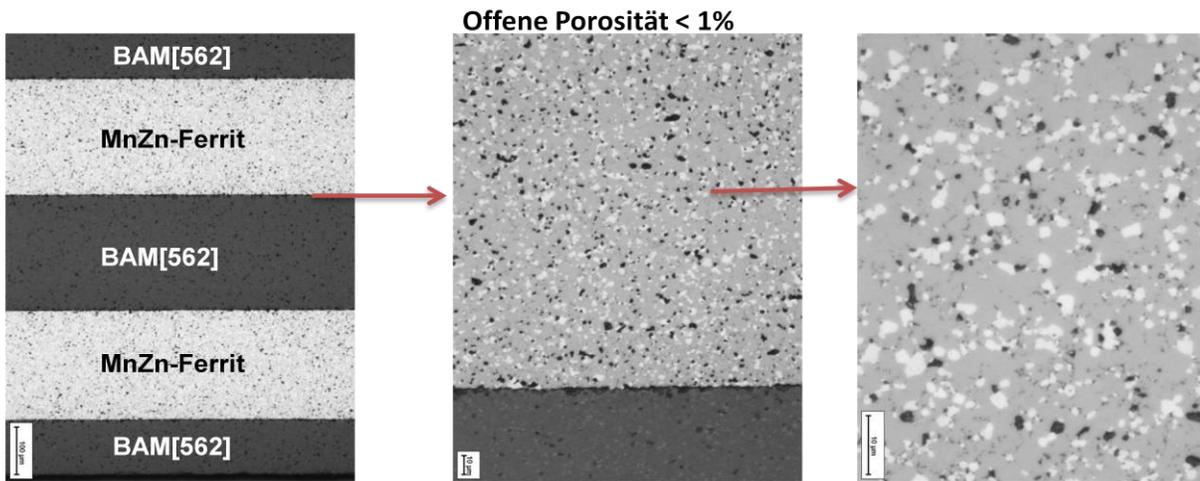


Abb. 21: 5-lagiges Kombinationslaminat aus MnZn-Ferritfolien und BAM[562]-Basisfolien (links) und Gefügausschnitten aus der MnZn-Ferritschicht (Mitte und rechts).

Im Vergleich zu separat gesintertem MnZn-Ferrit mit einer Permeabilität größer 500 weisen die co-gesinterten MnZn-Ferrite eine Permeabilität von weniger als 100 auf. Um die Ursache für diese Permeabilitätsabnahme aufzuklären, wurden umfangreiche Untersuchungen durchgeführt.

In Abb. 22 sind die Sintergefüge der separat- und co-gesinterten MnZn-Ferrite gegenübergestellt. REM-Bilder der Bruchflächen zeigen, dass das Gefüge des separat gesinterten MnZn-Ferrits nur geringfügig gröber ist, als das des co-gesinterten Ferrits.

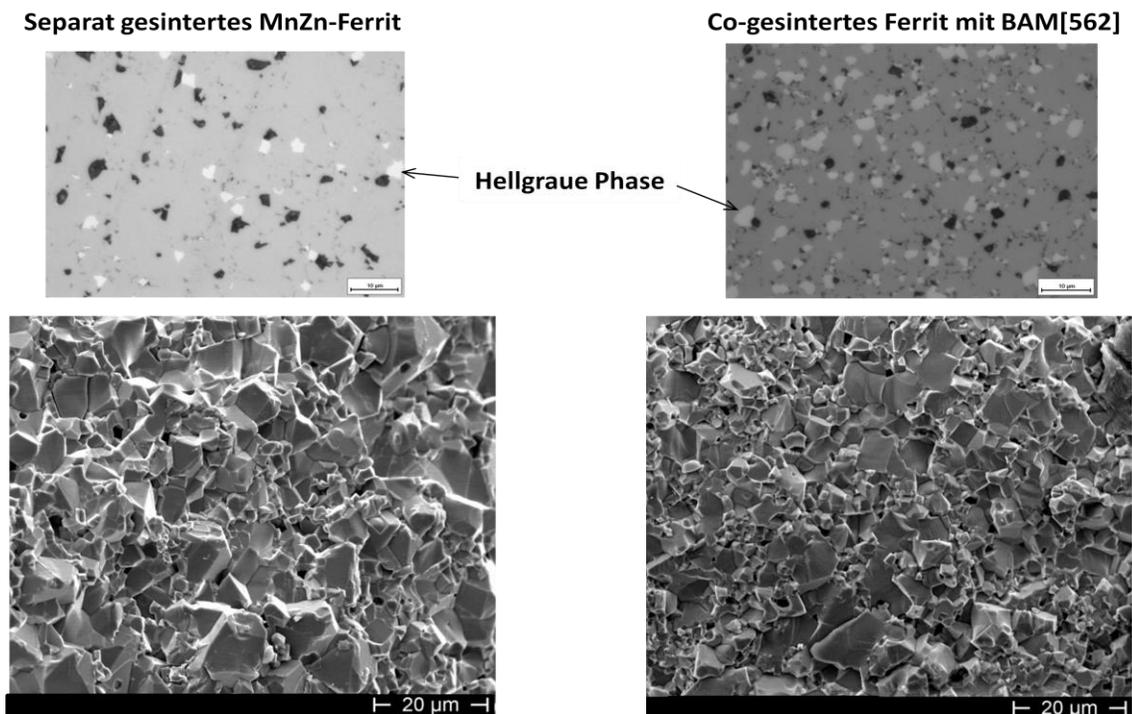


Abb. 22: Gefüge der separat gesinterten (links) und co-gesinterten (rechts) MnZn-Ferrite, lichtmikroskopische Anschliffbilder (oben) und REM-Bilder der Bruchflächen (unten).

Bei einem Vergleich der Gefügeanschliffe (Abb. 22 oben) ist im co-gesinterten MnZn-Ferrit ein deutlich größerer Volumenanteil an einer hellgrauen Phase als im separat gesinterten Ferrit zu erkennen. Mittels EDX wurde nachgewiesen, dass diese hellgraue Phase ausschließlich aus Eisenoxid besteht.

Die Ergebnisse der XRD-Analyse sind in Abb. 23 zusammengestellt. Die Spektren des MnZn-Ferritpulvers nach der Mahlung und der MnZn-Ferritfolie nach dem Ausbrennen weisen sowohl Spinellpeaks als auch die Peaks von Fe_2O_3 und Mn_2O_3 auf. Während des Sinterns bei 900 °C unter Stickstoffatmosphäre erfolgt idealerweise eine vollständige Umsetzung der restlichen Ausgangsoxide zur Spinellphase $(\text{Mn,Zn})\text{Fe}_2\text{O}_4$. Voraussetzung ist eine Reduktion des Mn_2O_3 zu MnO . Im XRD-Spektrum des separat gesinterten MnZn-Ferrits ist nahezu ausschließlich die Spinell-Phase des MnZn-Ferrits nachweisbar. Der co-gesinterte Ferrit enthält neben der Spinell-Phase auch einen beträchtlichen Anteil an Fe_2O_3 . Das stimmt mit den Gefügebilder und den Ergebnissen der EDX-Analyse überein.

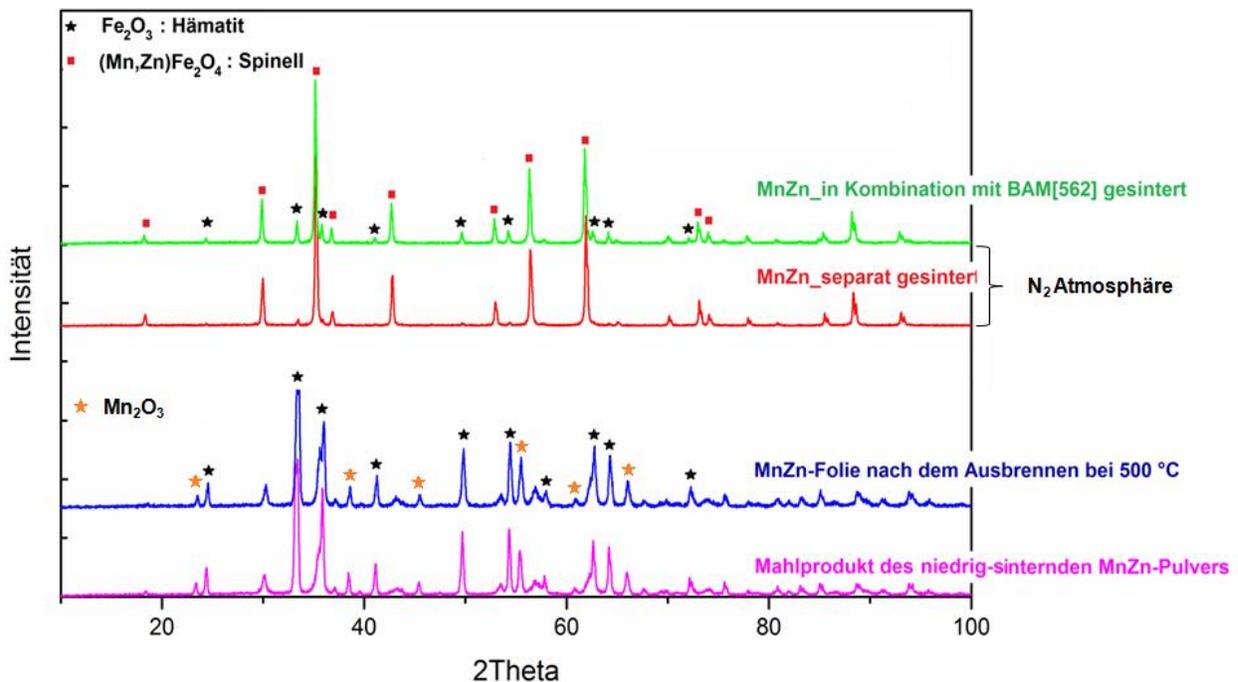


Abb. 23: XRD-Analyse des MnZn-Pulvers (magenta), der MnZn-Folie nach dem Ausbrennen (blau), des separat gesinterten MnZn-Ferrit nach dem Sintern in N_2 (rot) und des co-gesinterten MnZn-Ferrit nach dem Sintern in N_2 (grün).

Als Ursache für die Permeabilitätsabnahme in Kombinationslaminate wird auf der Basis der XRD- und REM-Analysen vermutet: Die Ausbildung der MnZn-Spinell-Phase ($\text{Zn}^{2+}_{(1-y)} \text{Mn}^{2+}_y \text{Fe}^{3+}_2 \text{O}_4$), die für das

Erreichen hoher Permeabilität bei MnZn-Ferriten notwendig ist, wird durch die äußeren Basisfolien behindert. Da Basisfolien schneller als die innere Ferritschicht dichtsintern, wird der Gasaustausch zwischen Ferritfolie und Sinteratmosphäre (N_2) unterbrochen, bevor die Ferritbildung abgeschlossen ist. Dadurch wird der bei der Reduzierung des Manganoxids (Mn^{3+} zu Mn^{2+}) freigesetzte Sauerstoff nicht mehr aus der Ferritfolie abtransportiert. Der Sauerstoffpartialdruck innerhalb der Ferritfolie steigt und die Reduktion der Mn_2O_3 -Phase wird gestoppt. Die verbliebenen Mn^{3+} Ionen werden auf dreiwertigen Kationen-Plätzen in die Spinellphase eingebaut. Aufgrund der Bildung einer Mn-reichen Spinellphase ($Zn^{2+}_{(1-y)} Mn^{2+}_y Mn^{3+}_{(2-x)} Fe^{3+}_x O_4$) wird nur ein Teil des vorhandenen Eisenoxids für die Spinellbildung gebraucht. Der andere Teil ist im co-gesinterten Ferrit als Fe_2O_3 (Hämatit) nachweisbar (hellgraue Körner in Abb.22 oben/rechts). Die Mn-reiche Spinellphase, die in der co-gesinterten MnZn-Schicht vorhanden ist, besitzt offenbar eine geringe Permeabilität.

