

Preparation of Screen Printable Conductive MoSi₂ Thick Films for Ceramic Sheet Heater

Bae-Yeon Kim[†], Dong-Bin Han*, and Cheol-Weon Jeong*

Department of Materials Science and Engineering, University of Incheon, Incheon 406-772, Korea

*Winnertechnology, Pyeongtaek 451-881, Korea

(Received July 13, 2010; Revised July 19, 2010; Accepted July 20, 2010)

Screen Printable MoSi₂ 도전성 Paste를 이용한 세라믹 면상 발열체 제조

김배연[†] · 한동빈* · 정철원*

인천대학교 신소재공학과

*(주)위너테크놀로지

(2010년 7월 13일 접수 ; 2010년 7월 19일 수정 ; 2010년 7월 20일 승인)

ABSTRACT

Screen printable MoSi₂ paste and its ceramic sheet heater were investigated. MoSi₂ powder without Mo₅Si₃ second phase, which causes so-called pest phenomena, was synthesized by SHS technique. Over glaze was also developed for preventing pest phenomenon. The maximum temperature of MoSi₂ ceramic heater was over 500°C. After several heat up and cooling cycle, the MoSi₂ heater reveals pest phenomenon. Conductive MoSi₂ paste could be used in electronic ceramics, i.e., MLCC, LTCC, HTCC, and etc.

Key words : MoSi₂, Sheet heater, Ceramic, Paste, SHS

1. 서 론

1.1. MoSi₂ 면상 발열체

금속/비금속 분말을 사용하여 스크린 프린팅이 가능한 paste를 이용한 후막 면상발열체 제조기술은 국내의 수십여 개의 기업이 보유하고 있다. 이런 면상발열체는 200°C 이하의 저온 영역에서 사용 가능한 흑연 발열체가 있으며, 300-400°C 내외의 중저온 발열 온도를 갖는 Ag 및 Ag-Pd 계 및 RuO₂계의 발열체 그리고 700°C~800°C 부근의 고온의 가열 온도를 갖는 W계, Mo-Mn계 발열체가 있다.

저온의 면상 발열체는 기판으로 PET나 polyimide/oxide 층을 입힌 Al을 사용하고 있으며 중고온영역의 경우에는 세라믹 기판을 사용하고 있다. 이런 세라믹 기판을 사용하는 면상발열체는 기존 금속 발열체에 비하여 가볍고 별도의 열전달용 금속판을 부착할 필요가 없어 가열부분에 바로 적용할 수 있으며, 코일형 전기발열체보다 전류밀도를 높일 수 있어 소비전력을 줄일 수 있는 장점이 있다.

면상발열체로서 중·고온영역을 내는 제품은 P사의 무선 커피포트 등의 가전제품에 일부 적용되고 있지만 아직 기술의 완성도가 낮으며, HTCC green sheet를 사용하

여 W 발열체를 제조하는 방식이 적용되고 있다. 이런 방식은 미국의 Watlow사 및 ELS사 등에서 앞선 기술을 보유하고 있다.

중·고온용 면상 발열체의 경우에는 각종 가전용 전열 제품이나 최근 보급이 확산되고 있는 레이저 프린터 등의 금속 가열 장치 등에 적용이 가능하나 완벽하게 검증된 기술이 없는 형편이다.

MoSi₂는 밀도가 6.3 g/cm³로 Ag/Pd에 비하여 낮고, 녹는 점이 2,020°C 부근으로 높으며, 고온에서 산화저항성과 탄성계수가 큰 장점을 지니고 있다.¹⁾ 1956년에 스웨덴의 Kanthal사가 전기로용 발열체로 상용화하여 대기 중에서 1,800°C의 발열 온도를 내는 초고온 발열체로서 널리 사용되어 왔다. 이 MoSi₂ 발열체는 금속 승온과 냉각이 가능하고, 전압에 따른 발열 온도가 일정하여 온도 조절이 쉬울 뿐만 아니라 전기 저항의 변화가 없어 개별 보수가 가능한 장점을 갖고 있다. 그러나 이 MoSi₂ 발열체를 스크린 프린팅이 가능한 페이스트로의 제조에 대하여서는 시도된 적은 없다. 만약 이 MoSi₂ 발열체를 인쇄가 가능하도록 만들 수 있다면 금속 승온 및 냉각이 가능한 중·저온용 발열체를 만들 수 있을 것으로 판단된다.

