연 구 논 문

SiO_2-Al_2O_3-MgO계 결정화 유리 솔더에 의한 질화규소의 접합에 관한 연구

안 병 국*

*전북대학교 공과대학 신소재공학부/신소재개발연구센터

A Study for Joining of Silicon Nitride with Crystallized Glass Solder of SiO_2-Al_2O_3-MgO System

Byung-Guk AHN*

*Faculty of New Materials Engineering, Chonbuk National University, Chonju 561-756, Korea

Abstract

Joining of Si_3N_4 to Si_3N_4 with crystallized glass solder was studied. SiO_2-Al_2O_3-MgO glass with P_2O_5 as a crystallizing reagent was used as a solder. To improve the high temperature toughness of joined specimen, two stage heat treatment was applied to joined sample for the crystallization of joined layer. Two factors, i.e. thickness of soldered layer and crystallization were taken and thier effects on joining strength were investigated by a SEM-EDX observation of joined interface and bending strength both at room and elevated temperatures. Obtained results are summarized as follows:

(1) Nitrogen diffused from Si_3N_4 to solder during the joining process. Average amount of nitrogen in soldered layer depended on the thickness of the soldered layer and increased with decrease of the thickness.

(2) Joining strength of the specimen having a thinner soldered layer was stronger than that of thicker layer. This can be mainly attributed to the difference of the nitrogen content in the soldered layer.

(3) Higher content of nitrogen in solder brought forth higher viscosity of the solder. Hence the crystallization of the solder become more difficult in thinner layer of the solder than thicker one.

(4) Thus, the effect of crystallization was evaluated mostly by the thicker layer specimen. Crystallization of soldered layer improved markedly the fracure strength of joining at higher temperatures than the softening temperature of glass solder.

(Received September 14, 2002)

Key Words : Joining, Si_3N_4, Glass solder, Joined interface, Content of nitrogen, Crystallization, Thickness of the soldered layer

1. 서 론

질화규소, 탄화규소 등의 비산화물계 세라믹스 재료는 반도체소자의 절연체 재료, lithography용 재료, 고출력 IGBT 소자, 고온전자소자 등의 전기전자적 응용과 가스 터빈, 자동차용 엔진의 고효율화 설계, 기계공구 부품의 개발 등 열적·기계적 응용을 위하여 활발한 응용연구[1]가 진행되고 있다. 또한 이러한 세라믹스가 공업용으로 널리 이용되기 위한 실용적인 관점에서 세라믹스와 금속, 세라믹스와 세라믹스의 접합공정은 매우 중요[2,3]하다. 세라믹스와 금속의 접합은 재료가 가지는 단점을 극복하기 위해, 세라믹스 사이의 접합은 세라믹스에 가공성을 부여하는 수단으로서 필요하다.

산화물계 또는 유리 솔더를 이용하여 질화규소를 접합한 예는 ZrO_2 또는 $ZrSiO_4$계[4], La_2O_3-Y_2O_3-Al_2O_3계[5], SiO_2-Al_2O_3-MgO계[6], SiO_2-CaO-TiO_2계[7] 등 수많은 연구가 활발하게 수행되어 왔다. 이들중 SiO_2-Al_2O_3-MgO계 솔더는 유리중의 SiO_2와 질화규소의 반응에 의하여 Si_2N_2O를 접합층에 석출시킨 것이고, SiO_2-CaO-TiO_2계 솔더는 Si_3N_4와 TiO_2의 반응에 의하여 TiN을 접합층에 석출시켜, 이들 결정에 의한 접

합층의 강화를 꾀한 것이다. 이러한 연구는 접합과정에서 1500℃ 이상의 고온에서 질화규소와 실리케이트계 유리의 반응을 이용하여 접합한 것이다. 이러한 연구는 고온에서 접합을 수행하는 것으로 접합도중 질화규소의 변형이나 냉각시 잔류응력으로 접합체의 강도를 저하시킬 우려가 있다.

따라서, 본 연구에서는 SiO_2-Al_2O_3-MgO계 솔더를 이용하여 기존의 연구들보다 낮은 온도에서 접합한 후, 접합층을 결정화 열처리하는 방법을 시도하였다. 결정화 유리는 기존의 비정질 유리에 비해 기계적 성질과 파괴인성이 양호하다. 실리케이트계 솔더와 질화규소 사이의 젖음성이 90° 이하로 확보된다면, 솔더의 결정화는 접합층의 강화에 유효한 수단이 될 수 있다. 본 연구에서 접합층에 생성시킨 결정은 질화규소와 열팽창 특성이 유사하고, 사이알론(sialon) 등 질화물 세라믹스의 결정입계에서 결정화되어 파괴인성을 향상[8]시키는 코디어라이트(cordierite, $2MgO \cdot 2Al_2O_3 \cdot 5SiO_2$)를 선정하였다. 또한 본 연구에서는 접합층 두께와 결정화 과정의 관련성 및 결정화과정과 접합층의 두께에 따른 상온 및 고온 접합강도와의 관련성을 검토하였다.

