

研究論文

Ag-Ti계 합금을 사용한 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징에서 브레이징 조건이 접합강도에 미치는 영향의 연구

이 형 근* · 이 재 영**

**The effects of brazing conditions on the bond strength of the
SiC/SiC and SiC/mild steel joints brazed by Ag-Ti based alloys**

H. K. Lee* and J. Y. Lee**

Key Words : SiC ceramics(실리콘 카바이드 세라믹), Mild steel(연강), Ag-Ti alloys(은-티탄 합금), Brazing temperature(브레이징 온도), Brazing gap(브레이징 간격), Residual stress(잔류응력), Four-point bend strength(4점 굽힘시험)

Abstract

The microstructure and bond strength were investigated on the SiC/SiC and SiC/mild steel joints brazed by Ag-5at%Ti alloy. Ag-5at%Ti-2at%Fe and -5at%Fe brazing alloys were also used to see the effects of Fe addition on the bond strength of SiC/SiC brazed joints. Brazing temperature and brazing gap were selected and examined as brazing variables.

The microstructure of SiC/SiC brazed joints was affected by Fe addition to the Ag-5at%Ti alloy, but the bond strength was not. Increasing brazing temperature also changed the microstructure of Ti_5Si_3 reaction layer and brazing alloy matrix of the SiC/SiC and SiC/mild steel joints, but not the bond strength. Brazing gap had a great effects on the bond strength. Decreasing brazing gap from 0.2 mm to 0.1 mm in SiC/SiC brazing increased the bond strength from 187 MPa to 263 MPa and, in SiC/mild steel brazing, from 189 MPa to 212 MPa. It was concluded that the most important parameter on the bond strength in SiC/SiC and SiC/mild steel brazing was the relative ratio between brazing gap and specimen size.

※ 1997년 6월 12일 접수

* 정회원, 한국기계연구원 용접기술연구부

** 비회원, 한국과학기술원 재료공학과

1. 서 론

SiC 세라믹은 고온강도, 내마모성, 내부식성 등이 우수하여 고온구조용 세라믹으로서 기대되는 소재이다. 그러나 SiC 세라믹의 특성을 충분히 활용하기 위해서는 SiC/SiC 혹은 SiC/금속 형태의 접합 기술이 요구되는 경우가 많다¹⁾. 전통적인 세라믹과 금속의 접합방법으로서 메탈라이징(metallizing) 방법이 있으며, 현재에도 전자산업 등에서 많이 사용하고 있다²⁾. 그러나 비산화물계 세라믹의 접합에는 메탈라이징 방법의 적용이 곤란하다. 최근들어 세라믹의 접합방법으로서 활성 금속 브레이징이 가장 많이 연구되고, 실용화되고 있다. 현재 가장 많이 사용되고 있는 활성금속 브레이징 합금은 Ti을 활성금속 원소로 한 Ag-Cu-Ti계 합금이다³⁾. 특히 Ag-Cu 공정조성에 2-6wt% Ti을 첨가한 브레이징 합금은 대부분의 세라믹을 젖음(wetting)시킬 수 있으며, 용점이 낮고, 연성이 커서 세라믹의 브레이징 합금으로서 상당히 실용화되어 있다⁴⁾.

그러나 SiC 세라믹의 Ag-Cu-Ti계 합금에 의한 브레이징에서는 우수한 접합강도를 얻을 수 없었으며, Cu-Ti계 및 Cu-천이금속(Nb, Cr, 등)계 브레이징 합금은 브레이징 과정에서 SiC를 분해시키는 현상을 관찰하였다⁵⁻⁷⁾. 반면 Ag-Ti계 합금에 의한 SiC의 브레이징에서는 SiC의 분해가 일어나지 않는 안정된 접합계면을 얻을 수 있으며, 좋은 접합강도를 얻을 수 있었다⁸⁾. 또한 Ag-Ti계 합금은 1-5wt% Ti 범위 내에서 Ti의 함량 변화나, 브레이징의 형태(SiC/SiC 혹은 SiC/연강 브레이징)에 크게 의존하지 않고 안정된 접합강도를 얻을 수 있었다⁸⁾. 따라서 Ag-Ti계 합금은 SiC의 브레이징 합금으로서 가장 유망시되고 있다.

본 연구에서는 이러한 Ag-Ti계 합금을 사용한 SiC/SiC 및 SiC/연강의 브레이징에서 가장 중요한 변수로 생각되는 브레이징 온도와 브레이징 간격이 접합강도에 미치는 영향에 대해서 연구하였다. 또한 SiC/연강의 브레이징에서 연강으로부터 Fe 원소의 용해가 접합강도에 미치는 영향만을 보기 위하여, Fe 합금원소를 첨가한 Ag-5at%Ti 합금을 사용하여 SiC/SiC 브레이징한 후 미세조직과 접합강도를 분석하였다.

2. 실험방법

SiC 세라믹은 12.5×20×5 mm의 각형으로 HIP(Hot Isostatic Pressurized) 처리된 것을 사용하였으며, 조성은 98wt% SiC에 1-2wt% C을 포함한다. SiC 세라믹 소재의 4점 굽힘강도(four-point bend strength)는 약 500 MPa을 가졌다. 실험에 사용된 연강(SS41)은 SiC와 동일한 치수로 가공하였다. 브레이징 합금은 순도 99.0wt% 이상의 Ag, Ti, Fe 분말을 정량 혼합하여 사용하였다. 실험에 사용된 모든 Ag-Ti 합금에서 Ti의 함량은 5at%(2.3wt%)로 일정하게 하였다. 이러한 브레이징 합금은 975 °C에서 용융을 시작하여 젖음각(wetting angle)이 급격히 감소하기 시작하며, 985°C에서 40°, 1040 °C에서는 약 10°, 1100 °C에서는 거의 0°의 젖음각을 갖었다⁹⁾. 관찰결과와 상태로로부터¹⁰⁾ 985 °C에서 브레이징 합금은 완전히 액상이 됨을 알 수 있었다.