Um die für eine hohe Permeabilität notwendige Zusammensetzung des MnZn-Ferrits auch in co-gesinterten Multilayern zu gewährleisten, muss die Reduzierung von Mn^{3+} zu Mn^{2+} vor dem Dichtsintern der Basisfolie stattfinden. Voraussetzung dafür ist eine stärker reduzierende Atmosphäre als der bisher eingesetzte technische Stickstoff. Es muss ein Sauerstoffpartialdruck eingestellt werden, der während des Aufheizens leicht unterhalb der berechneten Gleichgewichtskurve für $4MnO+O_2 \leftrightarrow 2Mn_2O_3$ liegt (siehe Abb. 24).

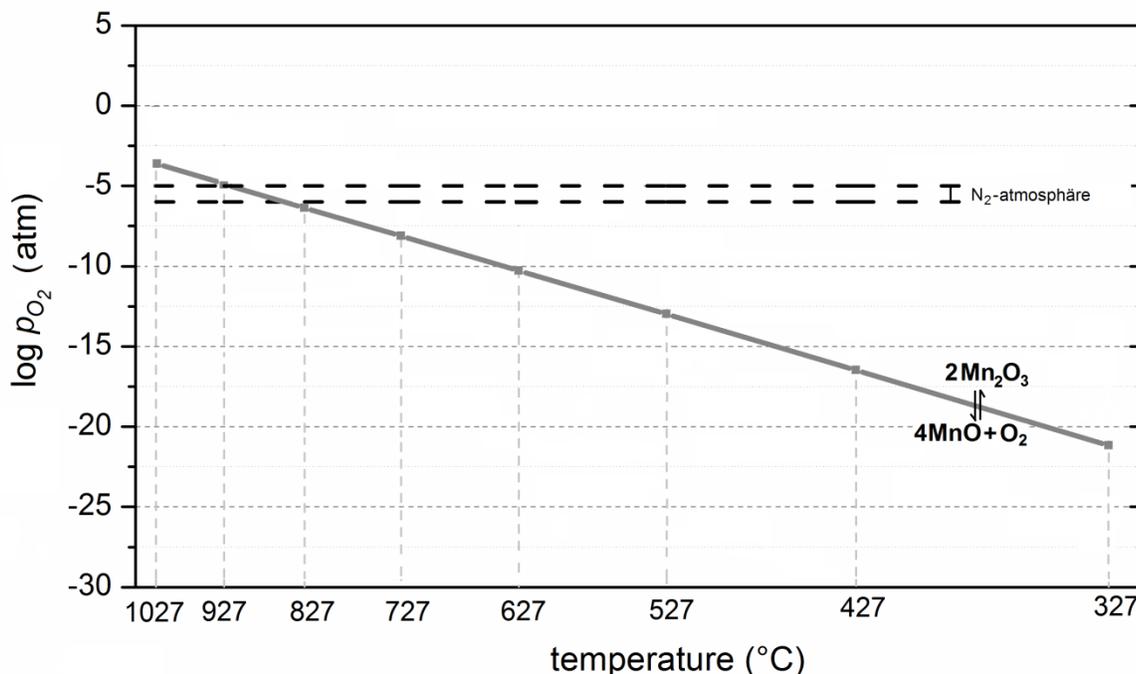


Abb. 24: Sauerstoffpartialdruck-Temperatur-Diagramm mit Koexistenz-Linie für $4MnO+O_2 \leftrightarrow 2Mn_2O_3$. (zwischen den horizontal gestrichelten Linien ist der in technischem Stickstoff zu erwartende Sauerstoffpartialdruck visualisiert).

Bereits bei ersten Variationen der Sinteratmosphäre auf Basis der thermochemischen Berechnungen konnte die Permeabilität des co-gesinterten MnZn-Ferrits auf 190 erhöht werden. Die

Optimierungsversuche wurden jedoch eingestellt, da das kommerzielle MnZn-Pulver (N27, EPCOS, Deutschland), das seit Projektbeginn zur Herstellung der LTCC-kompatiblen MnZn-Ferritfolie verwendet wurde, nicht mehr am Markt verfügbar war. Ersatzpulver, die bei Siemens aufbereitet und untersucht wurden, erreichten die erforderlichen magnetischen Eigenschaften nicht. Eine Permeabilität von 200, wie für den zu entwickelnden Transformator erforderlich, wurde mit diesem Ersatzpulver auch an separat gesinterten MnZn-Ferriten nicht erreicht.

2.1.2 AP4: Integration von Silber-Leiterbahnen in LTCC

Aus früheren Untersuchungen ist bekannt, dass Silber während des Co-Sinterns in Gegenwart von Sauerstoff zunächst oxidiert und dann von der Leiterbahn in die Glasphase der umgebenden Basisfolie diffundieren kann. Der Prozess endet, wenn der Sinterprozess des umgebenden LTCC-Werkstoffs soweit fortgeschritten ist, dass keine offene Porosität mehr vorliegt, durch die weiterer Luftsauerstoff zur Silber-Leiterbahn gelangen kann. Das zu diesem Zeitpunkt im Glas bereits vorhandene Silber breitet sich jedoch in der Glasphase aus (siehe Abb. 25).

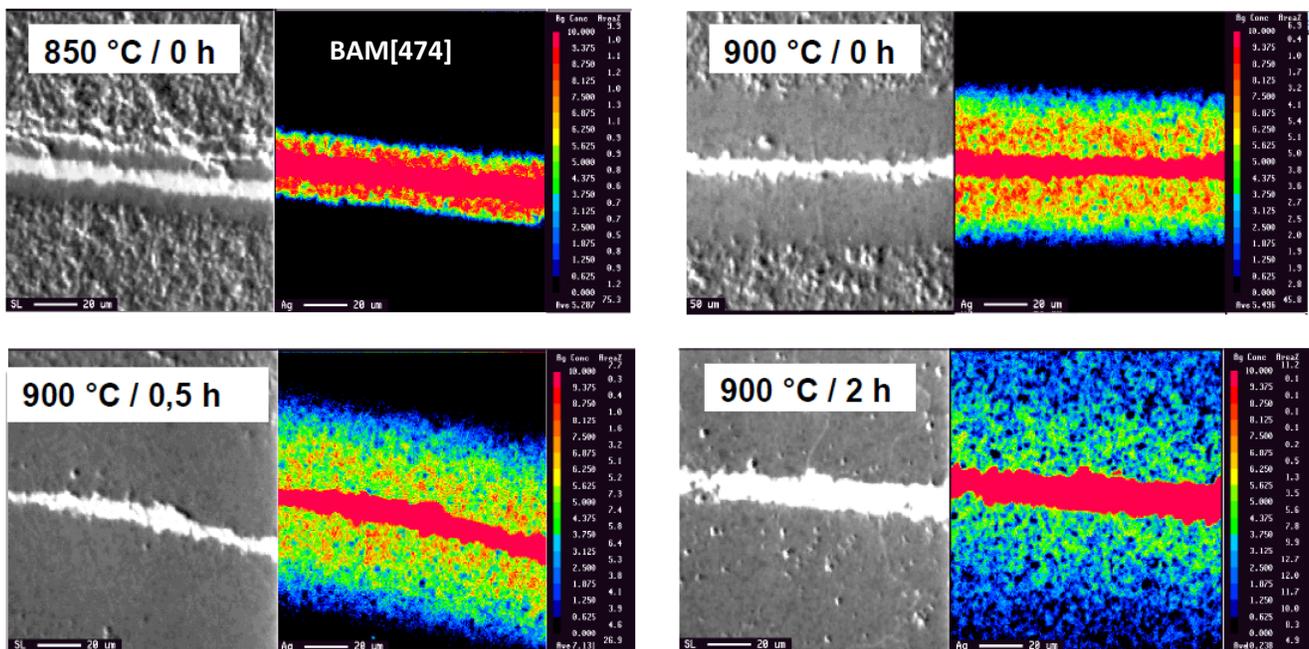


Abb. 25: Diffusionsvorgang des Silbers in die BAM[474]-Folie (Abbruchbrände)

Die Silber-Diffusion modifiziert in der Nähe der Silberleiterbahnen die Glaszusammensetzung (Abb. 26). Als Folge davon sinkt der Transformationspunkt des LTCC-Glases, so dass um die Silber-Leiterbahnen eine beschleunigte Sinterverdichtung stattfindet (Abb. 25). Die sich ausbildenden Sinter- und Gefügespannungen können im Multilayer Verzug und Delaminationen verursachen.

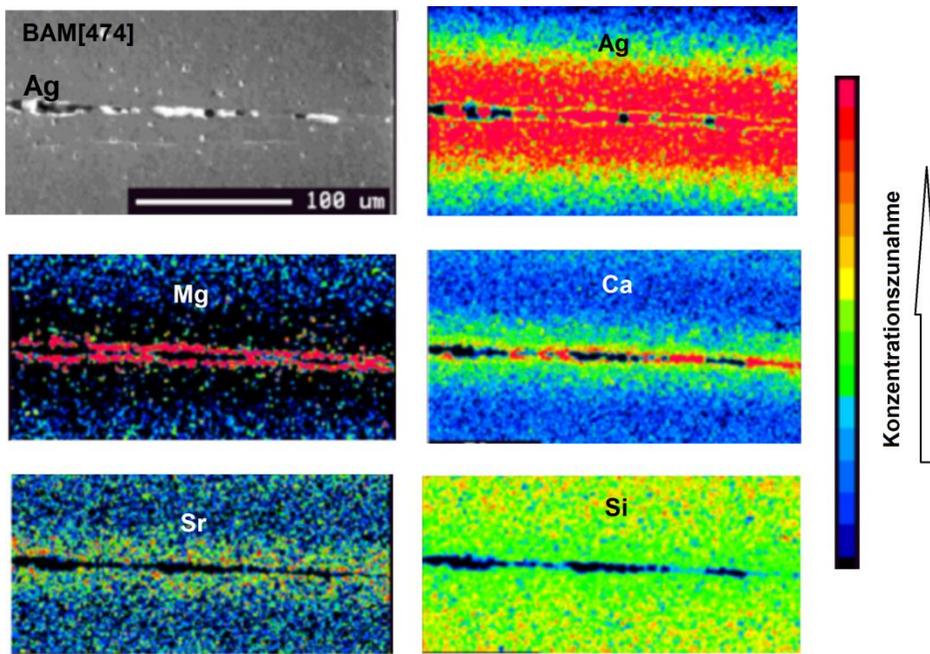


Abb. 26: Modifizierung der Glaszusammensetzung der BAM[474]-Folie um die Leiterbahn durch die Silberdiffusion

Es wurde beobachtet, dass die Silberdiffusion besonders stark ist, wenn der umgebende LTCC-Werkstoff erst bei höheren Temperaturen verdichtet (Werkstoff BAM474 in Abb. 27). Ein entsprechendes Sinterverhalten ist jedoch gerade notwendig, um das Schwindungsverhalten der Basisfolie an das der Ferritfolie anzupassen. ,