2. 실험방법

2.1 시료의 제조 및 물성평가

본 연구에서 사용한 질화규소(일본화학공업 SUN-1) 및 실리케이트계 솔더의 화학조성을 Table 1에 나타내었다. 질화규소의 밀도는 3.2g/㎤이고, 상온에서 4점 굽힘강도는 470MPa였다. 솔더의 기본조성은 SiO_2-Al_2O_3-MgO계에서 질화규소와 열팽창계수가 유사하고, 코디어라이트가 석출되기 용이한 조성을 선택하였으며, 결정화를 돕기 위해 핵생성 조제인 TiO_2와 P_2O_5를 소량 첨가하였다. 이하 핵생성 조제 TiO_2를 첨가한 유리를 SAMT 솔더, P_2O_5를 첨가한 유리를 SAMP 솔더라 한다.

솔더의 제조는 특급시약을 사용하여 공기중에서 백금도가니를 이용하여 1600℃에서 2시간 유지한 후, 스테인리스 강판에 부어, 접합에 적합하도록 분말상으로 제조하였다. 솔더의 균질성을 확보하기 위하여 용융 및 냉각조작을 3회 반복하였다. 또한, 솔더에 질소를 첨가한 4종류의 옥시나이트라이드 유리를 제조하여, 솔더의 결정화에 대한 질소의 영향을 조사하였다. 솔더의 질소농도 측정은 제조된 솔더를 분말상으로 만들어 산소·질소 동시분석장치(일본 호리바사 EMGA-650)을 이용하여 측정하였다.

Table 1 Chemical compositions of silicon nitride and glass solders.

Samples	Chemical composition (wt%)						
	Si_3N_4	SiO2	Al_2O_3	MgO	CaO	P_2O_5	TiO_2
Si_3N_4	92	-	5.0	2.5	0.4	-	-
SAMP	-	49.0	34.0	20.0	-	7.0	-
SAMT	-	49.0	34.0	20.0	-	-	7.0

접합후 잔류응력과 관계가 있는 열팽창율은 시차열분석법을 이용하여 측정하였다. 유리전이점(Tg)과 결정화온도(Tc)는 DSC를 이용하여 측정하였다.

2.2 접합, 결정화열처리 및 접합성의 평가

접합은 경면연마한 질화규소 접합면($11.5 \times 7mm^2$) 위에 일정량의 솔더를 균일하게 도포한 후, 흑연을 발열체로 이용한 고주파유도로 안에서 수행하였다. 접합조건은 가압없이 질소분위기에서 1400℃에서 20분간으로 하였다. 접합후 Tg와 Tc보다 약간 높은 온도에서 2단계로 즉 900℃와 1200℃로 결정화 열처리를 실시하였다.

접합성은 상온과 고온에서 4점 굽힘시험에 의하여 접합강도를 평가하였다. 강도의 측정시 사용된 시료의 크기는 $4 \times 3 \times 40mm^3$ (JIS R1601)으로 제작하였으며, 인장응력이 가해지는 면은 경면연마를 실시하였다. 측정은 4점 굽힘용 SiC 지그를 이용하여 공기중에서 시험온도까지 상승시키고, 시험온도에서 5분간 유지시킨 후, 크로스헤드속도 0.2mm/min의 조건에서 측정하였다. 이 때, 각 조건당 3~5개의 시편을 제작하여 측정하였다. 또한 SEM/EDX에 의한 접합면의 관찰 및 분석으로 평가하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 질화규소와 솔더의 반응

일반적으로 고상-액상계 접합에서 액상인 솔더가 구비하여야 할 조건으로는 접촉각이 90° 이하를 나타내야 한다. 안의 연구[9]에 의하면, 질화규소와 SiO_2-Al_2O_3-MgO계 솔더의 접촉각은 1400℃에서 65°, 1500℃에서 50° 의 작은 값을 나타내 접합에 적용하기 알맞은 상태였다. 그러나, TiO_2를 포함하는 SAMT 솔더의 경우, 1400℃ 이상에서 질화규소와 솔더 사이의 반응에 의해 가스가 분출되는 등 격렬한 반응이 일어나 일정한 형상을 유지하지 못하여 접촉각을 측정할 수 없어, 질화규소의 접합용 솔더로서 적합하지 않았다.