또한 기존의 MoSi₂ 발열체는 저항이 낮아 6~7V의 저전압과 20~30A의 대전류 방식의 전기를 사용하여야 온도 조절이 용이하여 SCR과 전압 강하 트랜스포머를 사

[†]Corresponding author : Bae-Yeon Kim

E-mail : bykim@incheon.ac.kr

Tel : +82-32-835-8273 Fax : +82-32-763-4876

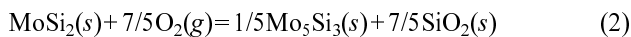
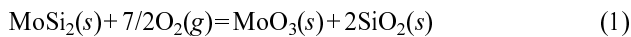
용하여야 하는 단점이 있었지만, 페이스트로 인쇄된 면상 발열체로 제조할 경우에 회로 전체의 전기 저항 값이 커지기 때문에 220 V 일반 전원에서 바로 조절이 가능한 장점도 가질 수 있다.

그렇지만 MoSi₂는 대기 중에서 고온 영역에서는 안정하나 저온 영역에서는 열화현상을 일으키는 pest 현상이 존재하기 때문에 이를 극복하는 것이 중저온용 발열체 페이스트 개발의 핵심이 될 것이다. 이를 위하여 본 연구에서는 고순도의 MoSi₂ 분말의 합성과 저온 열화현상을 극복할 수 있는 over glaze를 개발하고자 하였다.

1.2. MoSi₂ pest 현상과 페이스트 제조

MoSi₂와 같은 붕화물, 규화물 등의 금속간화합물은 저온과 고온에서는 산화저항성이 좋지만, 중간 온도 영역에서 열화 현상을 가지는 물질이 많다. 이런 현상을 통틀어 소위 pest 현상^{2,3)}이라고 부르고 있다. 이 pest 현상은 1955년에 Fitzer에 의하여 최초로 알려졌고,³⁾ 원래 은색에 가까운 밝은 회색의 MoSi₂가 검게 변하기 때문에 pest 현상이라 불리고 있다. 이것은 중온 영역에서의 산화가 그 원인으로 알려져 있다.

MoSi₂의 경우에는 산소와의 반응이 여러 방식으로 진행되지만, 다음의 두 화학식을 따르는 반응이 지배적인 것으로 알려지고 있다.^{3,4)}



MoSi₂ 발열체는 승온 시에 반응식 (1)이 발열체의 표면에서 우선적으로 일어나며, 이렇게 생성된 MoO₃는 휘발성이 있어 날아가게 된다.⁴⁾ 이로 인하여 MoSi₂ 발열체 표면에는 SiO₂ 층만이 남아 있게 되고, 이 표면 층은 MoSi₂ 발열체의 산화를 방지하는 barrier로 작용하게 된다. 그렇지만, 산화 피막과 MoSi₂ 발열체 사이에서 반응식 (2)에 의한 반응이 서서히 진행되면서 발열체의 표면이 검게 변하게 되나, 산화피막과 MoSi₂ 계면으로의 산소 확산이 그다지 빠르지 않기 때문에 저온 영역과 고온 영역에서 산화 저항성을 나타내게 된다.

MoSi₂ 발열체의 표면 산화층은 550°C 이상에서 생성되는 것으로 알려져 있고, 따라서 이런 산화층이 생기기 전인 450°C~550°C 부근에서는 (2) 반응이 우선하여 검은 색의 Mo₅Si₃가 생성된다. 이 Mo₅Si₃는 밀도가 4.5 g/cm³로 MoSi₂의 밀도 6.3 g/cm³에 비하여 30% 가량 낮기 때문에 조직 내부에서 팽창하면서 crack을 발생시키고, crack을 통하여 산소의 이동이 쉽게 일어나면서 pest 현상을 촉진시킨다고 보고되고 있다.^{1,4-8)}

또한 이런 pest 현상은 공정변수로 인한 microcrack, 기공률 등의 미세조직의 결함에 의해 좌우된다고 알려져 있

다.¹⁾ 실제로 다공성 MoSi₂에서는 초기 유도기를 지나서 산화 반응이 가속되지만, 기공이 없는 MoSi₂의 경우에는 산화 반응이 가속되는 현상이 크게 지연된다고 보고⁶⁾하고 있다.

뿐만 아니라 단결정 MoSi₂와 다결정 MoSi₂의 산화를 연구한 보고⁹⁾에 의하면 crack이 생성되지 않은 시편의 경우에 pest 현상이 거의 발견되지 않았으며, 다결정 MoSi₂보다는 단결정 MoSi₂가 pest 현상에 대한 저항성이 훨씬 크다고 결론짓고 있다.

실제 MoSi₂가 발열체로 사용되는 경우에는 발열체의 최초 승온 시 900°C 부근부터 반응식 (1)에 의한 반응생성물 중 MoO₃는 고온 증발에 의하여 날아가게 되면서 표면에 SiO₂ 산화 피막이 형성되며, 이후에는 이 산화 피막이 고온 뿐 아니라 저온에서도 산소의 확산을 방해하는 산화 방지막으로 작용하여 pest 현상을 저지하게 된다.¹⁰⁾

이상의 사실을 종합해 보면 저온에서의 pest 현상을 방지할 수 있는 MoSi₂가 되려면 pest 현상을 촉진한다고 알려져 있는 Mo₅Si₃가 없는 MoSi₂ 분말을 사용하여야 하며, 가급적 기공이나 결함이 적은 형태로 페이스트를 인쇄 후 열처리를 하여야 하며, 산화 피막을 형성시켜야 한다는 것을 알 수 있다.