브레이징 조건들은 Ag-5at%Ti(Ag-2.3wt%Ti) 합금, 브레이징 온도 985 °C, 브레이징 간격 0.2 mm의 조건을 기준으로 하여 조금씩 변화시켰다. 모든 브레이징 실험에서 브레이징 시간은 600초로 동일하게 하였다. 브레이징 온도의 영향을 보기 위해서는 각각 985 °C, 1040 °C, 1100 °C의 3종류의 온도를 선택하였으며, SiC/SiC와 SiC/연강의 2 종류의 접합을 수행하였다. 브레이징 간격의 영향을 보기 위해서는 tungsten 선을 spacer로서 사용하여 각각 0.2, 0.1, 0.05 mm의 3 종류의 브레이징 간격을 사용하였으며, 역시 SiC/SiC와 SiC/연강의 2 종류의 접합을 수행하였다. SiC/연강 브레이징에서 연강으로부터 용해되는 Fe 원소의 영향만을 분리해 보기 위해서는, Ag-5at%Ti 합금에 각각 2at%Fe(Ag-2.3wt%Ti-1.1wt%Fe), 5at%Fe(Ag-2.4wt%Ti-2.7wt%Fe)를 첨가한 합금을 사용하여 985°C, 0.2 mm의 조건하에서 SiC/SiC 브레이징을 수행하였다. SiC는 브레이징 전에 6µm diamond paste로 연마하고 아세톤 용액 내에서 초음파 세척을 한 후 사용하였다. 연강은 #1200 사포로 연마한 후 초음파 세척을 하였다.

본 연구에 사용된 진공로는 Fig.1에서 보여 준다. 시편(1)은 graphite 발열체(2)를 사용하여 6.7 °C/min.의 속도로 가열하였다. 온도는 SiC 세라믹 위에 접촉시켜 둔 Pt-Rh 열전대(4)에 의해 측정하

였다. 브레이징 후 시편은 600 °C까지는 6 °C/min, 상온까지는 3 °C/min. 의 속도로 냉각하였다. 가열과 냉각속도는 자동온도 조절기를 사용하여 1°C 내에서 온도를 정확히 조절하였다. 진공도는 브레이징 합금이 용융되기 직전까지 5×10^{-4} - 10^{-5} torr 범위에 있었다.

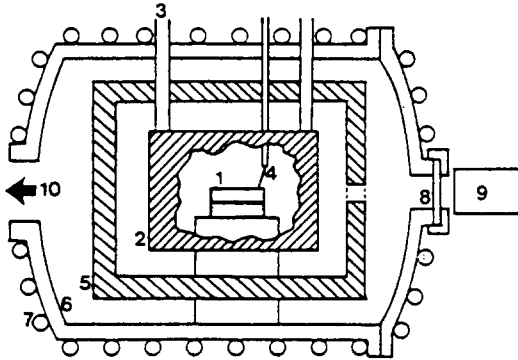


Fig 1. Schematic diagram of a vacuum furnace

- 1) specimen, 2) graphite heating element,
- 3) water cooled copper electrode,
- 4) Pt-Rh thermocouple, 5) heat shield box
- 6) vacuum chamber, 7) cooling coils, 8) viewing port,
- 9) telescope and camera, 10) to vacuum system

접합강도의 측정은 4점 굽힘시험에 의해 수행되었다. Tungsten spacer가 존재하는 양쪽부분은 low speed diamond saw 에 의해 절단하여 내고, 중앙부분을 $5 \times 2.8 \times 25$ mm 의 치수로 절단하여 굽힘시험용 시편으로 사용하였다. 모든 굽힘시험용 시편은 결과의 편차를 줄이기 위하여, 4면을 모두 입도 $1 \mu\text{m}$ 의 diamond paste로 연마하였다. 이러한 시험편의 준비과정은 Fig.2에서 도식적으로 보여 준다. SiC 혹은 SiC/금속 접합부의 굽힘시험한 여러 논문들의 분석결과 대부분 $6 \mu\text{m}$ diamond(혹은 $3 \mu\text{m}$)로 최종 연마한 후 굽힘시험을 수행하였다. 이러한 경우 대부분 측정값의 상당한 편차가 관찰되었으나, H. Yoshinaga⁹⁾의 연구에서는 $1 \mu\text{m}$ diamond로 4면을 모두 최종연마 처리 하였으며, 이때 매우 적은 편차를 얻을 수 있었다. 따라서 본 연구에서도 4면을 모두 $1 \mu\text{m}$ diamond까지 최종 연마 처리하였다. 또한 모든 굽힘시험용 시편은 광학현미경 관찰에 의해 접합부 근처에서 미세균열

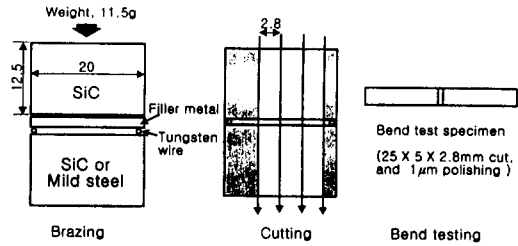


Fig 2. Preparation procedure of the specimens for the four-point bend tests

이 존재하지 않는 것을 시험에 사용하였다. 굽힘 시험은 치구를 사용하여 외부하중점 간격 18 mm, 내부하중점 간격 6 mm를 갖는 4점 굽힘시험을 수행하였다. 4점 굽힘시험은 Instron Universal Testing Machine 을 사용하였으며, 이때 cross head speed는 0.5 mm/min. 를 사용하였다. 측정결과는 3개의 시험에 대한 평균값을 사용하였다.