Fig. 1은 질화규소와 SAMT 솔더의 접합계면 부근을 관찰한 결과이다. Fig. 1의 (a)는 1350℃에서 20분간 접합한 계면을 관찰한 경우로서, 접합계면에서 Ti의 농도가 높게 검출되었으며, 접합계면에서 기포가 발생한 후 남은 흔적으로 보이는 구멍이 Fig. 1의 (b)와 같이 관찰되었다. SAMT 솔더를 사용한 경우, 기포의 흔적은 다음과 같은 반응식에 의하여 설명될 수 있다.

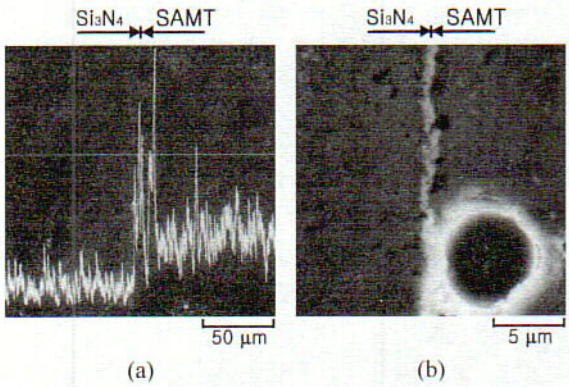

Fig. 1 SEM micrographs and microanalysis of Ti distribution at the interface region.

$$\frac{1}{3}Si_3N_4 + TiO_2 = TiN + SiO_2 + \frac{1}{6}N_2(g) \quad (1)$$

식(1)의 반응 가능성을 열역학 데이터[10,11]에 근거하여 계산하여 보면, 1400℃에서 식(1)의 ΔG°는 -98kJ로, 식(1)의 반응결과로 예상되는 기포의 발생 등으로 접합이 불가능하였으며, 이때 분리된 솔더의 색깔은 황금색으로 변하여 TiN이 생성되었음을 알 수 있었다. 이것은 Trigg 등[12]의 Si-Ti-O-N계의 결과와 같은 경향을 보인다. 한편 P_2O_5를 함유한 SAMP 솔더는 모든 접합온도 구역에서 기포 등이 발생하지 않는 양호한 접합계면을 나타내었다. 따라서 이후의 실험에서는 P_2O_5를 함유한 SAMP 솔더만을 사용하였다.

3.2 솔더내 질소농도에 따른 결정화 과정의 변화

솔더의 결정화에 미치는 질소의 영향을 검토하기 위하여 SAMP 솔더와 SiO_2-Al_2O_3-MgO계에 질소농도를 달리한 4종류의 유리를 만들어 결정화 열처리를 실시한 후, 코디어라이트의 (100) 회절강도로서 결정화 정도를 조사하였다. Fig. 2에 유리내 질소농도에 따른 코디어라이트 회절강도의 변화를 나타낸다. Fig. 2에 나타낸 바와 같이 코디어라이트의 결정화는 질소농도가 높아짐에 따라 현저하게 감소하여 1.7%의 질소량으로 코디어라이트는 생성되지 않았다. 이러한 결과는 Jameel

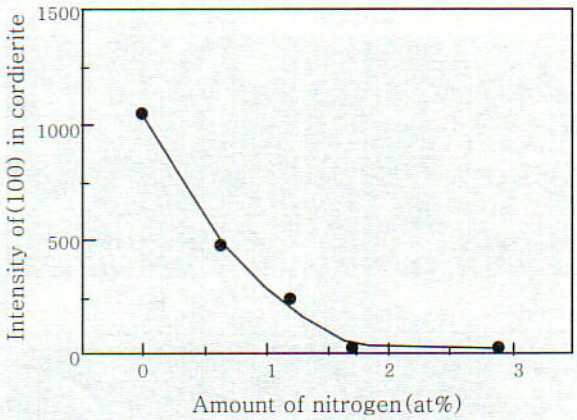

Fig. 2 Intensity of (100) plane in cordierite as a function of nitrogen contents in the Si-Al-Mg-O-N glass.

등의 연구[13]와 유사한 결과를 나타내고 있다.

이렇게 유리내 질소농도에 따라 결정화의 양상이 다른 것은 유리의 결정화에 미치는 핵생성속도와 결정성장속도가 점도에 반비례하는 확산계수를 포함하여 결정화에 큰 영향[14]을 미치기 때문이다. 즉 유리내 질소가 첨가되지 않은 경우, 핵생성과 결정성장이 원활하게 일어나 미세한 코디어라이트가 생성하나, 유리내 질소농도가 높아짐에 따라 점도가 급격히 높아져, 코디어라이트의 핵생성과 결정성장이 원활하게 일어나지 않는 것으로 생각된다.