그렇지만, 일부 연구진¹¹⁾들의 결과에서 Mo₅Si₃가 2차상으로 합성되며, 고체 상태의 기존 MoSi₂ 발열체에 비하여 훨씬 미세한 원료 분말을 사용해야 하는 screen printing용 페이스트의 경우에 분말의 비표면적이 상대적으로 넓어 pest 현상이 더 잘 일어날 것으로 예상이 된다. 또, 대기 중에서 900°C 이상으로 가열하기도 어렵기 때문에 표면에 SiO₂ 산화 피막을 형성시키기도 어렵다.

따라서 본 연구에서는 이런 문제점을 극복하기 위하여 2차상인 Mo₅Si₃의 형성이 적은 고순도의 MoSi₂ 분말을 합성하고자 하였으며, 표면에 SiO₂ 산화 피막이 형성되기 어려운 여건을 감안하여 표면 산화를 방지하고 전기 절연성을 부여할 수 있는 over glaze도 같이 개발하고자 하였다.

2. 실험방법

2.1. 출발 물질

본 연구에 사용된 출발물질은 99.95% Mo 분말(HMo11, Hongbo, China)과 및 99.99% Si 괴상 원료(Si-9999, Longfast Silicon, China)를 사용하였다.

Screen printable한 paste 제조시 바인더는 EC(DOW 社)를 주로 하였으며 용제는 Terpeneol (Nippon Terpin 社), 부틸카비톨아세테이트 등을 사용하였고, 프탈레이트(DBP 등) 가소제 및 분산제 등을 사용하였다.

2.2. 실험방법

Mo와 Si는 원료는 정량비로 혼합한 다음 ball mill에서 혼합 분쇄하여 평균크기 2~3 μm로 하였다. 각각의 H₂ 분

위기 그리고 상온 및 550°C 예열 조건에서 SHS(Self-propagating High-temperature Synthesis)법으로 합성하였으며, 합성이 끝난 합성체는 다시 분쇄하여 분쇄 시간에 따른 입도 변화와 열분석 및 결정상을 DTA/TG(STA1500, PolymerLab.)와 Powder X-ray Diffractometer로 관찰하였다.

합성이 끝난 시료 분말을 계면활성제와 azeotropic vehicle에 분산 혼합한 다음 PL mixer에서 혼합하고, 재질이 Si₃N₄인 3-roll mill을 통하여 혼합, 분산시켜 screen printable 페이스트를 제조하였다.

제조한 페이스트는 99% 이상의 순도를 갖는 alumina 기판과 AlN 기판에 임의의 형태의 회로로 스크린 프린팅을 한 다음 1300°C 수소분위기 환원로에서 소결하고 Silicate계 glaze로 상부 인쇄하고 800°C에서 20분간 열처리하여 보호 피막을 형성한 면상 발열체 시편을 제작하였다. 제작된 면상 발열체에 전기를 인가하여 표면 상태를 관찰하였으며, 발열온도 및 전류 저항 변화등의 전기적 특성을 알아 보았다.

3. 결과 및 고찰

3.1. MoSi₂ 합성

본 실험에 사용한 Mo 및 Si 원료 분말과 합성된 MoSi₂의 열분석 결과가 Fig. 1에 나타나 있다.

Mo 분말의 경우에 400°C 부근에서 급격한 발열이 시작됨과 더불어 49.76%의 급격한 중량 증가가 일어나고 있다. 이것은 Mo의 산화에 의한 것으로 MoO₃가 생성되는 것으로 판단된다. 이는 Mo의 원자량 95.9가 산화되면 원자량 143.9 g/mol로 바뀌면서 일어나는 중량 증가 50%와 일치하는 값으로 볼 수 있다. MoO₃는 785°C에서 녹는점을 나타내며, 그래프 상에서 흡열 반응이 나타나고 있음을 알 수 있다.

또, 900°C가 넘어서면 고온에서 휘발성을 갖는 MoO₃가 휘발에 의하여 중량 감소가 나타나고 있고, 1,000°C 부근이 되면 거의 모든 성분이 휘발하여 잔존물이 거의 남아 있지 않는 상태가 되었다.

Fig. 1의 그래프 (b)는 Si의 온도에 따른 분석 결과인데, 900°C 부근에서부터 약간의 중량 증가가 일어나는 것을 알 수 있다. 이는 Si 표면에서의 산화 반응에 의하여 일어나는 것으로 해석할 수 있다.