3. 실험결과

3.1 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징에서 접합부의 미세조직과 접합강도의 비교

본 연구에서 브레이징의 기준 조건이 되는 985 °C/10min., 0.2mm 브레이징 간격 하에서 Ag-5at%Ti 합금을 사용하여 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징하였을 때 접합부의 계면반응, 미세조직, 접합강도의 차이 등에 대해서는 이미 Ref. 5)과 Ref. 8)에서 수행하였다. 여기서는 미세조직과 접합강도의 분석결과를 간단하게 요약하여 살펴보기로 한다.

Fig. 3에서는 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징한 시편의 접합계면과 브레이징 합금에서의 미세조직을 보여준다. Table 1에서는 각 부분의 EDX 분석 결과를 수록하였다. SiC와 브레이징 합금 사이의 접합계면에 생성된 반응층들의 분석결과는 Fig. 3(c)에서 도식적으로 설명한다. SiC에 인접하여 얇은 층으로 TiC 반응층이 존재하며, 브레이징 합금 쪽으로 매우 엉성하게 형성된 띠(band) 형태로 Ti_5Si_3 반응층이 존재한다. SiC/연강 브레이징의 경우에는 규칙적인 띠 형태로 존재하던 Ti_5Si_3 반응층

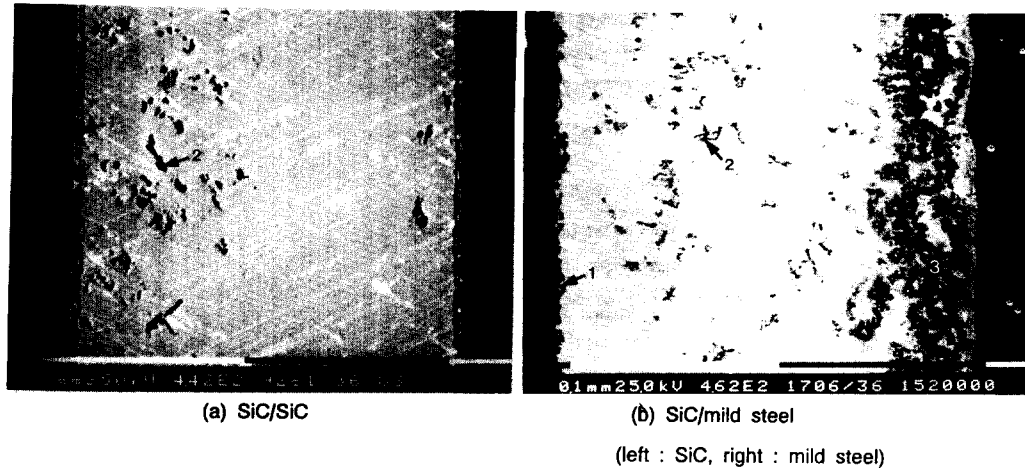
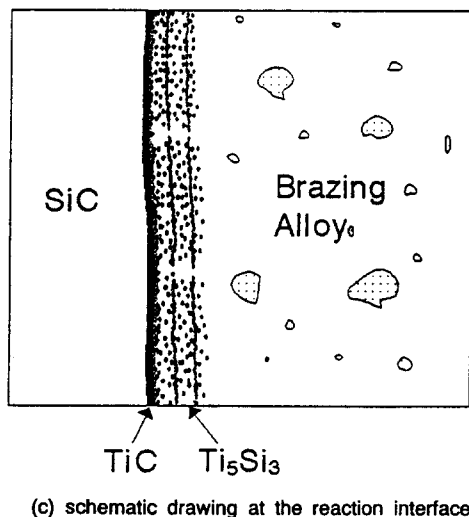


Fig 3. Micrographs and a schematic drawing at the reaction interface of the SiC/SiC and SiC/mild steel joints brazed by the Ag-5at%Ti alloy at 985 °C for 10 min. with 0.2 mm brazing gap.

의 형태가 일부에서 부서졌으며, 브레이징 합금 내부로 분산되어 나갔다. 그러나 근본적으로 SiC/SiC 브레이징의 미세조직과 거의 차이가 없다. SiC/연강 브레이징에서 연강측에 인접하여 Fe-Ti 상들이 존재하였다.

4점 굽힘시험 결과에서는 SiC/SiC, SiC/연강 브레이징된 시편에서 각각 187MPa, 189MPa의 매우 비슷한 접합강도를 얻었다⁸⁾. 일반적으로 세라믹/금속 브레이징의 경우에는 세라믹과 금속의 열팽



(c) schematic drawing at the reaction interface

Tibal. 1 Chemical analysis results by EDX on the spots pointed at each photo-micrograph.