안의 연구[9]에 의하면 실리케이트계 솔더를 사용하여 접합할 경우, 접합계면에서 3㎛ 떨어진 곳의 질소농도를 조사한 결과, 1400℃의 접합온도에서 1.32%의 질소가, 1500℃의 접합온도에서 1.43%의 질소가 존재한다고 보고하고 있다. 따라서, 접합온도를 높게 하면 접촉각이 작아져 접합에 유리하게 작용하나, 질화규소로부터 유입되는 질소의 양이 많아지므로 유리의 점도가 높아져 결정화를 어렵게 할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 접합시 젖음성이 90° 이하이고, 질소농도가 낮아 결정화가 가능한 접합조건인 1400℃에서 20분간 접합을 실시하였다.

Fig. 3에 접합층의 두께를 달리하여 접합하여 결정화 열처리를 실시한 후의 조직을 나타낸다. 결정화는 접합층의 두께에 따라 상당히 다른 거동을 보이고 있다. 접합층이 5㎛로 얇은 경우인 Fig. 3의 (a)는 접합층내에 어떠한 결정도 생성되지 않았으나, 접합층의 두께가 30㎛인 경우에서는 질화규소와 솔더의 계면에서 조대한 코디어라이트가 생성되었으며, 접합층의 두께가 두꺼울수록 접합층에 더욱 미세한 코디어라이트가 생성되었다.

이와 같이 접합층의 두께에 따라 접합층내의 결정화 정도가 다른 것은 질화규소로부터 확산되는 질소농도의

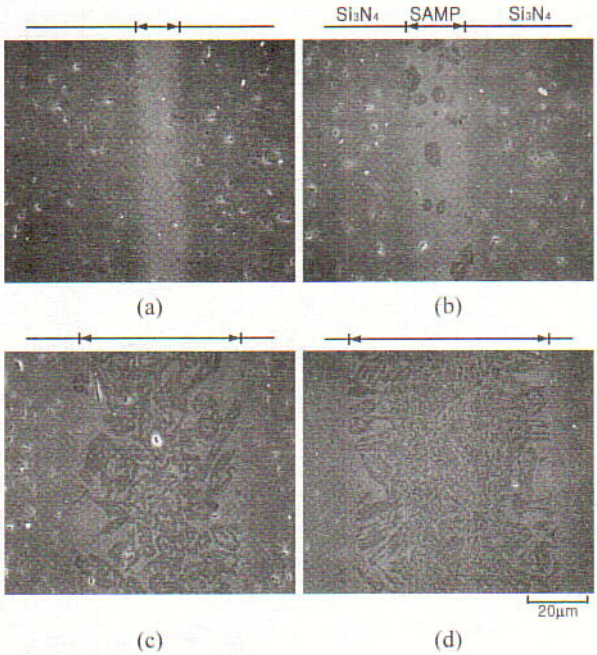

Fig. 3 Crystallization behaviors of soldered layer as a function of thickness. (crystallization : 900℃ ×90min. and 1200℃×30min.)

차이로 설명할 수 있다. 질화규소로부터 확산된 질소의 평균농도를 측정한 결과, 접합층의 두께가 30㎛일 때, 1.2at%이고, 접합층의 두께가 110㎛일 때, 0.7at%였다. 즉 접합층이 얇은 경우, 접합층내로 확산되는 질소농도가 상대적으로 많아져 코디어라이트가 생성되기 어려웠으나, 두께가 두꺼워짐에 따라 접합층내 질소농도는 상대적으로 낮아져, 코디어라이트가 생성되기 쉬운 조건으로 변화한다.

또한 동일 두께의 경우에도 Fig. 4에 나타낸 바와 같이 결정화 열처리 조건에 따라서도 결정화 양상은 변화하였다. 따라서, 접합층에 미세한 코디어라이트를 생성하기 위해서는 핵생성온도 구간을 길게 하고, 결정화온도 구간을 짧게 하는 것이 효과적임을 알 수 있다.