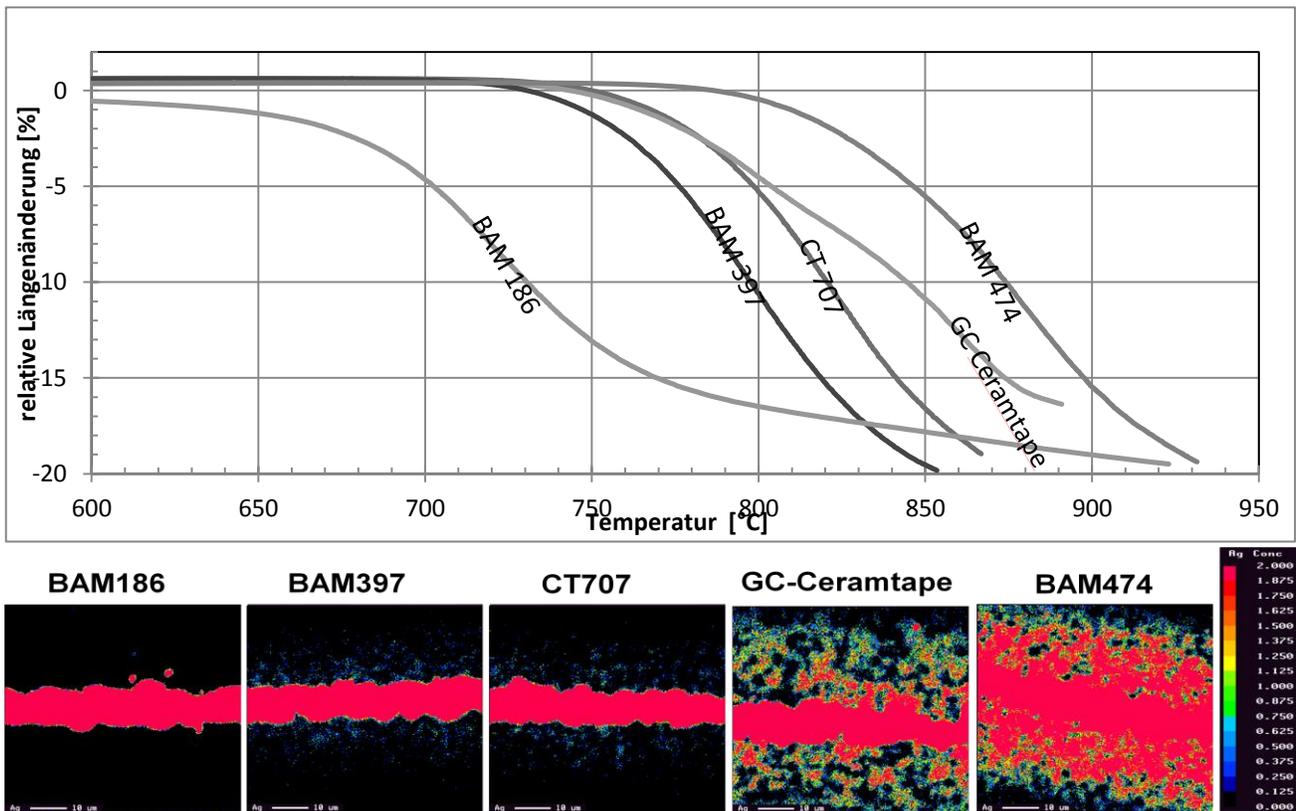


Abb. 27: Abhängigkeit der Silbermigration von dem Schwindungsverhalten unterschiedlicher LTCC-Basisfolien

Die Silberdiffusion kann durch Erhöhung der Aufheizrate beim Sintern reduziert werden. Abb. 28 zeigt zweilagige BAM[474]-Lamine mit inneren Silberleiterbahnen nach dem Sintern mit Aufheizraten von 1 K/min bzw. 5 K/min.

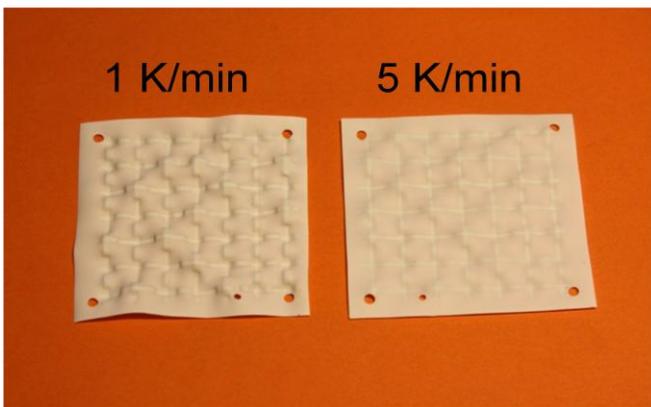


Abb. 28: BAM[474]-Lamine mit inneren Silberleiterbahnen nach dem Sintern, Aufheizrate: 1 K/min (links) und 5 K/min (rechts).

Der Deformationsvorgang der zweilagigen BAM[474]-Lamine mit inneren Silberleiterbahnen wurde während des Sinterns im Hochtemperatur-Laserprofilometer (HTLP) untersucht. Aus den Ergebnissen können Aussagen über Beginn und Intensität der Laminatdeformation in Abhängigkeit von der Aufheizgeschwindigkeit getroffen werden. Je länger das Basismaterial porös bleibt, umso mehr Silberoxid wird gebildet und diffundiert in die Glasphase der Basisfolie. Bei höheren Aufheizraten wird die Basisfolie schneller gasdicht, die Silberdiffusion und der dadurch bedingte Verzug des Laminats nehmen ab. Durch Erhöhung der Aufheizrate beim Sintern kann der durch Silberdiffusion verursachte Sinterverzug reduziert, jedoch nicht vollständig verhindert werden.

Wirkungsvoller kann die Silberdiffusion durch eine Sinterung unter Stickstoff verhindert werden. Abb. 29 zeigt die Silberdiffusion und die dadurch verursachte Deformation zweilagiger BAM[474]-Lamine mit inneren Silberleiterbahnen nach dem Sintern unter verschiedenen Atmosphären. Es ist zu beobachten, dass die Silberdiffusion und der dadurch bedingte Laminat-Verzug vom Sauerstoffpartialdruck der Sinteratmosphäre bestimmt werden. In technischem Stickstoff mit einem Sauerstoffpartialdruck von etwa 10^{-5} atm sind weder Silberdiffusion noch Laminatverzug erkennbar.

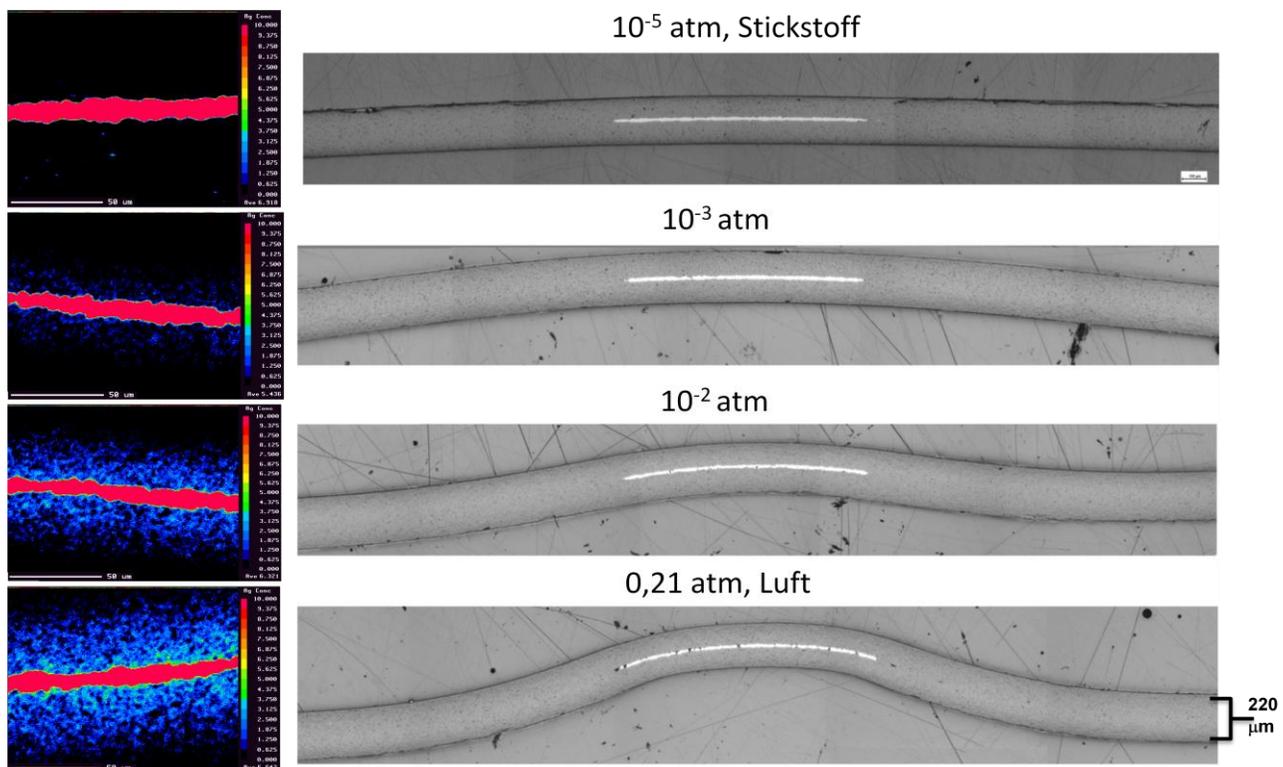


Abb. 29: Silberdiffusion (ESMA-Untersuchung, links) und Sinterverzug (rechts) der BAM[474]-Lamine gesintert unter verschiedenen Sauerstoffpartialdrücken.

Eine Sinterung in Stickstoff gefährdet jedoch die Stabilität des NiCuZn-Ferrits durch Reduktion des zweiwertigen Kupfers. Röntgenographisch nachgewiesen wurde die Ausscheidung von Cu₂O (Cuprit) nach einer Sinterung unter Stickstoff-Atmosphäre. Durch partielle Zersetzung der NiCuZn-Spinellphase nimmt die Permeabilität des Ferrits ab.

Abb. 30 zeigt die Gleichgewichtslage für die Reaktion $4\text{CuO} \leftrightarrow 2\text{Cu}_2\text{O} + \text{O}_2$ in Abhängigkeit von Sauerstoffpartialdruck und Temperatur. Laut thermodynamischen Berechnungen führt bei 900 °C bereits ein Sauerstoffpartialdruck unterhalb 10^{-2} atm zur Reduzierung von Cu²⁺ zu Cu¹⁺ und damit zur Zersetzung des Ferrits.

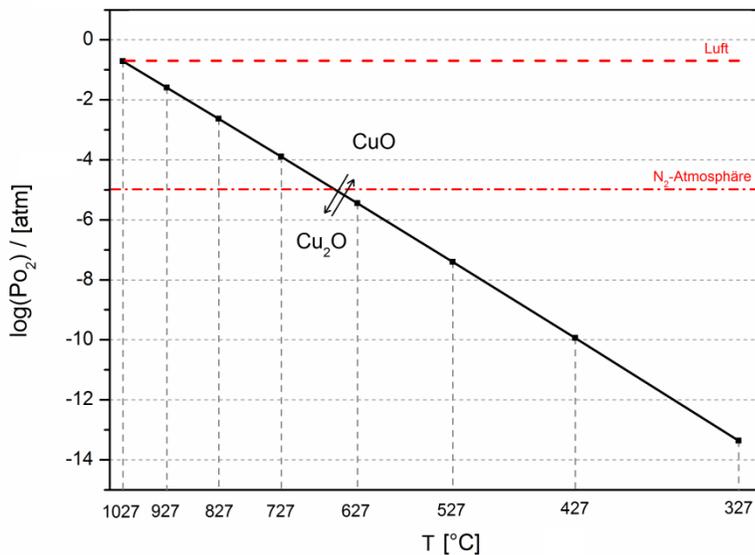


Abb. 30: $\log(p\text{O}_2)$ -Temperatur-Diagramm mit den Stabilitätsbereichen von CuO und Cu₂O.