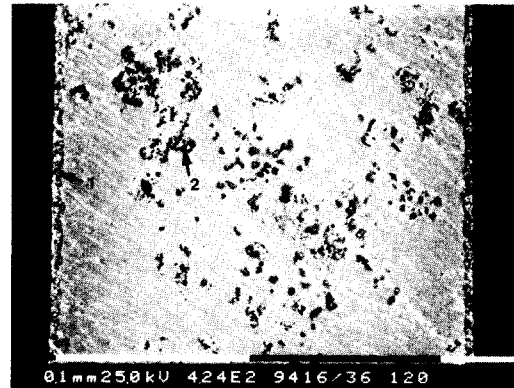
spot	Fig. 3(a)		Fig. 3(b)			Fig. 4(a)		Fig. 4(b)		Fig. 6			Fig. 11		
	Ag-5Ti SiC/SiC 985 °C/0.2mm		Ag-5Ti SiC/mild steel 985 °C/0.2mm			Ag-5Ti-2Fe SiC/SiC 985 °C/0.2mm		Ag-5Ti-5Fe SiC/SiC 985 °C/0.2mm		Ag-5Ti SiC/mild steel 1100 °C/0.2mm			Ag-5Ti SiC/mild steel 985 °C/0.05mm		
atom	1	2	1	2	3	1	2	1	2	1	2	3	1	2	3
Ag	16.8	7.9	27.0	11.8	10.4	28.9	13.7	27.7	11.5	5.4	8.6	1.5	12.9	31.7	1.0
Ti	61.2	92.1	52.5	87.9	32.1	51.0	40.9	26.1	46.3	35.1	35.0	34.0	37.4	42.1	46.1
Si	22.0	-	19.9	0.3	-	19.5	0.3	22.1	0.9	12.8	6.5	0.7	47.0	1.1	0.4
Fe	-	-	0.7	-	57.6	0.6	45.1	24.1	41.3	46.7	50.0	63.8	2.7	25.1	52.5

창계수와 탄성의 차이가 잔류응력의 크기에 영향을 미쳐 세라믹/세라믹 브레이징 보다 집합강도가 더 낮다. 본 연구에서는 이러한 차이가 브레이징 간격의 차이로 인해 발생함을 보여 주었다.

3.2 SiC/SiC 브레이징에서 Fe 첨가의 영향

SiC/SiC 브레이징에 비해 SiC/연강 브레이징에서 추가되는 차이점은 1) 연강의 열팽창계수 차이에 의한 열응력의 추가 도입과 2) 연강으로부터 Fe의 용해(dissolution)에 의한 미세구조 및 물성의 변화이다. 우선 SiC/SiC 브레이징에서 브레이징 합금내에 Fe를 인위적으로 첨가하여 연강과의 집합에 따른 열응력의 영향없이 Fe 용해의 영향만을 분리해 보았다. 2at%Fe, 5at%Fe를 첨가한 Ag-5at%Ti 합금을 사용하여 SiC/SiC 브레이징을 수행하고, 집합부의 미세조직과 집합강도를 평가하였다.

Fig. 4에서는 Ag-5at%Ti-2at%Fe 합금과 Ag-5at%Ti-5at%Fe 합금에 의해 브레이징된 시편의 집합계면에서의 미세조직을 보여준다. Table 1에서는 각 부분의 EDX 성분분석 결과를 나타낸다. 2at%Fe가 첨가된 경우에 집합계면에서 형성된 띠 형태의 Ti_5Si_3 반응층은 부서져서 브레이징 합금으로 분산해 나가기 시작하고, 일부에서는 그 모양이 남아 있다. 반응층(점(1))에는 Fe의 함량이 그다지 높지 않고 대부분 Ti과 Si으로 구성되어 있다. 브레이징 합금 내의 입자들은 EDX 분석 결과 대부분 Fe-Ti 화합물이었다. 따라서 대부분의 Fe 성분은 Fe-Ti 화합물로 바뀌고 미량의 Fe 성분이 Ti_5Si_3 반응층의 형상을 바꾼 것으로 보인다. 이것은 Ag-5at%Ti 합금을 사용하여 985 °C, 0.2 mm 브레이징 간격 하에서 SiC/연강 브레이징한 경우의 집합계면에서의 미세구조와 유사하다. 그러나 5at%Fe가 첨가되면 집합계면에서 Ti_5Si_3 반응층은 형성된 띠 형태가 완전히 사라지고, 반응층은 굵고 치밀해졌다. 여기서는 상당량의 Fe가 검출되어 있어서 단순히 Ti_5Si_3 반응층이라기 보다는 Ti-Si-Fe 사이의 복합적인 반응층이 형성된 것으로 보인다. 브레이징 합금 내에 입자들은 역시 대부분 Fe-Ti 화합물이었다. SiC/연강의 브레이징에서는 용해된 Fe가 연강층에 인접하여 Fe-Ti 화합물을 형성하였으나, Fe를 브레이징 합금내에 첨가한 경우에는 브레이징



(a) Ag-5at%Ti-2at%Fe



(b) Ag-5at%Ti-5at%Fe

Fig. 4. Micrographs of the SiC/SiC joints brazed by the Ag-5at%Ti-2at%Fe and -5at%Fe alloys.

합금 내에 전반적으로 Fe-Ti 합금이 존재하였다.

Fig. 5에서는 4점 굽힘시험결과를 보여준다. 집합강도는 2at%Fe가 첨가된 경우에는 190MPa로서 Fe가 첨가되지 않은 경우의 187MPa와 큰 차이가 없었으며, 5at%Fe가 첨가된 경우에는 181MPa로서 약간 감소하는 경향이 있으나, 거의 차이가 없었다. 즉 브레이징 합금 내에 소량의 Fe의 첨가는 브레이징 합금의 미세조직에는 상당히 영향을 미치나 집합강도에 큰 영향이 없음을 알 수 있었다. 이것으로부터 SiC/연강 브레이징에서 연강으로부터 용해된 소량의 Fe에 의한 미세조직과 물성 변화는 집합강도에 큰 영향을 미치지 않음을 알 수 있다.