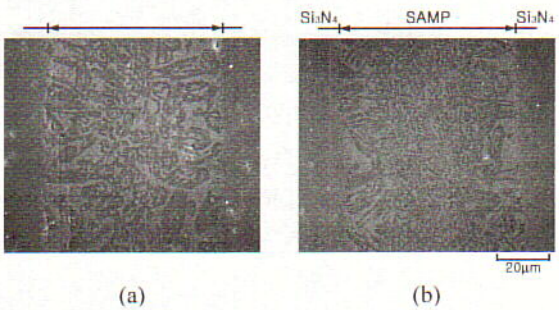

Fig. 4 Crystallization behaviors of soldered layer as a function of crystallization. (a) 900℃×90min. -1200℃×30min., (b) 900℃×30min.-1200℃×90min.

3.3 접합강도의 평가

질화규소 접합체의 강도에 영향을 미치는 인자는 접합온도, 접합시간, 솔더의 종류 등 다양한 인자에 의하여 영향을 받을 수 있다. 본 연구에서는 질소의 확산과 관련있는 접합층의 두께 및 접합층의 두께와 관련된 결정화에 대하여 고찰하고자 한다. 이를 위하여 상온과 고온에서 4점 굽힘시험을 실시하였다. 참고로 접합용으로 사용된 유리와 유리를 결정화시킨 시편에 대해서도 강도평가를 실시하였다.

(1) 접합층 두께에 따른 상온 접합강도의 영향

접합할 때, 질화규소 사이에 삽입하는 솔더의 양에 따라 접합층의 두께가 결정된다. 앞에서 설명한 바와 같이 1400℃에서 20분간 접합할 때, 접합층의 두께에 따라서 질화규소로부터 접합층에 확산되는 질소의 양은 변화하므로 접합강도에 대한 접합층 두께의 영향을 파악하여야 한다.

Fig. 5에 결정화시키지 않은 상태에서 접합층의 두께에 따른 접합강도의 변화를 나타낸다. 접합강도는 접합층이 두꺼워짐에 따라 감소하여, 접합층의 두께가 110㎛일 때의 강도는 실리케이트계 유리 자체의 강도인 110MPa보다 약간 높은 125MPa 정도를 나타내었다.

질화규소로부터 확산된 질소의 평균농도는 접합층의 두께가 30㎛일 때, 1.2at%이고, 접합층의 두께가 110㎛일 때, 0.7at%이었으므로, 접합층은 질소의 확산에 의한 강화효과로 두께가 얇을수록 높은 접합강도를 나타낸 것으로 생각된다. 또한 접합층내 질소농도는 접합계면에서 멀어질수록 낮아지는데, 접합강도의 측정시 파단은 접합층의 중앙부에서 일어나, 접합부의

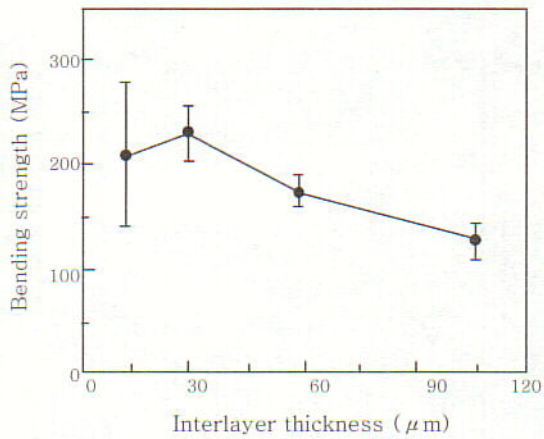

Fig. 5 Bending strength of the joined specimens at room temperature as a function of the thickness of the sodered layer (joining : 1400℃×20min.)

중앙부가 질화규소와 솔더의 계면보다 취약함을 알 수 있다.

Loehman[15]에 의하면 SiO_2-Al_2O_3-MgO계 유리에서 SiO_2, Al_2O_3, MgO 성분을 10% 변화시킨 것보다 2~3%의 질소농도 변화가 유리의 경도 및 탄성률 등 기계적 성질을 현저히 증가시킨다고 보고하고 있다. 따라서, 본 연구에서 질화규소로부터 접합층에 확산된 질소는 솔더의 다른 어떤 성분보다 솔더의 기계적 성질에 미치는 영향은 크므로, 접합층의 두께가 얇을수록 접합층 중의 질소농도가 높게 되어 접합층내 솔더를 강화시켜, 접합강도가 높게 된 것으로 생각된다. 또한 접합층이 15㎛일 때는 강도값의 편차가 심했는데 접합시 질화규소 표면에 미세한 분말상 솔더를 균일하게 도포하기가 어렵기 때문에 발생한 것으로 생각된다.