In Tabelle 4 ist die Permeabilität der bei unterschiedlichen Sauerstoffpartialdrücken co-gesinterten ALF03-Ferrite (Bi-frei) gegenübergestellt.

Tabelle 4: Permeabilität co-gesinterner ALF03-Ferrite in Abhängigkeit vom Sauerstoffpartialdruck

Sauerstoffpartialdruck (atm)	10^{-5} (N ₂)	10^{-3}	10^{-2}	0,21 (Luft)
Permeabilität	220	230	480	474

Es ist eine starke Permeabilitätsabnahme nach Sinterung unter Sauerstoffpartialdrücken kleiner 10^{-2} atm zu beobachten, die vermutlich auf die partielle Zersetzung des NiCuZn-Ferrits durch Reduzierung von Cu²⁺ zu Cu¹⁺ zurückzuführen ist. Die Messwerte korrelieren mit den thermodynamischen Berechnungen in Abb. 30.

Trotz starker Permeabilitätsabnahme unterhalb eines Sauerstoffpartialdrucks von 10^{-2} atm, bleibt die Permeabilität weiterhin oberhalb des vom Projektpartner Siemens vorgegebenen Zielwerts von 200.

2.1.3 AP4, 8 und 11: Entwicklung (Aufbau, Sinterung und Bewertung) von Multilayer-Transformatoren für LED-Baugruppen

Der schematische Aufbau des Transformators für die Treiberschaltung ist in Abb. 31 dargestellt. Er besteht aus einem Mittelteil mit primären und sekundären Silberwindungen (8 bzw. 9 Lagen) zwischen zwei Ferritlagen sowie zwei äußeren Basislagen. In den ursprünglichen Layouts war eine Dicke der Ferritlage zwischen 100 und 500 μm als ausreichend angesehen worden. Entsprechend wurden allen Untersuchungen und Aufbauten zum Aufbau der Multilayer mit Ferritschichtdicken $< 500 \mu\text{m}$ durchgeführt. Erst in der Schlussphase des Projektes (20.02.2013) wurde das finale Layout der Fa. Siemens mit nun deutlich dickeren Ferritschichten ($> 1\text{mm}$) präsentiert.

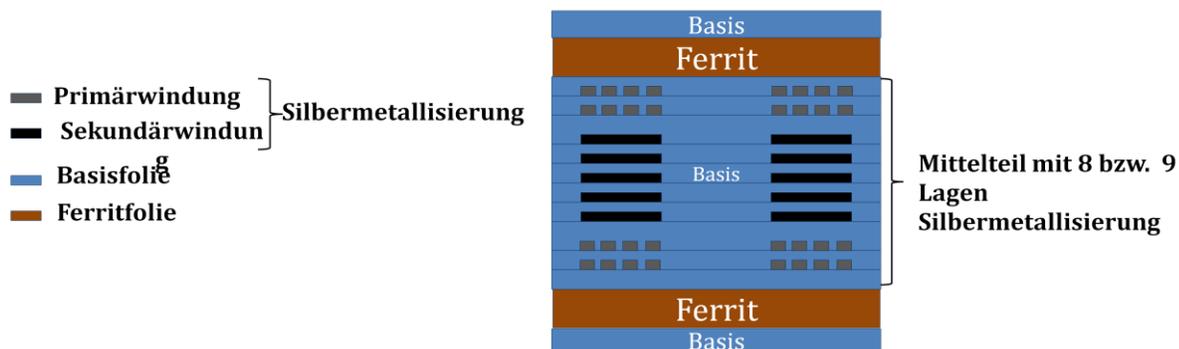


Abb. 31: Schematischer Aufbau des Transformators

Drucksintern

In Abschnitt 2.1.2 wurde die Silberproblematik ausführlich diskutiert. Drucksintern ist eine vielversprechende Möglichkeit, um die durch Silberdiffusion verursachten Delaminationen sowie den Bauteilverzug zu minimieren.

Drucksinterversuche wurden an der BAM in einer Sinterpresse der Firma ATV (PEO 603) durchgeführt (Abb. 32).

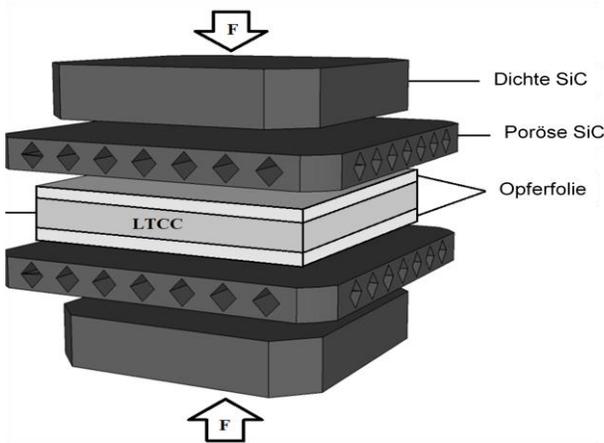


Abb. 32: Schematische Anordnung der LTCC-Laminat- und Brennhilfsmittel für das Drucksintern.

Um eine Ansinterung der Proben an den porösen SiC-Brennunterlagen zu verhindern, wurden auflamierte bzw. aufgelegte Al_2O_3 -Opferfolien vom Typ Ceramtape A (CeramTec AG) verwendet. Da das Ferritmaterial nur geringe Mengen an Flussmitteln (<0,5 Ma.%) enthält, ist für die Verdichtung der Ferritschicht in Mindestdruck von ca. 1 MPa erforderlich. Unterhalb 1 MPa reicht der Druck nicht aus, um die in lateraler Richtung unterdrückte Schwindung durch erhöhte Schwindung in vertikaler Richtung vollständig zu kompensieren. Die Ferritschicht bleibt daher bei kleineren Drücken porös.

A) Drucksintern der Transformatoren mit Dünnschichtsilberleiterbahnen:

Für die Trafo-Herstellung wurden die aus BAM[474]- bzw. DP951-Basisfolien mit Dünnschichtsilberleiterbahnen (Standard-Leiterbahnen) hergestellten Mittelteile vom Projektpartner Via-electronic zur Verfügung gestellt. DP951 ist eine kommerzielle Basisfolie, deren Ausdehnungskoeffizient und Schwindungsverhalten nicht an das NiCuZn-Ferritmaterial angepasst sind. Bei der BAM wurden die zwei NiCuZn-Ferritlagen (NiZn100) und die zwei äußeren BAM[474]-Basisfolien auf die Mittelteile laminiert und druckgesintert.

Abb. 33 zeigt die beiden Transformatoren nach dem Sintern bei 900 °C / 2 h unter einem Druck von 1,25 MPa. Der Trafo aus DP951 ist breitgedrückt, da die Glasphase des DP951-Werkstoffs bei 900 °C sehr niedrigviskos ist und einem uniaxialen Druck von 1,25 MPa nicht stand halten kann. Da die Glasphase des BAM[474]-Werkstoffs bei 900 °C hochviskoser ist, wird der Trafo aus BAM[474] während des Drucksinterns nur geringfügig deformiert.

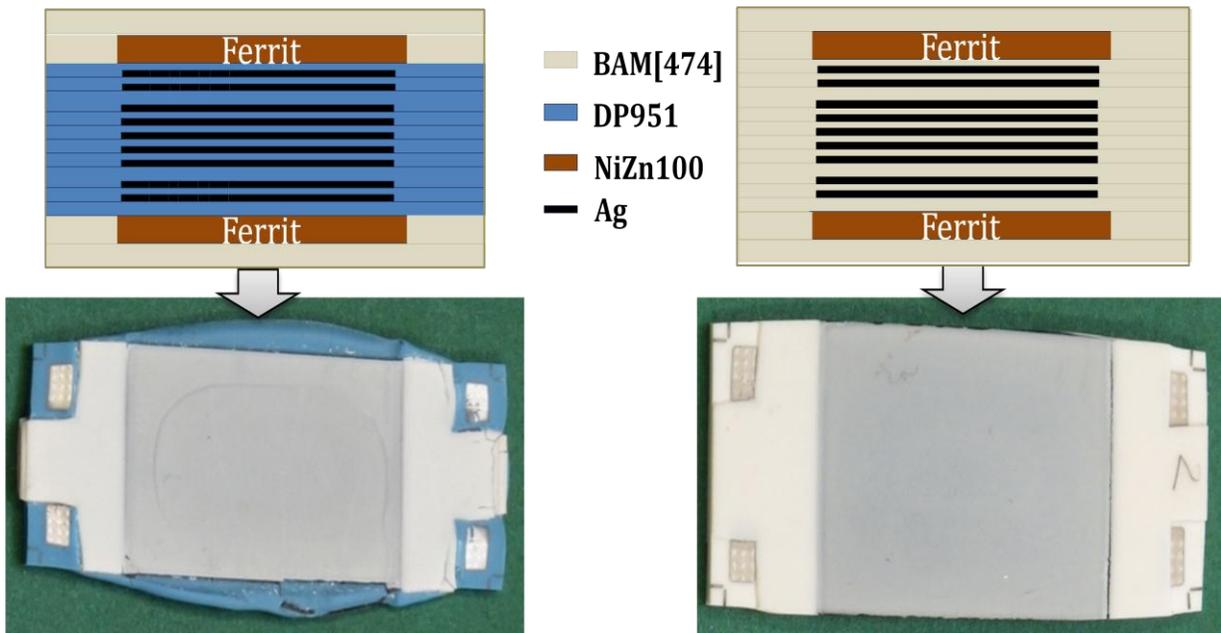
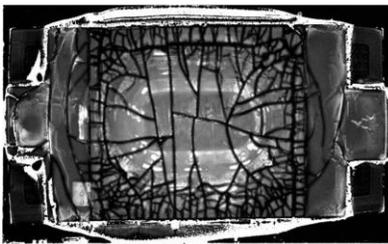


Abb. 33: Multilayer-Transformatoren nach dem Drucksintern bei 900 °C / 2 h / 1,25 MPa, links: Trafo mit Mittelteil aus DP951, rechts: Trafo mit Mittelteil aus BAM[474].

Mittels Ultraschallmikroskop wurden viele Risse in Trafos aus DP951 detektiert (Abb. 34, links). Neben dem nicht angepassten Schwindungsverhalten könnten auch die unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten von DP951 (CTE=5,8 ppm/K) und NiZn100-Ferrit (CTE=9,7 ppm/K) Ursache der Risse sein. Die co-gesinterten Transformatoren aus DP951 waren aufgrund vieler Gefügefehler (Risse) nicht mehr funktionstüchtig.

Der Transformator auf Basis von BAM[474] weist nur einige kleine Risse im Randbereich der Probe auf (Abb. 34, rechts). Die Funktionalität des Trafos wird dadurch nicht beeinträchtigt.