Fig. 1의 (c)는 본 실험에서 합성한 MoSi₂ 분말의 열분석 결과이다. 이 그래프는 앞서의 Mo 열분석 결과와 비슷하게 400°C 부근에서 발열반응을 동반한 급격한 중량 증가를 나타내고 있다. 이때의 중량 증가는 33.20%인데 이는 MoSi₂+7/2O₂→MoO₃+2SiO₂로 반응하면서 일어나는 중량 증가분인 56(7/2O₂)÷152.1(MoSi₂)=36.8%에 해당되는 것으로 해석된다. 즉, Si는 단독으로 존재하는 경우에는 900°C 부근에서 표면 산화가 시작되나, MoSi₂ 화합

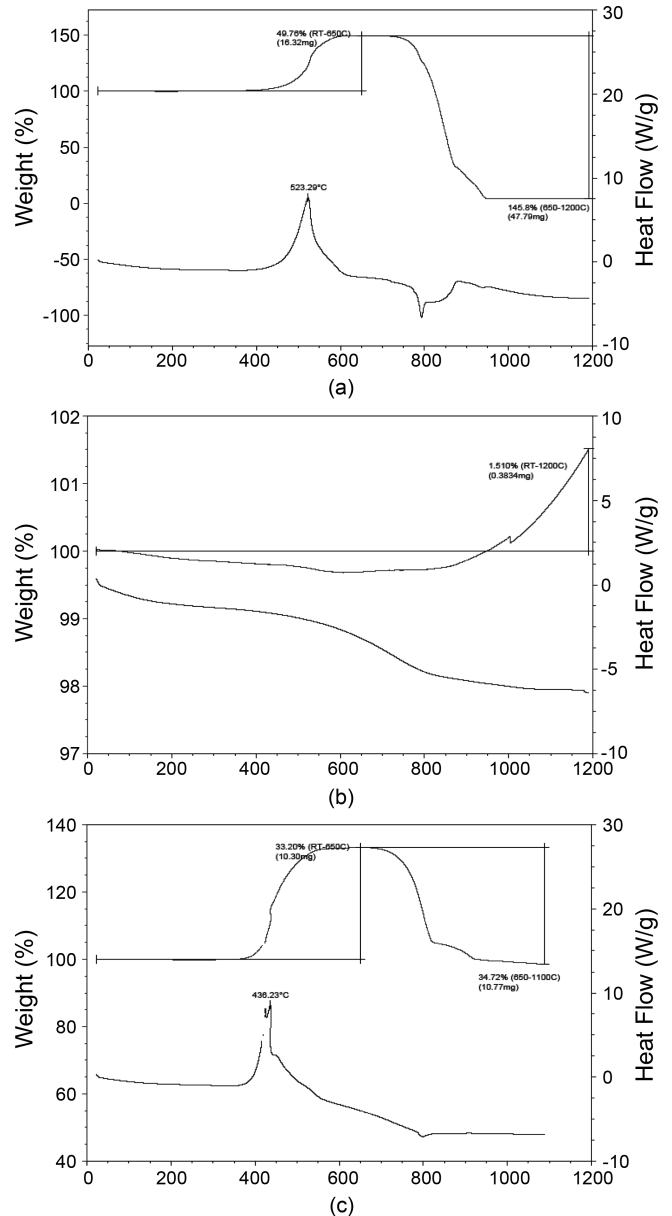


Fig. 1. Result of DTA/TGA, (a) Mo, (b) Si, and (c) synthesized MoSi₂. Note that Mo powder reacts about 450°C with weight gain, then near 800°C, due to evaporation, weight loss occurs. And Si gains weight from 900°C, with its oxidation, and synthesized MoSi₂ gains weight near 450°C, then decompose around 800°C, but within the initial weight.

물로 존재하는 경우에 Mo의 산화와 더불어 진행되는 분해 반응 속에서 산화가 진행되는 것으로 판단된다. 이후의 중량 감소는 중량 증가분과 비슷한 수준으로 일어남을 알 수 있고, MoO₃의 녹는점인 785°C 부근에서 흡열 피크가 나타나고 있다. 그런데 이후의 중량 감소는 Mo 단독의 경우에 비해서 좀 더 일찍 시작되고, 중량 감소도