Johnson 등[16]에 의하면 실리케이트계 유리에 4.3at% 질소가 치환되면, SiO_2-Al_2O_3-MgO계 유리의 열팽창계수가 7×10^{-7}/℃로 감소한다고 보고하고 있다. 본 연구에서도 Table 2에 나타낸 바와 같이 질소농도 1.4%인 솔더의 열팽창계수는 SAMP 솔더에 비하여 5.5×10^{-7}/℃ 정도 낮아져, 냉각도중에 발생하는 잔류응력도 작아질 것으로 생각된다. 또한 솔더내의 질소농도는 접합계면에서 멀어질수록 감소하므로, 접합계면에서 중심부로 갈수록 열팽창계수가 연속적으로 증가하는 이상적인 접합구조를 가질 수 있다.

Table 2 Coefficient of thermal expansion from 50 to 800℃ in solders and Si_3N_4.

Samples	SAMP	SAMP +1.4%N	Crystallized SAMP	Si_3N_4
$\alpha\times10^{-7}$	48	42.5	36	33.9

(2) 결정화 열처리에 따른 상온 접합강도의 영향

Fig. 6에 접합층의 두께를 30, 60, 110㎛로 조절한 후, 결정화 열처리한 접합체의 상온 4점 굽힘강도 측정 결과를 나타낸다. 결정화 열처리는 접합층에 미세한 코디어라이트를 형성시키기 위하여 핵생성 열처리시간을 길게 하고, 결정성장 열처리시간을 짧게 하였다. 또한 접합층의 두께가 15㎛ 이하의 접합체는 Fig. 4의 (a)에 나타낸 바와 같이 열처리하여도 결정화되지 않았으므로 여기에서는 생략하였다.

Fig. 6에 나타낸 바와 같이 결정화 열처리를 실시한 접합체의 굽힘강도는 접합층의 두께가 30㎛일 때에는 열처리를 실시하지 않은 것보다 약간 높은 강도를 나타내나, 접합층의 두께가 두꺼워질수록 접합강도의 절대값은 낮아지나, 결정화 열처리를 실시하지 않은 것보다 50~80MPa 이상의 상당한 강도 증가를 나타낸다.

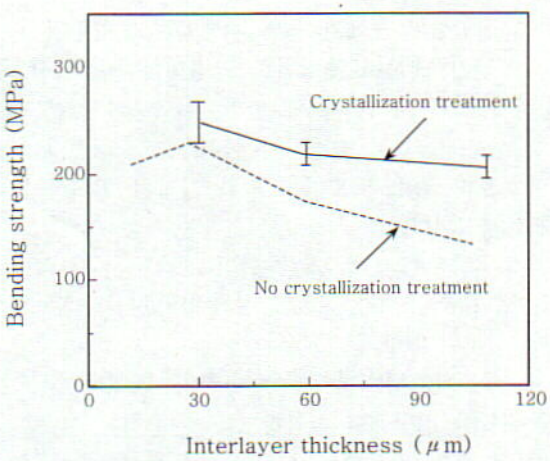

Fig. 6 Bending strength of the joined specimen at room temperature as a function of the thickness of the soldered layer and crystallization. (joining : 1400℃×20min. heat treatment : 900℃ ×90min. and 1200℃×30min.)

이와 같이 접합층의 두께가 두꺼울 경우, 접합강도가 증가한 것은 Fig. 3의 (b), (c)에 나타낸 바와 같이 두께가 두꺼울수록 접합층이 결정화되어 접합층을 강화시킨 것으로 생각된다. 또한 접합층의 두께가 30㎛일 때에 결정화 열처리시킨 접합체의 강도가 열처리시키지 않은 접합체보다 약간 높게 나타나는 것도 접합층에 약간 석출된 코디어라이트가 파괴 진행시 파괴 진행경로를 길게 하여 강도가 향상된 것으로 생각된다.

유리의 굽힘강도는 결정화가 일어나면 증가[13]하는데, 실제 본 연구에서 사용한 SAMP 솔더의 평균 4점 굽힘강도는 100MPa이었던 것에 대하여 SAMP 유리를 결정화시킨 솔더는 평균 220MPa로 2배의 강도 증가가 얻어졌다.

또한, SAMP 솔더가 결정화되어 열팽창계수가 작은 코디어라이트(25×10^{-7}/℃(25~700℃))가 석출되면 솔더의 열팽창계수는 더욱 작게 되어, 냉각시 잔류응력을 최소화시킬 수 있다. 실제로 본 연구에서 사용한 SAMP 솔더의 열팽창계수는 48×10^{-7}/℃(25~800℃)인데 반하여, SAMP 솔더를 결정화시킨 것의 열팽창계수는 Table 2에 나타낸 바와 같이 질화규소의 열팽창계수와 유사한 36×10^{-7}/℃(50~800℃)으로 작아졌다. 따라서, 접합층의 두께가 두꺼울 때에는 접합공정 및 결정화처리에 의하여 접합층의 열팽창계수는 더욱 작게 되어, 솔더의 열팽창계수를 질화규소의 열팽창계수에 거의 일치시킬 수 있어, 접합도중의 잔류응력도 충분히 작게 할 수 있다.