Mittelteil aus DP951



Mittelteil aus BAM[474]

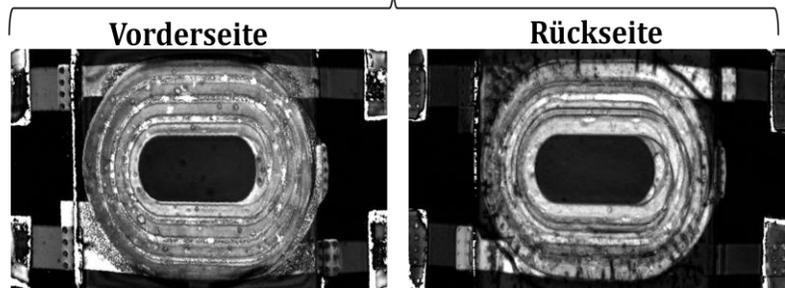


Abb. 34: Ultraschallmikroskopische Bilder der Transformatoren, links: Mittelteil aus DP951, rechts: Mittelteil aus BAM[474].

In Tabelle 5 sind die elektrischen und magnetischen Kennwerte des unter Druck co-gesinterten Trafos bestehend aus BAM[474]-Basis, NiZn100-Ferrit und dünnen Silberleiterbahnen (Silberbahndicke: < 10

μm) und des nicht co-gesinterten Trafos (Ferritplatte wurde angeklebt), bestehend aus DP951-Basis, MnZn-Ferrit und Hochstromsilberleiterbahnen (Silberbahndicke: $30\ \mu\text{m}$ - $40\ \mu\text{m}$) gegenübergestellt. Der co-gesinterte Trafo aus BAM[474] weist Induktivitäten auf, die laut Berechnungen der Fa. Siemens für das Alfermo Projekt ausreichend sind. Der elektrische Widerstand in primären und sekundären Windungen des co-gesinterten Trafos mit dünnen Silberleiterbahnen ist jedoch ca. 4-fach größer als der Widerstand der Windungen im nicht co-gesinterten Trafos mit Hochstromleiterbahnen. Der hohe elektrische Widerstand bedeutet eine starke Wärmeentwicklung während des Betriebs und ist daher unakzeptabel. Für weitere Drucksinterversuche wurden daraufhin Transformatoren mit Hochstromleiterbahnen (Silberbahndicke: $30\ \mu\text{m}$ - $40\ \mu\text{m}$) verwendet.

Tabelle 5: Elektrische und magnetische Kennwerte von Multilayer-Transformatoren (Siemens-Messung).

Primär- zu Sekundärwindung	Basis	Ferrit	Co-Sintern	Silber-bahn	$R_{\text{Primär}}$ (Ω)	$R_{\text{sekundär}}$ (Ω)	$L_{\text{Primär}}$ (μH)	$L_{\text{Sekundär}}$ (μH)
15:5	DP951	MnZn	Nein (geklebt)	Hochstrom (dick)	0,28	0,034	12,9	1,6
15:5	BAM[474]	NiZn100	Drucksintern	Dünnschicht	1,32	0,13	16	1,9

B) Drucksintern der Transformatoren mit Hochstromleiterbahnen

Zur Herstellung der Transformatoren mit Hochstromleiterbahnen wurden zwei verschiedene Verfahren durch die Projektpartner VIA-electronic (Siebdruck) und IKTS (Laserstrukturierung und Schablonendruck) eingesetzt. Die mittlere Silberbahndicke beträgt 40 bis $50\ \mu\text{m}$ im grünen Zustand. Abb. 35 zeigt die Oberflächentopographie und das Welligkeitsprofil eines bei Via-electronic hergestellten Mittelteils bestehend aus BAM[474]-Folien mit inneren Hochstromleiterbahnen im grünen Zustand. Durch Hochstromleiterbahnen entstehen starke Oberflächenerhöhungen bis zu $300\ \mu\text{m}$ im Bereich der Metallisierung.

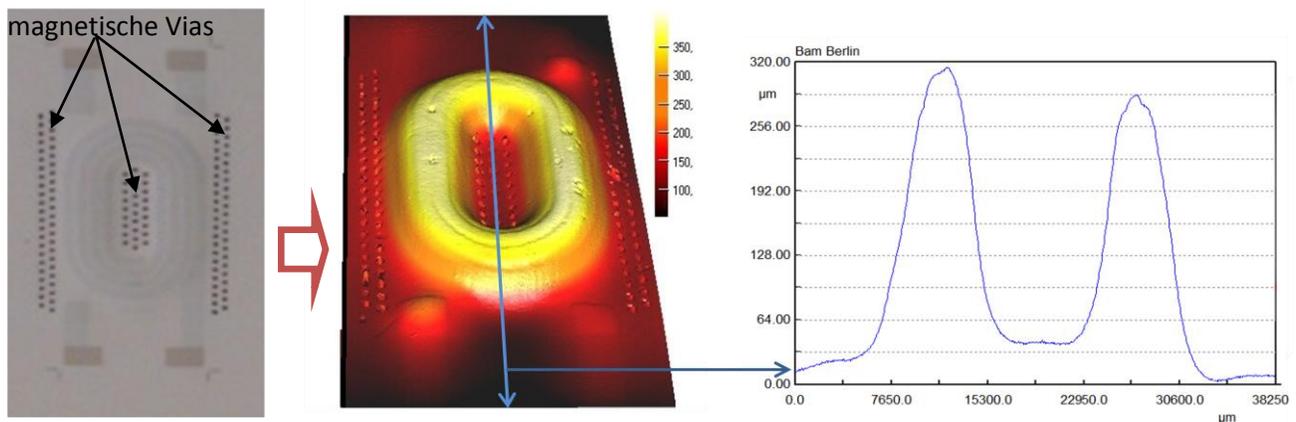


Abb. 35: Oberflächentopographie und Welligkeitsprofil eines Transformatoren-Mittelteils bestehend aus BAM[474]-Folien mit inneren Hochstromleiterbahnen im grünen Zustand.

Da zum Drucksintern eine glatte Oberfläche erforderlich ist, wurden die Oberflächenerhöhungen auf dem Mittelteil vor dem Auflaminieren der äußeren Ferrit- und Basislagen abgeschliffen (siehe Abb. 36).

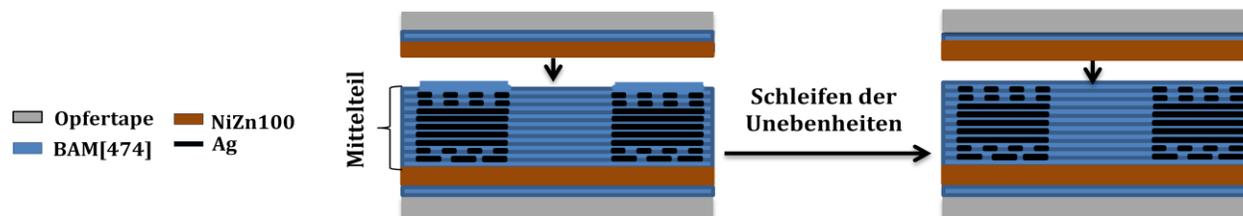


Abb. 36: Feinschleifen der Oberfläche des Mittelteils zur Beseitigung der Unebenheiten

Abb. 37 zeigt die Oberflächentopographie und das Welligkeitsprofil eines im IKTS-Dresden hergestellten Mittelteils, bestehend aus BAM[474]-Folien mit inneren Hochstromleiterbahnen im grünen Zustand. Beim IKTS-Verfahren wurden zuerst 60 µm tiefe Kanäle in den Basisfolien mittels Laserbearbeitung erzeugt. Die Kanäle wurden dann mit Silberpaste mittels Schablonendruck gefüllt. An den untersuchten Mittelteilen wurden Oberflächenvertiefungen bis zu 80 µm im Bereich der Metallisierung beobachtet (siehe Abb. 37).

Auch bei diesen Proben wurden vor dem Drucksintern die Oberflächen-Unebenheiten durch Schleifen beseitigt. Da die Oberflächenunebenheiten bei IKTS-Proben geringfügig waren wurde die Probenoberfläche erst nach dem Auflaminieren der Ferrit-, Basis- und Opferfolien glattgeschliffen (Abb.38).

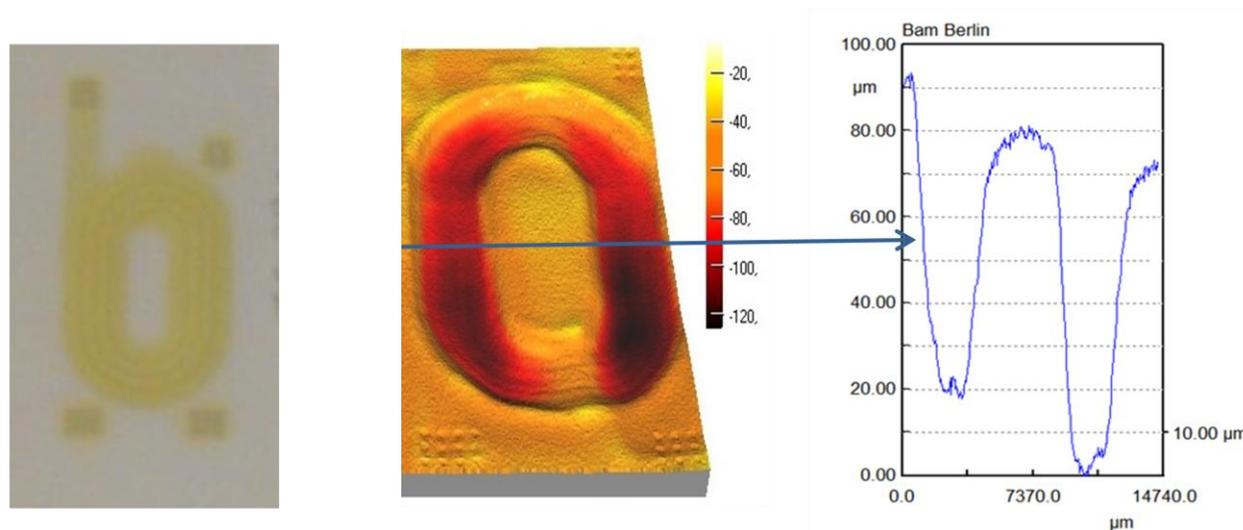


Abb. 37: Oberflächentopographie und Welligkeitsprofil eines bei IKTS hergestellten Mittelteils bestehend aus BAM[474]-Folien mit inneren Hochstromleiterbahnen

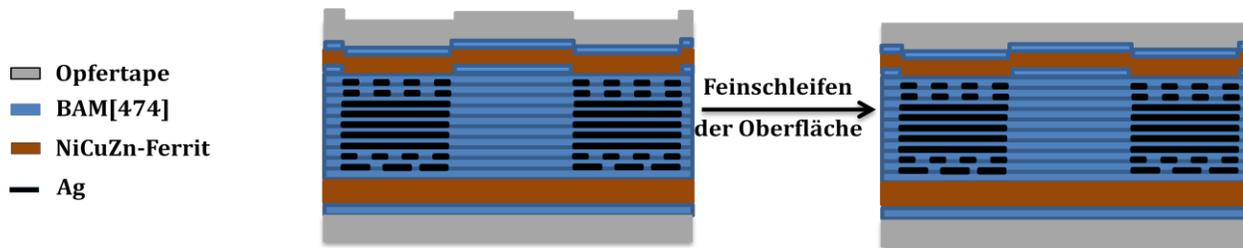


Abb. 38: Feinschleifen der Trafo-Oberfläche zur Beseitigung der Unebenheiten Im Grünzustand

Abb. 39 zeigt einen Trafo (VIA-Herstellung) nach dem Drucksintern bei 900 °C / 2 h / 1,2 MPa und das Ultraschallbild dieses Trafos. Mittels Ultraschallmikroskopie sind Risse in der Vorderseite des druckgesinterten Trafos nachweisbar. Ähnliche Risse wurden auch bei den IKTS-Transformatoren beobachtet.