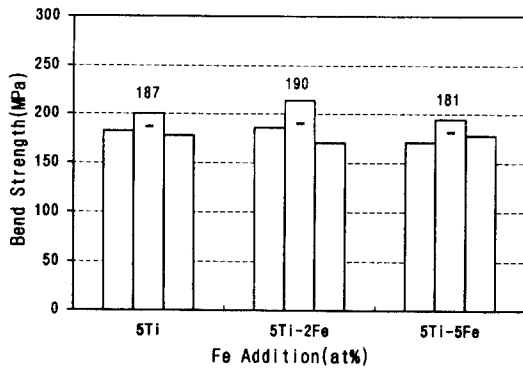


Fig 5. Four-point bend strength of the SiC/SiC joints brazed by the Ag-5at%Ti-2at% Fe and -5at%Fe alloys. (values in the graph : mean bend strength)

3.3 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징에서 브레이징 온도의 영향

브레이징 온도는 브레이징 시공과정에서 중요한 공정변수이다. 브레이징 온도의 영향을 보기 위해서는 Ag-5at%Ti 합금을 사용하여 985, 1040 및 1100 °C의 온도를 선택하였다. 1100 °C 이상의 온도에서는 Ag 성분의 심한 증발로 인해 실용적이지 못하다. 브레이징 온도의 상승은 접합계면 반응을 가속화시키며, SiC/연강 브레이징에서는 더 많은 Fe의 용해를 일으킬 것으로 생각된다.

Fig. 6에서는 1100 °C에서 SiC/연강 브레이징한 경우의 미세조직을 보여준다. SiC/연강 브레이징에서도 Ti_5Si_3 반응층의 형상은 굵고 치밀하게 변하였으며 브레이징 합금 내에는 많은 입자들이 생성하였다. SiC/SiC 브레이징의 경우에도 Ti_5Si_3 반응층이 매우 치밀하고 굵어졌다. Table 1에서는 Fig. 6의 각 부분에 대한 EDX 성분분석한 결과를 보여준다. Ti_5Si_3 반응층과 브레이징 합금 내의 입자들에서 Fe가 다량 검출되어 1100 °C에서 SiC/연강 브레이징할 때 연강으로부터 많은 Fe 성분이 용해되었음을 알 수 있다.

Fig. 7에서는 SiC/SiC 및 SiC/연강의 브레이징에서 브레이징 온도 변화에 따른 접합강도의 변화를 보여준다. SiC/SiC 브레이징에서 985 °C와 1040 °C의 브레이징 온도에서는 접합강도가 각각 187 MPa와 186 MPa로서 거의 동일하였으나, 1100 °C

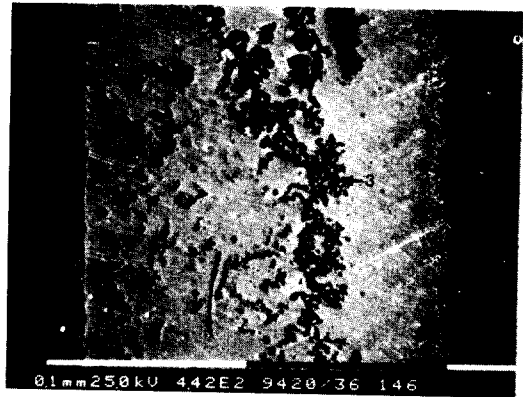


Fig 6. Micrograph of the SiC/mild steel joint brazed at 1100 °C.

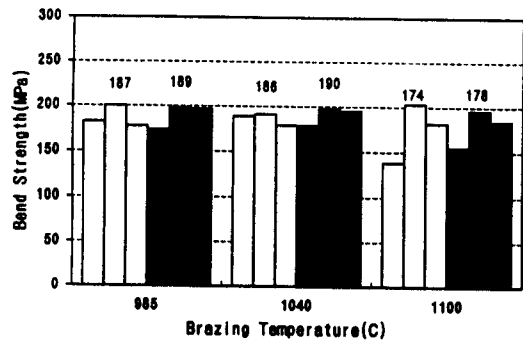


Fig 7. Four-point bend strength of the SiC/SiC and SiC/mild steel joints brazed at the different brazing temperature. (□ : SiC/SiC, ▨ : SiC/mild steel, values in the graph : mean bend strength)

의 브레이징 온도에서는 174 MPa로서 접합강도가 다소 감소하였다. SiC/연강 브레이징에서도 역시 985 °C와 1040 °C에서 브레이징한 경우에는 접합강도가 189 MPa과 190 MPa로 거의 비슷하였으나, 1100 °C에서 브레이징한 경우에는 접합강도가 178 MPa로서 다소 감소하였다. 그러나 1100 °C 이하에서 SiC/SiC 브레이징과 SiC/연강 브레이징 사이의 접합강도는 거의 차이가 없었다. 이것은 연강으로부터 브레이징 합금 내에 Fe의 용해는 접합강도에 거의 영향이 없다는 것을 의미한다.

3.4 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징에서 브레이징 간격의 영향

Fig. 8에서는 역시 Ag-5at%Ti 합금을 사용하고 브레이징 간격을 0.2 mm에서 0.1 mm, 0.05 mm로 감소시켰을 때 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징한 시편들의 4점 굽힘시험 결과를 보여준다. 브레이징 간격의 변화는 접합강도에 매우 큰 영향을 미쳤음을 보여준다.