결국, 접합층의 두께와 결정화에 대한 접합강도의 관

련성은 접합층의 두께가 두꺼울 때에는 접합층의 질소 농도가 낮기 때문에 결정화하기 용이하여 접합강도는 결정화에 의한 기여분이 큰 반면, 접합층이 얇은 때에는 질소농도가 높아 결정화가 어려우므로 결정화에 의한 강화보다 질소의 도입에 의한 강화의 기여분이 더 크다고 생각된다.

(3) 접합층 두께와 결정화 열처리에 따른 고온 접합 강도의 영향

Fig. 7은 SAMP 솔더를 사용하여 1400℃에서 20분간 접합한 접합체의 고온강도를 나타낸다. 이 때 접합층의 두께를 30, 110㎛의 2종류로 조절하였다. 접합층의 두께가 30㎛인 접합체는 900℃까지 거의 상온과 동등한 강도를 나타내나, 1000℃를 넘으면 강도가 급격히 저하한다. 또한 접합층의 두께가 110㎛인 접합체는 900℃에서도 강도가 급격히 저하한다.

Harada[17]에 의하면 본 연구의 조성과 유사한 Si-Al-Mg-O-N계 유리의 연화점($\log\eta=7.65$)을 측정한 결과, 산화물계 유리의 연화점은 880℃이었으나, 유리 중에 질소가 1.5at% 정도 도입되면, 연화점이 50℃ 정도 상승한다고 보고하고 있다. 따라서 접합층의 두께가 얇은 경우에는 질화규소로부터 질소가 확산되어, 질소농도가 1.2at% 정도이므로 접합층에 존재하는 솔더의 연화점은 40℃ 정도 상승될 것으로 예상되므로 900℃에서도 강도의 저하가 없었으나, 접합층이 두꺼운 경우에는 질소가 확산되어도 접합층 중앙부의 질소농도가 낮아 900℃에서도 솔더가 연화되어 강도가 저하된다고 생각된다.

한편, Fig. 8에 결정화 열처리(900℃×120분간, 1200℃×30분간)한 접합체의 고온 굽힘강도를 나타낸다. 접합층의 두께가 30㎛인 때의 고온 굽힘강도는 Fig. 8의 결정화시키지 않았던 접합체와 거의 같은 거동을 나타내, 900℃까지 상온 굽힘강도와 동등한 225 MPa 정도를 나타내나, 1000℃ 이상에서 급격히 감소한다. 이에 비하여 접합층의 두께가 110㎛인 접합체는 결정화에 따른 강도 증가와 더불어, 1000℃에서도 140MPa 정도를 유지한다.

접합층의 두께가 30㎛일 때, 접합층의 결정화가 잘 진행되지 않고, 잔류된 솔더가 연화하기 때문에 1000℃에서 강도가 저하하였으나, 접합층의 두께가 110㎛일 때, 결정화 열처리에 의하여 접합층이 대부분 미세한 코디어라이트로 석출되어 있으므로, 1000℃에서도 상당한 강도가 유지되었다고 생각된다.

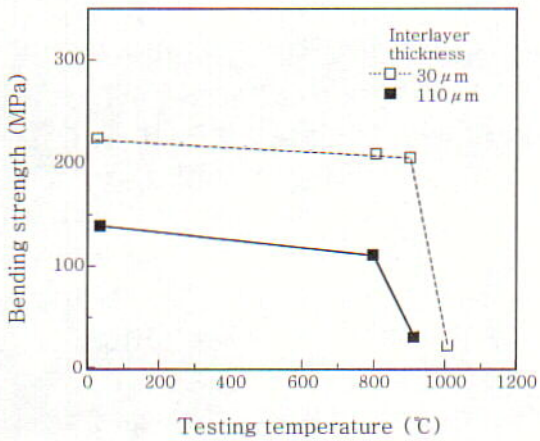

Fig. 7 Bending strength of the joined specimen at elevated temperature as a function of testing temperature (joining : 1400℃×20min.)