Vorderseite

Rückseite

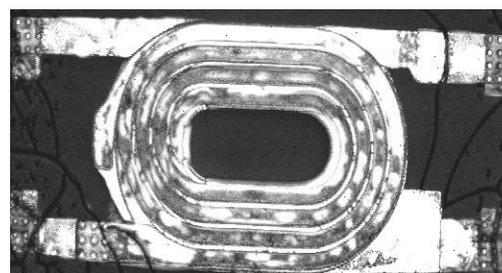
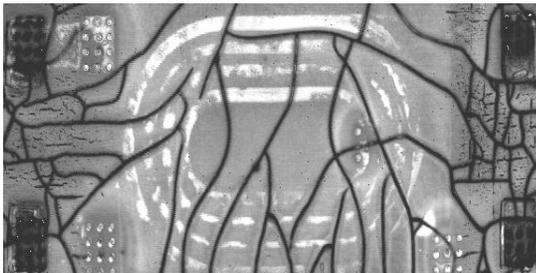
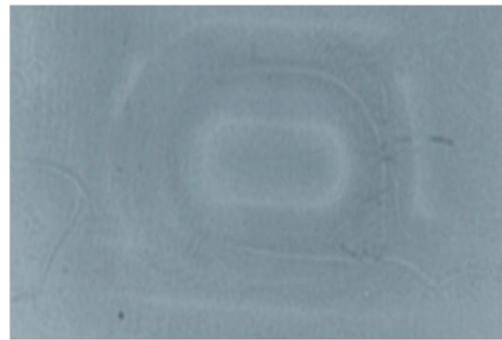


Abb. 39: Foto (oben) und Ultraschallbild (unten) des druckgesinterten Trafos

Lichtmikroskopische Gefügeuntersuchungen an den druckgesinterten Transformatoren ergaben, dass die Risse in der Ferritschicht lokalisiert sind (Abb. 40). Die Risse verlaufen immer vertikal durch die Ferritschicht, sowohl feine Risse (Abb. 40, links) als auch breite klaffende Risse (Abb. 40, rechts) wurden gefunden. Breite vertikale Risse in der Ferritschicht können die im Basistape eingebetteten Ag-Leiterbahn verformen bis hin zu Leitungsunterbrechungen und Trafo-Ausfall (Abb. 41).

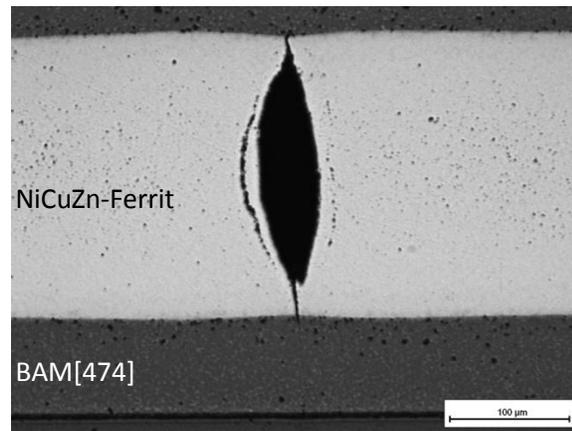
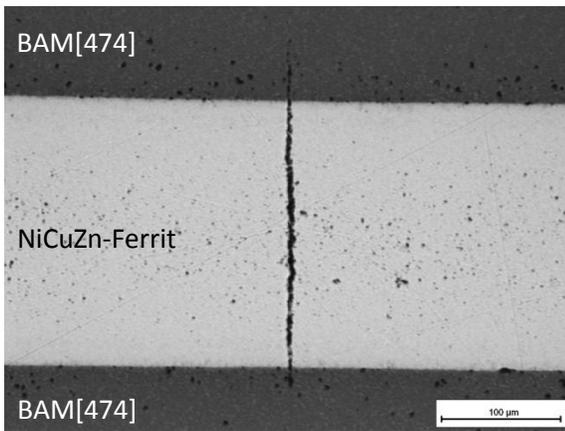


Abb. 40: Rissverlauf im druckgesinterten Transformator

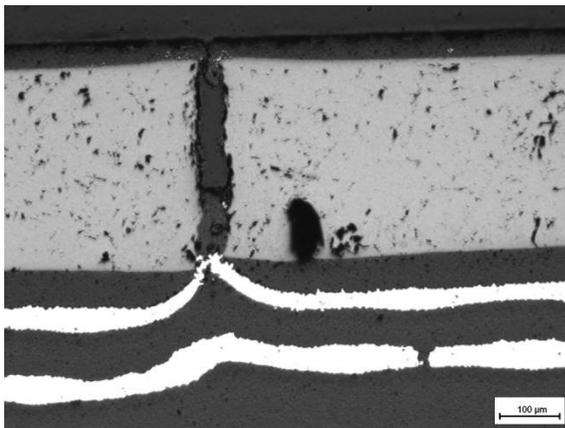


Abb. 41: Druckgesintertes Trafo mit Riss in der Ferritschicht und Leitungsunterbrechung

Grund für die Entstehung der Risse ist vermutlich eine inhomogene Verteilung des uniaxialen Druckes während des Sinterprozesses, als Folge der stark unterschiedlichen Schwindungskurven von Silber und Keramik (Abb. 42). Das Transformator-Layout verlangt, dass 8 bis 9 Hochstrom- Silberleiterbahnen (primäre und sekundäre Windungen) mit einer Gesamtdicke von 300 bis 400 µm übereinander angeordnet werden. In anderen Bereichen des Trafos ist zwischen Ober- und Unterseite dagegen keine Metallisierung vorhanden. Die Schwindung des Silbers beginnt ab ca. 400 °C und endet bei ca. 730°C. Erst oberhalb 750 °C beginnen die BAM [474]-Folie und die Ferritfolie zu schwinden. Durch die frühzeitige Schwindung der dicken Silberleiterschichten tritt zunächst eine Oberflächenabsenkung im Bereich der Trafoleiterbahnen auf. Oberhalb 750 °C verringert sich die Dickeninhomogenität aufgrund des Schwindungsbeginns der keramischen Folien. Da jedoch die Gesamtschwindung des Silbers (19,5 %) viel kleiner als die Gesamtschwindung der BAM [474]-Folie (43 %) ist, werden die ursprünglichen lokalen Dickenunterschiede überkompensiert. Das führt dazu, dass im Endstadium der Sinterung eine Oberflächenabsenkung der silberfreien Bereiche auftritt.

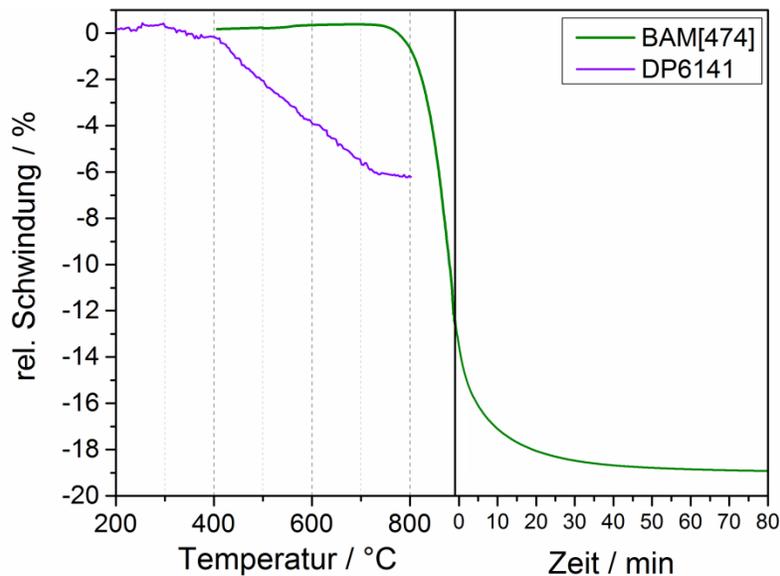


Abb. 42: Lineare Schwindung der Silberpaste (DP6141) im Vergleich zu BAM[474] (Quelle: IKTS-Dresden)

Die obengenannten lokalen Dickenschwankungen am Transformator führen zu einer inhomogenen Druckverteilung während des Drucksinterns. Im Bereich der Oberflächenabsenkungen wird kein Druck auf die Trafo-Oberfläche übertragen. Lokal entstehen dort in den Keramiksichten laterale Zugspannungen. Insbesondere in der Ferritschicht werden aufgrund des Fehlens einer Flüssigphase diese Zugspannungen nicht durch Fließen in lateraler Richtung ausgeglichen. Lokale laterale Schwindung in der Ferritschicht führt zur Rissbildung.

Zahlreiche Optimierungsversuche mit veränderten Drucksinterbedingungen waren nicht erfolgreich. Um rissfreie Transformatoren mit integrierten Hochstromleiterbahnen durch das Drucksintern herstellen zu können, muss die Sinterschwindungskurve des Silbers zu höheren Temperaturen verschoben werden. Aufgrund der geringen Schmelztemperatur von Silber (962°C) ist eine gute Anpassung der Schwindungskurve von Silberpaste an die der keramischen Folien jedoch nicht möglich. Begrenzte Potenziale für eine verbesserte Anpassung der Schwindungskurven bestehen z. B. durch Änderung der Korngröße des Ag-Ausgangspulvers. Denkbar wäre auch die Entwicklung von Ferritfolien mit noch geringeren Sintertemperaturen.

Trotz vorhandener Risse waren einige Transformatoren (mit Ferritschichtdicke von ca. 300 µm) nach dem Drucksintern funktionsfähig. In Tabelle 6 sind die elektrischen und die magnetischen Kennwerte der druckgesinterten Transformatoren bestehend aus BAM[474]-Basis, NiCuZn-Ferrit (ALF04) und Ag-Hochstromleiterbahnen mit den Kennwerten der geklebten Transformatoren (angeklebte Ferritplatte) bestehend aus DP951-Basis, MnZn- bzw. NiCuZn-Ferriten und Ag-Hochstromleiterbahnen verglichen. Die Kennwerte der druckgesinterten Transformatoren sind ähnlich denen der geklebten Transformatoren und erfüllen damit die Voraussetzung für den Einsatz in der Treiberschaltung. Allerdings ist Herstellung der Transformatoren mittels Drucksintern wegen der Rissbildung nicht

zuverlässig. Außerdem sind die Risse mit Erhöhung der Ferritschichtdicken in Transformatoren (neues Layout) noch stärker aufgetreten. Deswegen wurde das Drucksintern nicht mehr zur Herstellung der Transformatoren eingesetzt.

Tabelle 6: Elektrische und magnetische Kennwerte von druckgesinterten und geklebten Transformatoren.

Primär- zu Sekundärwindung	Basis	Ferrit	Co-Sintern	Wirkungs grad (%)	R _{Primär} (Ω)	R _{sekundär} (Ω)	L _{Primär} (μH)	L _{Sekundär} (μH)
15:5	DP951	MnZn N27	Nein (geklebt)	92	0,28	0,04	15,6	1,9
15:5	DP951	NiCuZn ESL	Nein (geklebt)	90	0,28	0,037	11	1,4
15:5 Mittelteil: IKTS	BAM[474]	NiCuZn ALF04	Drucksintern	87,9	0,37	0,048	11,9	1,4
16:5 Mittelteil: VIA	BAM[474]	NiCuZn ALF04	Drucksintern	88,7	0,33	0,041	19,2	2

Druckloses Sintern

Im Abschnitt 2.1.2 wurde über die Möglichkeit zur Reduzierung der Silberdiffusion und des Sinterverzugs durch das drucklose Sintern unter sauerstoffarmer Atmosphäre berichtet. Eine Sinterung unter Sauerstoffpartialdrücken von weniger als 10^{-2} atm führt zur partiellen Zersetzung des NiCuZn-Ferrits (ALF03, Bi-frei) und zur Reduzierung der Permeabilität. Da die Permeabilitätswerte jedoch oberhalb des Zielwerts von 200 lagen, wurde das drucklose Sintern unter reduziertem Sauerstoffpartialdruck zur Herstellung von Transformatoren verwendet.