특히 SiC/SiC 브레이징에서 브레이징 간격을 0.2 mm에서 0.1 mm로 감소시켰을 때 평균 접합강도는 187 MPa에서 263 MPa로 크게 증가하였다. 그러나 브레이징 간격을 0.05 mm로 더욱 줄이면 접합강도는 112 MPa로 크게 감소하였다. Fig. 9(a)에서는 0.1 mm의 브레이징 간격과 함께 SiC/SiC 브레이징한 시편들 중 267 MPa의 가장 높은 접합강도를 얻은 시편의 파단면을 보여준다. 전반적인 파단면의 구성은 다른 경우와 큰 차이가 없이 대부분 SiC이며, 인장하중을 받은 면에서는 주로 SiC와 반응층 사이의 접합계면이나 SiC로 구성되어 있

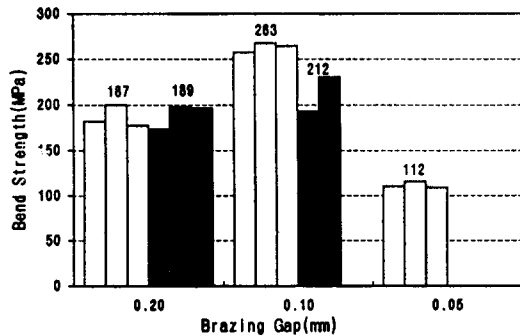
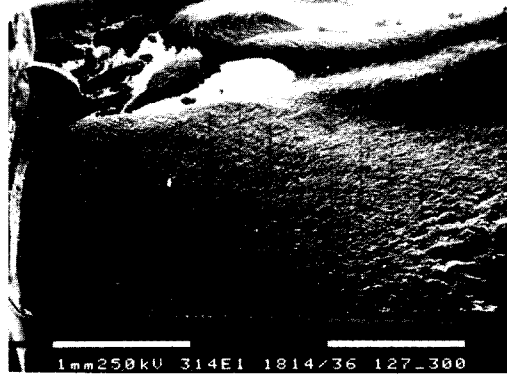
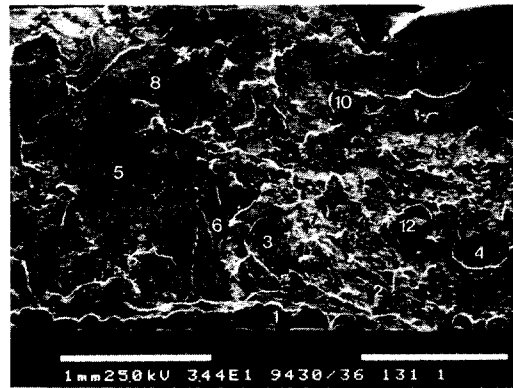


Fig 8. Four-point bend strength of the SiC/SiC and SiC/mild steel joints brazed with the different brazing gap.
 (□ : SiC/SiC, ▨ : SiC/mild steel, values in the graph : mean bend strength)



(a) SiC/SiC joint brazed by the Ag-5at%Ti alloy at 985 °C with 0.1 mm brazing gap



(b) SiC/SiC joint brazed by the Ag-5at%Ti alloy at 985 °C with 0.05 mm brazing gap

Fig 9. Fracture surfaces of the specimens having the highest (a) and lowest (b) bond strength at the four-point bend test.

Table 2. Chemical analysis results by EDX on the spots shown in Fig. 8(b).

	(at%)											
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Ag	-	6.3	11.3	10.3	1.9	10.1	4.1	9.5	3.5	-	5.9	-
Ti	0.2	77.8	69.6	63.0	71.7	67.4	76.2	73.7	70.3	45.0	72.5	36.1
Si	99.8	15.9	19.1	26.7	26.4	22.5	19.7	16.8	26.2	55.0	21.6	63.9



Fig 10. Appearance of the SiC/mild steel joint fractured after cooling from brazing temperature.

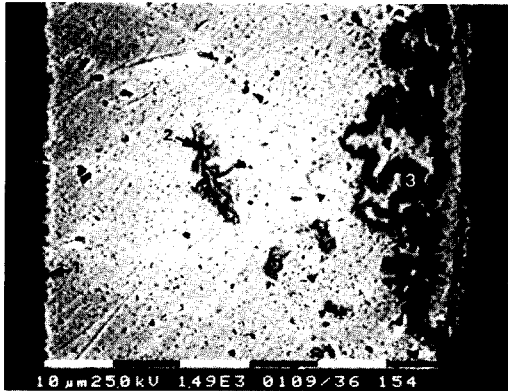


Fig 11. Micrograph of the SiC/mild steel joints brazed with 0.05 mm brazing gap.

다. Fig. 9(b)에서는 브레이징 간격을 0.05 mm로 하였을 때의 파단면을 보여준다. 이때는 브레이징 합금이 브레이징 간격 내를 완전히 채우지 못하고 부분적으로 기공들이 다수 존재한다. Table 2에서는 파단면의 각 표시한 부위에 대해서 EDX 성분분석한 결과이다. 파단면의 대부분에서 Ti이 다량 검출되어 많은 부분에서 SiC와 반응층 사이로 파단되었음을 짐작할 수 있다. SiC의 브레이징에서 SiC와

TiC 반응층 사이가 가장 취약하다고 알려져 있다*. 브레이징 간격이 0.05 mm로 매우 좁게 되면 브레이징 합금이 간격을 채우지 못하여 강도의 저하가 일어난 것으로 보인다.

Fig. 8의 SiC/연강 브레이징에서 접합강도 측정결과를 보면, 브레이징 간격이 0.2 mm에서 0.1 mm로 감소함에 따라 189 MPa에서 212 MPa로 다소 증가하였다. 그러나 0.1 mm 브레이징 간격과 함께 SiC/연강 브레이징한 경우에는 절단 과정에서 3개 중 1개의 시편에서 균열이 발생하여 굽힘시험에서 제외하였다. 절단 후 균열이 발생하지 않은 시편에서는 0.2 mm의 브레이징 간격에 비해 높은 접합강도를 얻었다. 그러나 0.2 mm 브레이징 간격에서는 SiC/SiC 브레이징과 거의 같은 접합강도를 나타내었으나, 0.1 mm로 브레이징 간격이 줄어들면 SiC/SiC 브레이징에 비해서는 상당히 낮은 값을 나타낸다. 특히 0.05 mm 브레이징 간격과 함께 SiC/연강 브레이징을 한 경우에는 Fig. 10에서 보는 바와 같이 브레이징 후 냉각과정에서 SiC를 통하여 완전히 파단되어 굽힘시험용 시험편을 제작할 수 없었다. 그러나 브레이징 간격에 브레이징 합금이 채워지지 않은 부분은 관찰할 수 없었다. Fig. 11에서는 0.05 mm 브레이징 간격으로 SiC/연강 브레이징한 시편의 접합면의 미세조직을 보여준다. SiC/SiC 브레이징에서와는 달리 브레이징 간격이 채워지지 않은 부분은 관찰되지 않았다. 브레이징 간격이 줄어들더라도 미세조직은 0.2 mm의 경우와 큰 차이가 없었다.