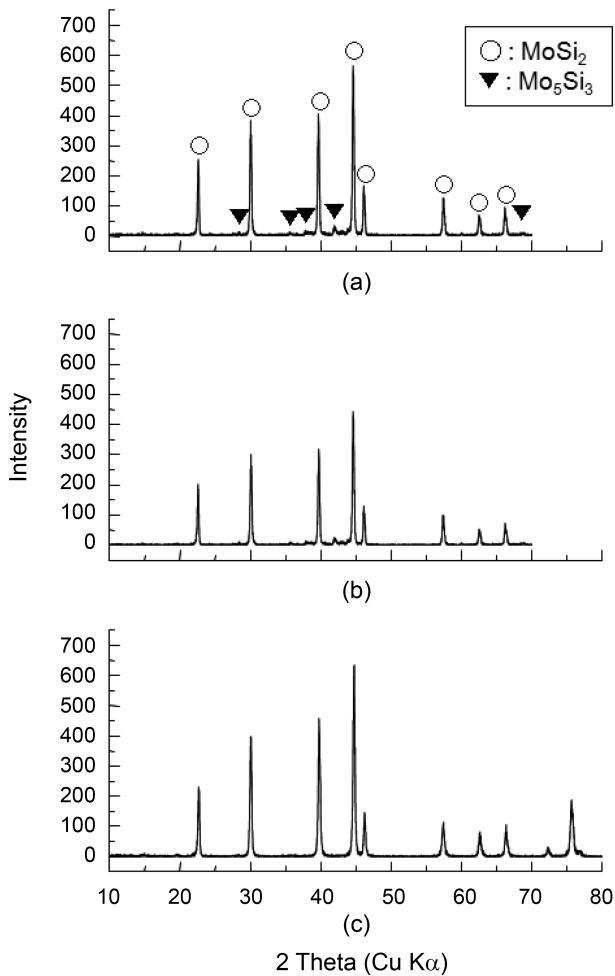


Fig. 2. Powder X-ray diffraction pattern of synthesized MoSi_2 powder. (a) without preheating at ambient atmosphere, (b) purging Ar but no preheating, and (c) with both preheating and prepurging Ar. Note that the second phase Mo_5Si_3 disappeared after preheating and prepurging H_2 gas.

900°C 부근이 되면 더 이상 일어나지 않는 것을 볼 수 있다. 이것은 MoO_3 가 앞서 생성된 표면 SiO_2 의 존재에 의하여 휘발이 완전히 일어나지 않았기 때문으로 생각된다.

3.2. MoSi_2 분말 합성

좋은 도전성 MoSi_2 페이스트를 만들기 위한 첫째 조건이 순도 높은 MoSi_2 분말을 합성하는 데 있다. 본 연구에서는 SHS법으로 MoSi_2 분말을 합성하기 위한 예비실험을 통하여 $2\sim 3\ \mu\text{m}$ 수준의 출발 원료 분말이 가장 좋은 합성율을 나타내는 것으로 파악하였으며, 예열 온도는 550°C 가 가장 적당한 것으로 나타났다. 그래서 이 조건을 MoSi_2 분말 합성 조건으로 사용하였으며, 합성은 밀폐된 공간에 출발원료 분말 성형물을 위치시킨 다음 전기적 자극으로 SHS 반응을 시작시켰다. 이에 대한 자세한 내용

Table 1. Type of Over Glaze and Their Thermal Properties

Type	$T\alpha^1$	T_g^2	T_p^3	T_s^4	T_w^5	Color	
Silicate	A	56	670	690	770	790	white
	B	64	620	740	770	805	white
Bi glass	C	49	573	631	693	732	light pink
	D	58	551	604	645	669	light pink
Zn glass	E	44	556	600	637	650	white

1. $T\alpha$: Thermal expansion coefficient ($\times 10^{-7}$)

2. T_g : Glass transition point ($^\circ\text{C}$)

3. T_p : Yield point ($^\circ\text{C}$)

4. T_s : Softening point ($^\circ\text{C}$)

5. T_w : Working point ($^\circ\text{C}$)

은 추후 발표할 예정이다.

Fig. 2는 예열과 반응 용기내의 분위기 조절을 거쳐 합성한 MoSi_2 분말의 x-선 회절 분석 결과이다. 이 결과에서 보면 초기에 아르곤^{13,14}를 흘려주지 않거나 예열을 하지 않은 경우에도 합성 반응은 진행되지만 2차상인 Mo_5O_3 상이 약간 나타나고 있음을 알 수 있다.

일반적으로 XRD의 detect limit은 광물의 결정도(crystallinity)와 회절반사강도 및 물질의 밀도에 따라서 차이가 있긴 하지만, 대략 3~5% 부근으로 추정되며, 42° 부근에서 확인되는 Mo_5Si_3 phase의 강도로 미루어 최소 3% 이상 존재하고 있다고 할 수 있겠다. 이 정도의 양은 초기에는 적은 양으로 보이지만 MoSi_2 가 pest 현상이 시작되는 개시제(initiator)로 작용할 수 있다.