Zuerst wurden Kombinationslaminare hergestellt, die bezüglich Dicke und Anordnung von Ferrit - und Basisfolien dem Demonstrator-Konzept im ALFERMO-Projekt entsprechen, jedoch nur 5 Lagen Standard-Silberbahnen besitzen. Abb. 43 zeigt die bei 915 °C unter verschiedenen Sauerstoffpartialdrücken gesinterten Laminare. Bei der Probe 1 (gesintert unter Stickstoff) ist eine leichte Krümmung des Laminats zu beobachten. Zudem ist eine starke Verfärbung der Probe aufgetreten, und an den Rändern hat sich die Basisfolie von der Ferritfolie gelöst. Bei Probe 4 (gesintert unter Luft) wurde eine starke Krümmung des Laminats beobachtet. Außerdem traten starke Delaminationen an den Silberleiterbahnen auf (Abb. 44).

Die Proben 2 und 3 weisen weder Krümmung und Verfärbung noch Delaminationen an den Leiterbahnen auf. Deswegen wurde für die drucklose Sinterung der Transformatoren der Sauerstoffpartialdruck zwischen 10^{-3} und 10^{-2} eingestellt.

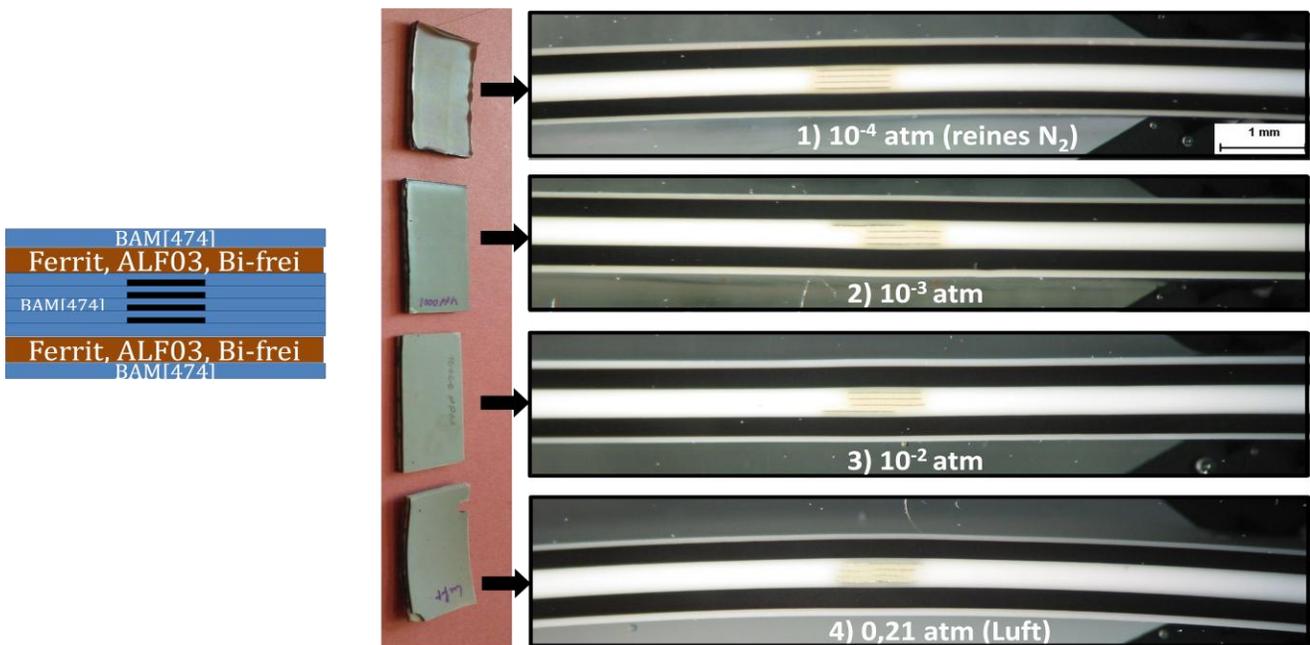


Abb. 43: Kombinationslaminat aus ALF03-Ferritfolien und BAM[474]-Folien mit 5 inneren Silberleiterbahnlagen nach dem Sinter unter verschiedenen Sauerstoffpartialdrücken.

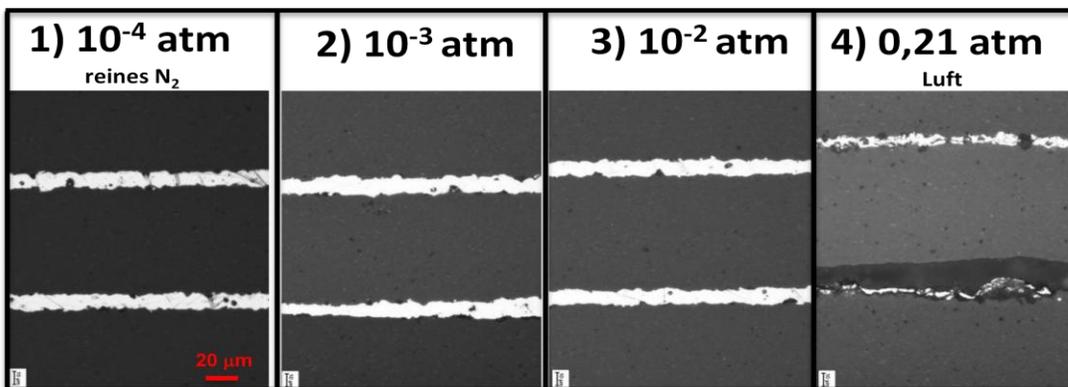


Abb. 44: Silberleiterbahnen in Kombinationslaminaten nach dem Sintern unter verschiedenen Sauerstoffpartialdrücken.

Die ersten Transformatoren wurden mit Standardsilberbahnen (Dicke: ca. 10 µm) und in grünem Zustand 380 µm dicken Ferritlagen aufgebaut (VIA-electronic) und drucklos gesintert (BAM). Abb. 45 zeigt die bei 915 °C unter Sauerstoffpartialdrücken zwischen 10^{-3} und 10^{-2} gesinterten Transformatoren. Beim Sintern unter 2×10^{-3} bzw. 5×10^{-3} atm wurde keine Rissbildung festgestellt. Die ersten Risse wurden bei Sauerstoffpartialdrücken von 10^{-2} atm beobachtet. Für weitere Sinterversuche zur Herstellung der Transformatoren wurde daher ein Sauerstoffpartialdruck von 2×10^{-3} atm eingestellt. Als optimale Aufheizrate wurde 4 K/min bestimmt, da langsamere Aufheizraten zur Verwölbung der Transformatoren führen.

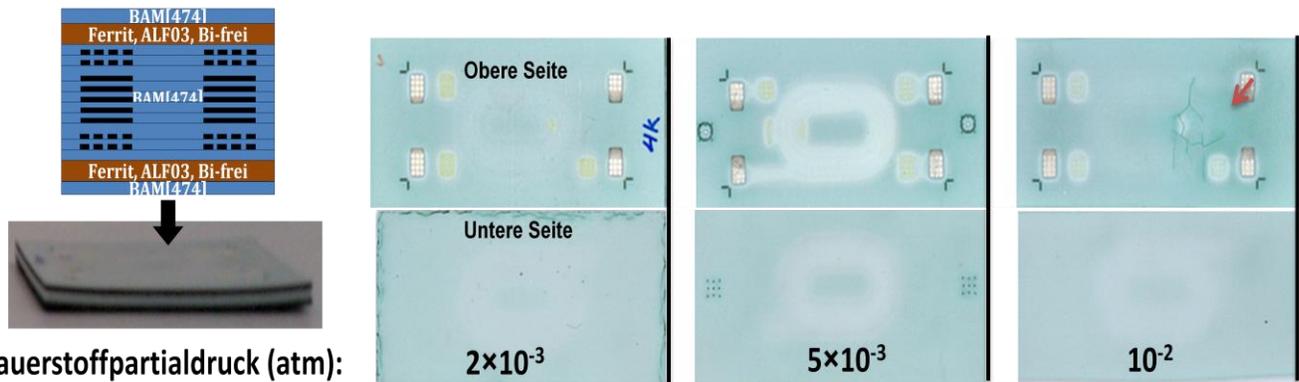


Abb. 45: Transformatoren aus ALF03-Ferritfolien und BAM[474]-Folien und Standardsilberleiterbahnen nach dem Sinter unter 3 verschiedenen Sauerstoffpartialdrücken (Aufheizrate: 4 K/min).

Abb. 46 zeigt Ultraschallbilder von Ober- und Unterseite eines bei 915 °C / 2 h gesinterten Transformators. Mittels Ultraschallmikroskopie konnte keine Rissbildung im Transformator nachgewiesen werden. Die Querschliffbilder dieses Transformators in Abb. 47 zeigen keine Delamination in Silberleiterbahnen bzw. Ferrit/Basis-Grenzflächen.

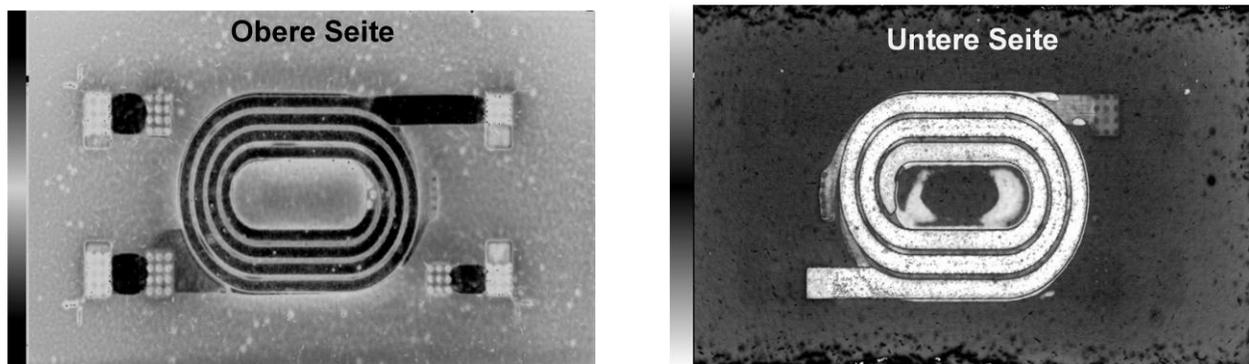


Abb. 46 Ultraschallbilder eines gesinterten Transformators (Aufheizrate: 4K/min, Sauerstoffpartialdruck: 2×10^{-3} atm).