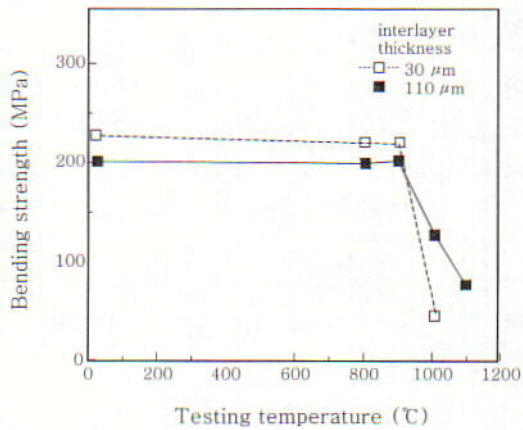

Fig. 8 Bending strength of the joined specimens at elevated temperature as a function of testing temperature and crystallization. (joining : 1400℃×20min. heat treatment : 900℃×90min. and 1200℃×30min.)

4. 결 론

산화물계 솔더의 고온물성을 개선하기 위하여 솔더층을 결정화하여 결정화하지 않은 시료와 비교하였다. 산화물계 솔더는 SiO_2-Al_2O_3-MgO계에 P_2O_5를 핵생성제로 첨가하였다. 접합은 질화규소사이에 솔더를 삽입한 후 1400℃에서 20분간 수행한 후 2단 열처리를 실시하였다. 접합체의 강도는 상온과 고온에서 4점굽힘시험으로 평가하였으며, SEM/EDX로 접합계면을 관찰하였다. 얻어진 결과는 다음과 같다.

1) 접합층의 결정화는 질화규소로부터 확산되는 질소농도에 지배되어, 솔더층이 두꺼울수록, 질소농도가 낮기 때문에 결정화되기 쉬웠다.

2) 상온에서 접합체의 굽힘강도는 결정화처리에 따라 증가하였다. 접합강도의 증가율은 질소농도가 낮은 두

꺼운 쪽이 높았다.

3) 고온에서 결정화처리하지 않은 접합체의 굽힘강도는 접합층이 25㎛일 때에는 900℃까지 상온과 동등한 225MPa 정도의 강도가 얻어졌으나, 접합층의 두께가 110㎛일 때에는 900℃에서도 솔더가 연화되어 굽힘강도가 25MPa 정도로 낮아졌다.

4) 고온에서 결정화처리한 접합체의 굽힘강도는 접합층의 두께가 30㎛일 때, 결정화하지 않은 시료와 거의 동등한 거동을 보이나, 두께가 110㎛일 때에는 강도의 향상과 함께, 900℃까지 상온과 동등한 200MPa 정도의 강도가 얻어졌으며, 1000℃에서도 140MPa 이상의 강도가 얻어졌다.

참 고 문 헌

1. N.Iwamoto and T.Suga : Proceedings of MRS international Meeting on Advanced Materials "Metal-Ceramic Joint", (1988) Materials Research Society.
2. N.Iwamoto and T.Suga : Joining Engineering of Ceramics, 1990, Nihonkogyoshinnbun.(in Japanese)
3. R.Hayami : Bonding & Joining Technology of Ceamics, 1985, CMC.(in Japanese)
4. P.F.Bencher and S.A.Halen : Ceram.Bull., 58(1984) 582
5. M.Yamazaki,M.Kitagawa,K.Takatsu and N.Suehiro : Yogyo-Kyokai-Shi., 94(1986)102. (in Japanese)
6. S.M.Johnson and D.T.Rowcliffe : J.Am.Ceram.Soc., 68(1985)468.
7. N.Iwamoto,N.Umesaki and A.Ikibara : Yogyo-Kyokai-Shi., 94(1986)880.(in Japanese)
8. D.A.Bonnell,T.Y.Tien ans M.Ruhle : J.Am.Ceram.Soc., 70(1987)460.
9. B.G.Ahn : Journal of KWS, 20(2002)372.(in Korean)
10. A. Hendry : Nitrogen ceramics, edited by F.L.Riley, Noordhoff Reading, Mass., (1977)
11. H.L.Schick : Thermodynamics of certain refractory compounds, New York, (1966)
12. M.B.Trigg and E.R.MeVartney : J.Am.Ceram.Soc., 62(1981)C151.
13. N.S.Jameel and D.P.Thompson : Special ceramics, Proc. Brit. Ceram. Soc., 8(1986)95.
14. H.Yamazaki : Handbook of Glasses, 1975, Asakura Syotenn.(in Japanese)
15. R.E.Loehman : J. Non-crystal. Sol.,42(1980)433.
16. S.M.Johnson and D.J.Rowcliffe : J.Am.Ceram.Soc., 68(1985)468.
17. M.Harada : Master thesis of Tohoku University in Japan, (1991) (in Japanese)