대기 분위기에서 SHS 반응을 진행한 경우에는 반응용기 내부에 소량 존재하는 산소가 Mo와 반응하면서 화학 정량비가 흐트러지거나, 반응 초기에 예열을 하지 않은 경우에는 SHS 반응에서 발생하는 열의 발생이 전체 시스템의 온도를 올리는데 소모되면서 반응에 필요한 열량이 부족하기 때문에 2차상의 생성이 이루어진 것으로 판단된다.

3.3. Over glaze

MoSi_2 가 900°C 이상의 고온에서 산화피막이 형성되고, 이 산화피막으로 인하여 pest 현상에 대한 저항성이 증가한다고 하지만, 본 연구에서 개발하고자 하는 면상 발열체의 경우 사용 시 900°C 까지 가열이 되지 않고, 전기절연성이 필요하기 때문에 인쇄된 MoSi_2 도전성 회로를 피복할 over glaze 물질이 필요하다. 본 실험에 사용된 overglaze 물질 재료의 특성은 다음과 같고, MoSi_2 페이스트와 동일한 제조공정을 거쳐 페이스트로 제조하였다.

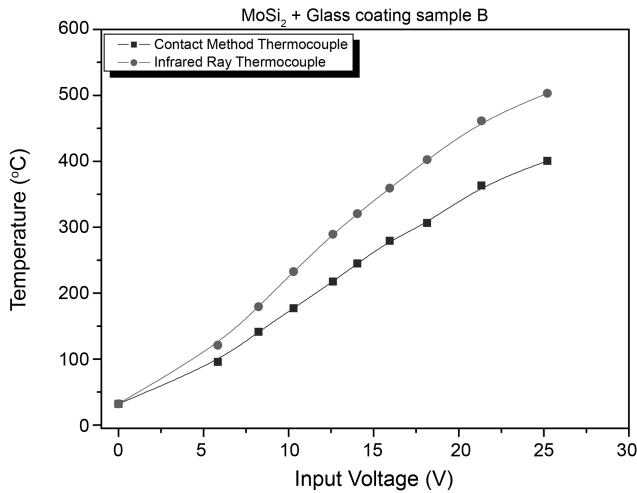


Fig. 3. Temperature vs. applied voltage of ceramic sheet MoSi₂ heater.

이 다섯 가지 유리 조성 중에서 D와 E는 열처리 온도가 너무 낮아서 제외하였다. A, B, C 중에서 A와 B가 MoSi₂와의 밀착성, wetting성 등이 우수하여 A와 B를 over glaze로 선택하여 이후 실험에 사용하였다.

3.4. 면상 발열체

앞서 최적 조건으로 합성한 MoSi₂ 분말과 이를 사용하여 제조한 도전성 MoSi₂ 페이스트를 99% 알루미나와 AlN 기판에 screen printer를 사용하여 회로 패턴을 형성시켰다. 형성된 회로 패턴은 30분간 leveling을 위하여 실내의 편평한 곳에 위치시킨 다음 80°C의 건조기 안에서 24시간 건조시켰다. 건조가 끝난 인쇄 기판은 1,300°C 수소 분위기 로에서 2시간 열처리하였다. 열처리 후의 인쇄 회로 패턴의 두께는 15 μm ± 1.5 μm 수준이었다. 열처리가 끝난 인쇄회로기판은 다시 회로 패턴 위에 over glaze를 인쇄하고 건조 과정을 거친 다음 800°C에서 20분간 열처리하여 표면 보호피막을 형성시켰다. 제작이 끝난 면상 발열체는 각각 전원을 위한 선과 온도 측정을 위한 thermocouple을 연결하였다.

제작된 면상 발열체의 인가전압과 발열온도와의 관계를 나타낸 것이 다음의 Fig. 3이다. 온도 측정은 ceramic sheet 표면에 부착한 thermocouple로 측정된 온도와 IR 온도계로 측정된 두 온도가 나타나 있다. 이 그래프에서 보면 MoSi₂가 면상 발열체의 발열이 인가된 전압에 비례하여 올라가는 것을 알 수 있다.

그런데 thermocouple로 측정된 온도와 IR 온도계로 측정된 결과의 차이가 있는데, thermocouple이 발열부의 표면에 완전히 밀착되지 못해서 낮은 온도 값을 보이고 있는 것으로 판단된다.

또, 다음의 Fig. 4에 나타난 사진에서 MoSi₂ 면상 발열

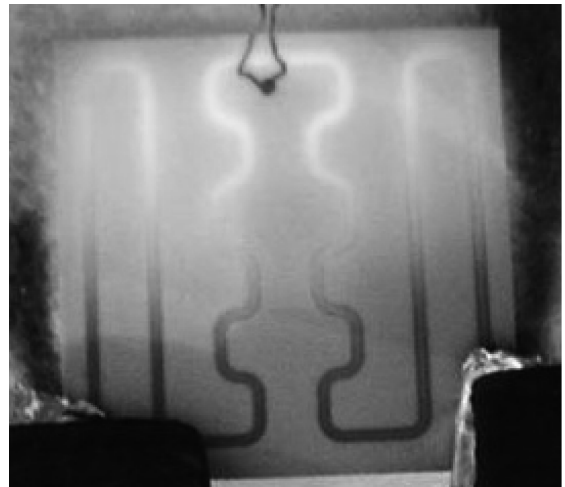


Fig. 4. Photograph of ceramic sheet MoSi₂ heater while working at over 500°C.