4. 결 토

우선 985 °C/0.2 mm 간격으로 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징하였을 때 접합강도의 차이는 거의 없었다. 또한 Ag-5at%Ti에 5at%Fe를 첨가한 합금을 사용하여 SiC/SiC 브레이징하였을 때도 접합면의 Ti_3Si_3 반응층에는 Fe가 다량 검출되었고, 미세조직이 상당히 변화하였으나, 접합강도는 거의 차이가 없었다. 브레이징 온도를 상승시키면 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징 모두의 접합면에서 Ti_3Si_3 반응층의 미세조직은 더욱 치밀해지며, 특히 SiC/연강 브레이징에서는 Ti_3Si_3 반응층 내에 다량의 Fe가 검출되었으며 브레이징 합금 내에는 다량의 Fe-Ti 및 Fe-Ti-Si 화합물이 생성되었다. SiC/

SiC 및 SiC/연강 브레이징의 경우 모두 1040°C에서 접합강도의 변화가 거의 없었으며, 1100°C로 상승하면 접합강도가 다소 감소하였다. 그러나 현재의 온도 범위 내에서 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징 사이의 접합강도 차이는 거의 없었다. 이러한 결과들을 종합하면 브레이징 간격을 0.2 mm로 하여 브레이징 할 때는 브레이징 합금 내에 Fe 성분에 의해 Fe-Ti계 화합물이 생성하거나, Ti_5Si_3 반응층의 성분 및 미세조직이 변화하거나, 혹은 맞은편의 소재가 SiC이든 연강이든 무관하게 접합강도의 차이가 없었다. 접합강도가 브레이징 합금이나 Ti_5Si_3 반응층의 미세조직의 변화에 무관한 것은 실제 접합강도는 SiC와 TiC 사이의 접합강도에 의존하기 때문으로 보인다⁸⁾.

일반적으로 세라믹/금속 브레이징에서는 세라믹/세라믹 브레이징에 비해 접합강도가 떨어진다. 이것은 금속의 열팽창계수와 탄성의 차이가 접합계면 부근의 세라믹에 발생하는 인장 잔류응력의 크기에 영향을 미치기 때문이다. D. Munz¹⁰⁾ 등은 세라믹/금속 브레이징에서 접합계면 부근의 세라믹에 발생하는 잔류응력을 계산하였다. 잔류응력은 브레이징 간격(d)과 시편의 두께(t)의 비율(d/t)에 의존한다고 보고하였다. 브레이징 간격이 시편의 두께와 거의 같아지면 잔류응력에 금속의 영향이 완전히 사라지고 세라믹과 브레이징 합금 사이의 관계에만 의존한다. 그들은 Ag-Ti 브레이징 합금에 의한 Si_3N_4 /강의 브레이징에서 Si_3N_4 와 브레이징 합금 사이의 접합계면에서의 stress intensity factor (K)를 계산하였다. K 값은 d/t 가 작을 때는 강の影響을 많이 받으나, $d/t = 0.08$ 정도로 증가하면 K 값은 90% 정도 Si_3N_4 와 브레이징 합금 사이의 관계에만 의존하고 강에는 거의 영향을 받지 않는다. SiC 세라믹은 열팽창계수나 탄성면에서 Si_3N_4 에 비슷하며, 4점 굽힘시험에 사용된 시험편은 $d/t = 0.08$ 로서 브레이징 간격이 시편의 두께에 비해서 매우 넓다. 따라서 브레이징 간격을 0.2 mm로 하여 브레이징하였을 때 접합계면 부근의 SiC에 발생한 인장 잔류응력은 대부분 SiC와 브레이징 합금 사이의 열팽창계수와 탄성의 차이에만 주로 영향을 받은 것으로 보인다. 연강으로부터 용해된 Fe는 용해도가 0.1at%로 적어¹¹⁾ 브레이징 합금의 열팽창계수나 탄성에 크게 영향을 미치지 않은 것으로 보인다. 따라서 브레이징 간격이 0.2 mm일

때 접합강도는 순수히 SiC와 브레이징 합금 사이에 관련된 접합강도를 나타내는 것으로, 맞은편의 소재가 SiC 혹은 연강이든 혹은 브레이징 합금 내에 Fe의 용해에 의한 미세조직의 변화 등에는 큰 영향을 받지 않은 것으로 보인다.