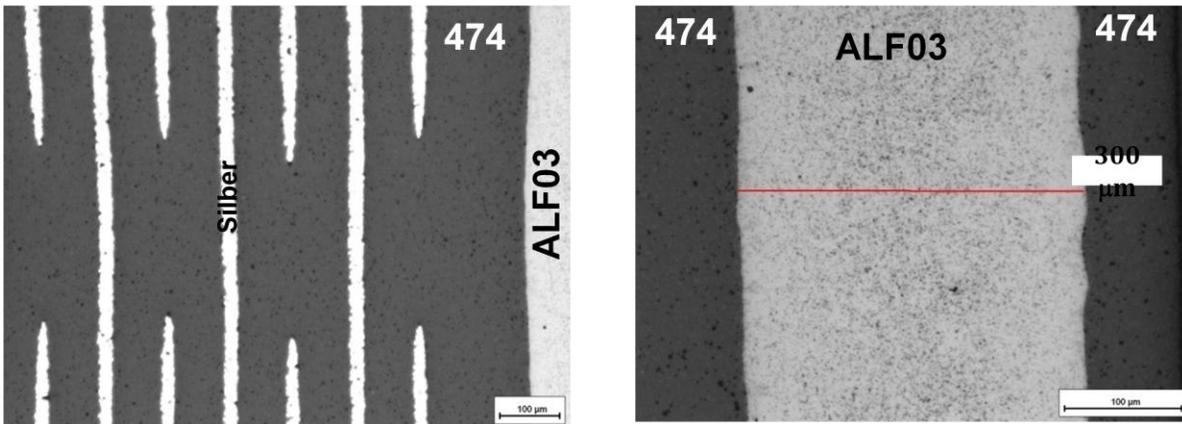


Abb. 47: Gefügebilder des Transformators mit eingebetteten Standardsilberleiterbahnen (links) und ALF03-Ferritschicht (rechts) zwischen in BAM[474]-Folien.

Weiterhin wurden Transformatoren mit Hochstromsilberbahnen (IKTS-Probe, Leiterbahndicke: ca. 50 µm) aufgebaut und drucklos gesintert. Die Dicken der Ferritlagen in grünem und in gesintertem Zustand waren jeweils ca. 380 und 300 µm. Die Aufheizrate und der Sauerstoffpartialdruck beim Sintern waren 4 K/min und 2×10^{-3} atm. Abb. 48 zeigt den gesinterten Transformator und die dazugehörige Gefügebilder. Es wurden keine Gefügefeler wie Delaminationen oder Risse in Hochstromsilberbahnen bzw. Ferritlagen beobachtet. Der Ferrit wurde während des Co-Sinterns sehr gut verdichtet (siehe Abb. 48, Ferritgefüge). Die gute Verdichtung des co-gesinterten Ferrits ist für das Erreichen der hohen Permeabilität notwendig.

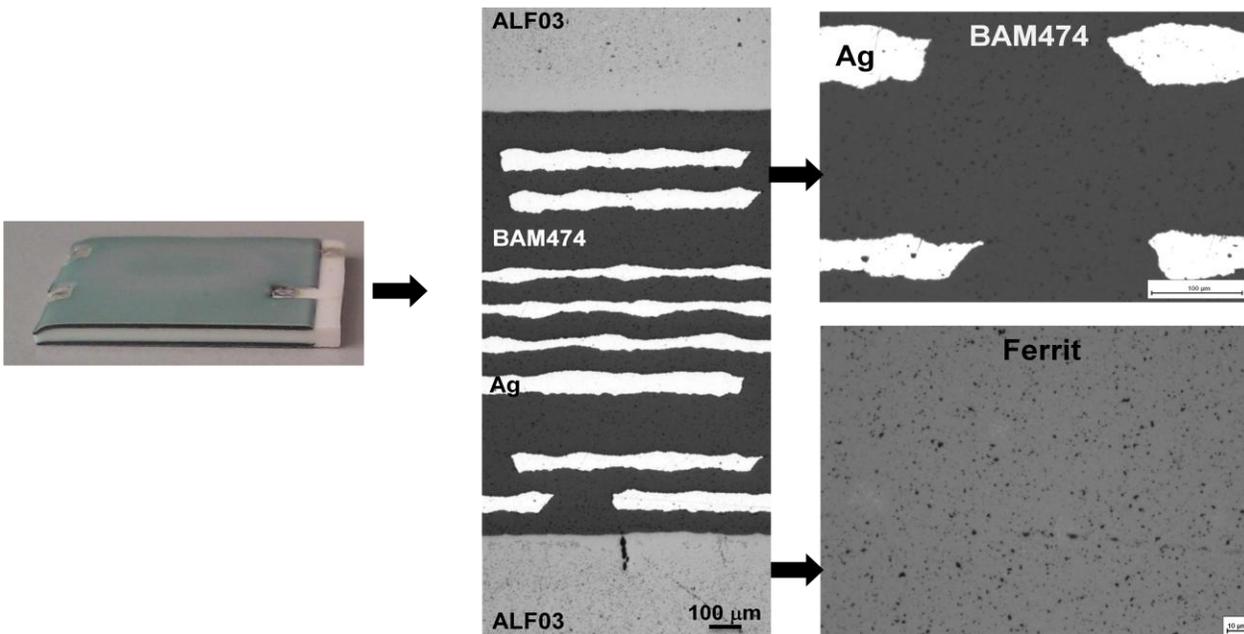


Abb. 48: Drucklos gesintertes Transformator mit Hochstromleiterbahnen (links) sowie Gefügebilder der Gesamtstruktur (Mitte), der dielektrischen Schicht mit Ag-Leiterbahnen (rechts oben) und der Ferritlage (rechts unten) .

Im nächsten Schritt wurden – gemäß den Forderungen an das finale Layout - dickere Ferritlagen in den Transformator mit Hochstromleiterbahnen eingefügt. Bereits bei einer Erhöhung der Ferritschichtdicke auf ca. 600 μm (im grünen Zustand) wurden erste Risse im Transformator beobachtet (Abb. 49). Eine weitere Erhöhung der Ferritschichtdicke verstärkt die Rissbildung.



Abb. 49: Drucklos gesinterter Transformator mit Hochstromleiterbahnen und jeweils 600 μm dicken Ferritschichten auf Ober- und Unterseite

Es wird vermutet, dass - wie beim Drucksintern - vor allem die stark unterschiedlichen Schwindungen von Ag-Hochstromleiterbahn einerseits und keramischen Folien andererseits für die Rissbildung verantwortlich sind (Abb. 42). Die dadurch verursachten Spannungen führen bevorzugt in den nahezu glasfreien Ferritschichten, die diese Spannungen nicht durch viskoses Fließen abbauen können, zu Rissen. Von Bedeutung sind möglicherweise auch verbliebene kleinere Unterschiede im Schwindungsverhalten von Basis- und Ferritfolien, besonders im Anfangsstadium des Sinterns (Abb. 17). Diese verursachen beim drucklosen Sintern eine gegenüber der Schwindung in z-Richtung leicht reduzierte Schwindung in lateraler Richtung (Constrained-Effekt). Weitere Untersuchungen zu den Mechanismen der Rissbildung in Multimaterial-Laminaten und insbesondere zum Zusammenhang zwischen Schichtdicke und Rissbildung sind geplant. Mit dem bisher vorhandenen Know-how können co-gesinterte Transformatoren nur mit Ferritlagen bis zu einer Schichtdicke von 400 μm rissfrei gesintert werden.

Da co-gesinterte Transformatoren mit den geforderten 1 mm dicken Ferritschichten nicht hergestellt werden konnten, wurde eine veränderte Technologie eingesetzt. Dazu wurden Ferritplatten vorab separat gesintert und dann in die dafür vorgesehenen Kavitäten im Mittelteil aus Basisfolien eingesetzt. Anschließend wurden die Decklagen uniaxial auflaminiert und der Transformator gesintert. Abb. 50 zeigt ein computertomographisches Querschnittbild des derart bei Siemens hergestellten Transformators. Dieser Transformator wurde im Demonstrator eingesetzt und erfolgreich getestet.



Abb. 50: Computertomographische Schnitt durch den Transformator mit vorgesinterten Ferritplatten in inneren Kavitäten.

2.2 Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse

Die erzielten Ergebnisse ermöglichen prinzipiell die Herstellung von Multilayer-Transformatoren in LTCC-Technologie. Darüber hinaus sind die gewonnenen Erkenntnisse über die Sinterung von Multimaterial-Schichtverbunden eine wichtige Grundlage für die Entwicklung von LTCC-Modulen bzw. Bauteilen, in die andere Funktionskeramiken (z. B. Hochdielektrika, Piezoelektrika, Varistoren, Ferroelektrika) integriert werden müssen. Zu diesem Thema sind weitere F+E-Vorhaben im Fachbereich Technische Keramik geplant.

Über Ergebnisse des Vorhabens wurde bereits in mehreren Veröffentlichungen und Vorträgen berichtet (siehe Punkt 2.4). In Arbeit befinden sich zwei weitere Publikationen in renommierten Fachzeitschriften

2.3 Während der Durchführung des Vorhabens dem Zuwendungsempfänger bekannt gewordener Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Generell bestätigen eine Vielzahl von neuen Veröffentlichungen zur Thematik der Miniaturisierung und Funktionserweiterung von keramischen Multilayer-Schaltungsträgern die Aktualität der Projektthematik. Während des Projektes wurden jedoch zum konkreten Projektziel der Integration LTCC-kompatibler ferritischer Schichten zur Herstellung von Multilayer Transformatoren keine Fortschritte bei anderen Stellen bekannt. Die erreichten Projektergebnisse definieren den Stand der Technik.

2.4 Erfolgte oder geplante Veröffentlichungen der Ergebnisse

Zeitschriftenartikel und Proceedings:

1. Naghib-zadeh H., Karmazin R., Töpfer J., Rabe T., co-firing of LTCC modules with embedded ferrite layers, Proceedings of 18th Microelectronics and Packaging Conference (EMPC), 12-15 Sep.2011, Brighton, UK.
2. Rabe T., Naghib-zadeh H., Glitzky C., Töpfer J., Integration of Ni-Cu-Zn Ferrite in Low Temperature Co-fired Ceramics (LTCC) Modules, Int. J. Appl. Ceram. Tech., 9[1], 18-28, 2012
3. Brandt B., Naghib zadeh H., Rabe T., Improved Co-Firing of Ferrite and Dielectric Tape Based on Master Sintering Curve Predictions and Shrinkage Mismatch Calculations, J. Am. Ceram. Soc., 96[3], 726-730, 2013
4. Naghib-zadeh H., Rabe T., Karmazin R., Integration of MnZn-ferrite tapes in LTCC multilayer J. Electroceramic, (2013) 31:88-95

Vorträge

1. Naghib-zadeh H., Karmazin R., Töpfer J., Rabe T., co-firing of LTCC modules with embedded ferrite layers, Proceedings of 18th Microelectronics and Packaging Conference (EMPC), 12-15 Sep.2011, Brighton, UK
2. Naghib-zadeh H., Rabe T., Pressure-Assisted Sintering of Multilayer Transformer Using LTCC-Compatible NiCuZn-Ferrite and Silver Conductor, Proceedings of the 8th International Conference and Exhibition on the Ceramic Interconnect and Ceramic Microsystems Technologies, 16-19 April.2012, Erfurt, Germany
3. Naghib-zadeh H., Rabe T., Toepfer J., Barth S., Characterization of NiCuZn-Ferrite Layer co-Fired with LTCC Dielectric Tapes, 13th European Ceramic Society Conference, 23-27 Juni.2013, Limoges, France

Poster

Naghib-zadeh H., Brandt B., Rabe T., Töpfer J., Anwendung der Master-Sinter-Kurve bei der Co-Sinterung von Werkstoffkombinationen, Jahrestagung der Deutschen Keramischen Gesellschaft, 05-07.03.2012, Nürnberg, Deutschland