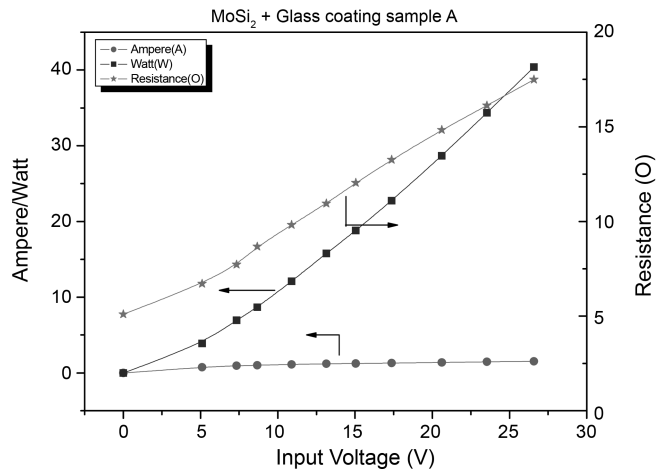


Fig. 5. Electrical current and resistivity of MoSi₂ ceramic sheet heater with applied voltage.

체의 중심부가 밝게 적열되고 있음을 알 수 있다. 이는 중심부의 온도가 600°C를 넘어서는 온도로 판단되는 부분이다. 하지만 실험에 사용된 IR 온도계의 측정 부위가 넓어서 평균 온도 값을 읽기 때문으로 판단된다.

다음의 Fig. 5는 인가전압에 따라서 전류의 변화, 소모 전력 및 전기 저항의 변화를 나타낸 것이다. 전압과 전류가 직선적으로 변하고 있음을 알 수 있으며, MoSi₂ 발열체의 저항 값은 온도가 증가함에 따라 약간씩 증가하고 있음을 알 수 있다.

이 500°C 부근의 온도 영역은 수많은 연구자들이 pest가 가장 활발하게 일어나는 온도로 보고된^{1,3-10)} 온도 영역이다. 그렇지만, 인쇄된 MoSi₂가 pest 현상으로 인한 변색 현상은 관찰되지 않았으며, 수회의 반복된 승온과 냉각에도 별다른 표면 변화가 일어나지 않음을 알 수 있었

다. 이는 over glaze가 표면 산화 방지 효과를 나타내었음을 말하는 것으로 볼 수 있다.

4. 고 찰

알루미나와 AlN 기판을 이용하여 세라믹 면상 발열체를 제조할 수 있었다. 알루미나 기판은 MoSi₂가 갖는 특징 중의 하나인 급격한 승온 및 냉각 속도에 따라오지 못하고 열충격으로 파손이 일어나는 경우가 있었다. AlN 기판은 열충격에 의한 파손이 없었지만 고가인 단점을 갖고 있다. 또한 제작된 면상 발열체의 발열 온도는 500°C 부근의 중온 영역대로 문제가 없으나, 반복되는 승온과 냉각에 따르는 내구성 부분은 over glaze가 제대로 작용을 하는 것으로 파악되기는 하였으나 추가 연구가 더 필요할 것으로 보인다.

만들어진 면상 발열체의 전기적 특성이 일정하게 나타난다는 것은 본 연구에서 목표로 한 MoSi₂를 이용한 세라믹 면상 발열체가 무난히 완성되었음을 나타내는 것으로 볼 수 있다. 이는 단순히 전기 발열체에 응용이 될 수 있기도 하겠지만, 더 나아가 적층세라믹의 내부 도전성 회로 구성성분 등 각종 전기적인 응용도 생각할 수 있음을 보여준다고 하겠다.

대부분의 적층세라믹 내부 회로는 Ag 또는 Ni 등이 주로 사용되고 있으며, 일부 HTCC의 경우에는 Mo/Mn 또는 W가 쓰이고 있다. Ag나 Ag/Pd계의 물질들은 열팽창계수가 세라믹과 차이 나기 때문에 사용에 어려운 점이 있고, W이나 Mo/Mn 등은 높은 비중으로 인하여 문제점을 일으키기도 한다. 그러나 MoSi₂가 도전성 물질로 사용된다면 Ag/Pd에 비하여 가격적으로 싸고, 열팽창계수의 차이가 적은 장점이 있고, W이나 Mo/Mn계의 금속에 비하여 밀도가 낮아 공정상의 문제 발생 소지가 적으며, 동일한 가격이라고 하더라도 MoSi₂가 갖는 상대적으로 낮은 비중으로 인하여 가격적인 혜택을 누릴 수 있는 장점이 있다고 하겠다.

5. 결 론

SHS법으로 고순도의 MoSi₂ 분말을 합성하고 합성된 분말을 이용하여 알루미나 및 AlN 기판 위에 인쇄회로를 입힐 수 있었으며, 이를 이용하여 대기 중에서 500°C 이상의 온도로 발열할 수 있는 면상 발열체를 제조하였다.

1. 출발물질의 2 μm~3 μm 입도 조절과 SHS 반응 예열 온도 550°C 및 반응 용기 내부의 Ar H₂ 분위기를 조절을 통하여 Mo₅Si₃ 2차상의 생성을 억제하여 고순도의 MoSi₂ 분말을 합성할 수 있었다.

2. 합성된 MoSi₂를 사용하여 인쇄용 paste를 제조하였으며, 알루미나와 AlN 기판을 사용하여 두께 15 μm±1.5 μm로 인쇄회로 패턴을 제작하여 세라믹 면상 발열체를 제작할 수 있었다.

3. 제작된 세라믹 면상 발열체의 발열온도는 500°C 이상이며, 450°C~550°C 저온 영역에서 활발하다고 보고된 pest 현상은 Silicate계 over glaze에 의하여 방지할 수 있었다.

Acknowledgment

본 연구는 2009년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다.

REFERENCES

1. Y.-L. Jeng and E.J. Lavernia, "Review : Processing of Molybdenum Disilicide," *J. Mat. Sci.*, **29** 2557-71 (1994).
2. J.H. Westbrook and D.L. Wood, "“PEST” Degradation in Beryllides, Silicides, Aluminides, and Related Compounds," *J. Nuclear Materials*, **12** [2] 208-15 (1964).
3. Y.Q. Liu, G. Shao, and P. Tsakirooulos, "On the Oxidation Behaviour of MoSi₂," *Intermetallics*, **9** 125-36 (2001).
4. K. Hasson, M. Halvarsson, J. E. Tang, R. Pompe, M. Sundberg, and J.-E. Svensson, "Oxidation Behaviour of a MoSi₂-based Composite in Different Atmospheres in the Low Temperature Range (400~550°C)," *J. Euro. Ceram. Soc.*, **24** 3559-73 (2004).
5. L. Shaw, R. Abbaschian, "Chemical State of the Molybdenum Disilicide(MoSi₂) Surface," *J. Mat. Sci.*, **30** 5272-80 (1995).
6. K. Kurokawa, H. Houzumi, I. Saeki, and H. Takahashi, "Low Temperature Oxidation of Fully Dense and Porous MoSi₂," *Mat. Sci. Eng.*, **A261** 292-99 (1999).
7. P.J. Meschter, "Low-temperature Oxidation of Molybdenum Disilicide," *Metallurg. Trans.*, **23A** 1763-72 (1992).
8. D.A. Bertiss, R.R. Cerchiaro, E.A. Gulbransen, F.S. Petit, and G.H. Meier, "Oxidation of MoSi₂ and Comparison with other Silicide Materials," *Mater. Sci. Eng.*, **A155** 165-81 (1992).
9. F. Zhang, L. Zhang, A. Shan, and J. Wu, "Oxidation of Stoichiometric Poly- and Single Crystalline MoSi₂ at 773K," *Intermetallics*, **14** 406-11 (2006).
10. P. Feng, X. Wang, Y. He, and Y. Qiang, "Effect of High-temperature Preoxidation Treatment on the Low-temperature Oxidation Behavior of a MoSi₂ based Composite at 500°C," *J. Alloys and Compounds*, **473** 185-89 (2009).
11. C.L. Yeh and W.H. Chen, "Combustion Synthesis of MoSi₂-Mo₅Si₃ Composite," *J. Alloys and Compounds*, **438** 165-70 (2007).
12. S.-W. Jo, G.-W. Lee, J.-T. Moon, and Y.-S. Kim, "On the Formation of MoSi₂ by Self-propagating High-temperature Synthesis," *Acta Mater.*, **44** [11] 4317-26 (1996).
13. I.-H. Song, J.-Y. Yun, and H.-D. Kim, "Fabrication of Porous MoSi₂ Material for Heating Element Through Self-propagating High Temperature Synthesis Process(in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **41** [1] 62-8 (2004).
14. I.-H. Song, D.-W. Kim, J.-Y. Yun, and H.-D. Kim, "The Effects of Variation in Si Content on the Properties of Porous MoSi₂ Fabricated by Self-propagating High Temperature Synthesis Process(in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **41** [7] 534-40 (2004).