브레이징 간격의 변화는 접합강도에 매우 큰 영향을 미쳤다. 브레이징 간격을 0.2 mm에서 0.1 mm로 감소시켰을 때 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징한 시편들 모두 접합강도가 증가하였다. 반면 브레이징 간격을 0.05 mm로 줄였을 때는 SiC/SiC 브레이징한 경우에는 접합강도가 크게 줄어들었으며, 그러나 이것은 브레이징 간격내로 브레이징 합금이 완전히 충전되지 않았기 때문으로 판명되었다. 반면 SiC/연강 브

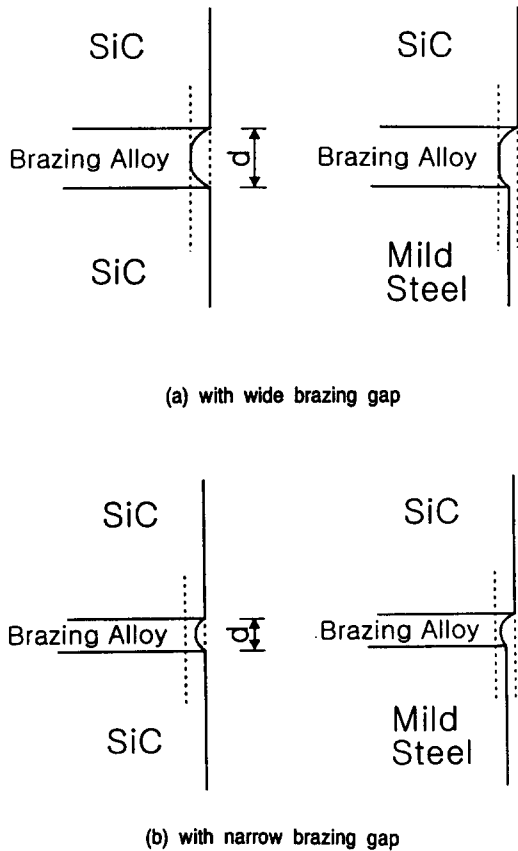


Fig 12. Drawings explaining the displacement of the brazing alloy after brazing with different brazing gaps(d) and different brazing couples.

레이징의 경우에는 브레이징 간격은 완전히 충전되었으나, 시편의 냉각과정에서 발생하는 응력을 견디지 못하고 파단하였다.

브레이징한 시험편은 브레이징 간격에 비해 시험편의 치수가 크기 때문에 큰 잔류응력이 존재하고 있으나, 접합강도 측정용 시험편으로 절단하는 과정에서 잔류응력이 완화되어 재배치된다. 우선 각 소재들의 열팽창계수를 보면 SiC ; $4.2 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, Ag ; $18.9 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, 연강 ; $12.5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ 으로서 SiC와 Ag 사이에 열팽창계수 차이가 가장 크다^{12,13)}. 또한 브레이징 합금의 주성분인 Ag와 연강 사이에도 상당한 열팽창계수의 차이가 존재한다. SiC/연강 브레이징에서는 냉각과정에서 SiC보다 브레이징 합금이나 연강의 수축이 더 크다. 이때 접합면의 가장자리 부근의 SiC에 인장잔류응력이 발생한다. Fig. 12에서는 브레이징 후 접합강도 측정용 시험편으로 절단하였을 때 시험편의 변형상태를 도식적으로 나타내었다. Fig. 12(a)에서는 브레이징 간격이 넓을 때 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징에서 변형상태를 도식적으로 보여준다. 이때는 SiC에 발생하는 잔류응력은 SiC와 브레이징 합금 사이의 관계에만 의존하며, 따라서 SiC/SiC와 SiC/연강 브레이징에서 거의 같은 잔류응력이 발생하며, 접합강도도 거의 동일하다. Fig. 12(b)에서처럼 브레이징 간격이 좁아지면 맞은 편의 소재가 브레이징 합금의 수축에 영향을 미친다. SiC/SiC 브레이징에서는 브레이징 합금 수축은 맞은 편의 SiC에 의해 제한되고 따라서 SiC에 발생하는 잔류응력이 감소하여 접합강도가 상승한 것으로 보인다. 브레이징 간격이 더욱 줄어들면 브레이징 간격 내에 브레이징 합금의 충전이 어려워져서 오히려 접합강도가 감소한 것으로 보인다. SiC/연강 브레이징에서도 연강의 열팽창계수가 브레이징 합금에 비해 상당히 작기 때문에 브레이징 합금의 변형 억제 효과가 상당히 있을 것이다. 따라서 브레이징 간격이 줄어들면 잔류응력이 감소하여 접합강도가 다소 상승하는 것으로 보인다. 그러나 브레이징 간격이 더욱 줄어들면 인장강도가 높고 연성이 부족한 연강이 직접 SiC에 잔류응력의 발생에 영향을 미쳐 오히려 접합강도가 감소할 것으로 보인다. 브레이징 간격이 0.05mm로 더욱 줄어들면 SiC/연강 브레이징 후 냉각과정에서 이미 SiC를 통하여 완전히 균열이 발생하였다. 이것은 브레이징 간격이 시편의 치수에 비해 매우 좁

기 때문에 연강의 수축이 직접 SiC에 발생하는 잔류응력에 영향을 미쳤기 때문으로 보인다. 현재로서 잔류응력의 분포상태는 알 수 없으며, micro-XRD나 FEM에 의한 계산 등의 보다 상세한 연구가 필요하다. 결국 SiC/연강 브레이징에서는 시편의 치수와 브레이징 간격 사이의 관계에 따라 잔류응력은 크게 달라질 것으로 보이며, 높은 접합강도를 얻기 위해서는 시편의 치수와 관련하여 브레이징 간격의 적절한 조절이 이루어져야 한다.

5. 결 론

Ag-5at%Ti 브레이징 합금에 5at%까지 Fe를 첨가하여 SiC/SiC 브레이징하였을 때 접합면의 미세조직은 상당히 변화하였으나, 접합강도는 거의 차이가 없었다.

브레이징 온도를 상승시키면 특히 SiC/연강 브레이징에서 접합면에서의 Ti_5Si_3 반응층과 브레이징 합금의 미세조직은 크게 변화하였다. 접합강도는 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징의 경우 모두 1040°C에서는 거의 변화가 없었으나, 1100°C로 상승하면 다소 감소하였다. 그러나 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징 사이의 접합강도 차이는 거의 없었다.

브레이징 간격의 변화는 접합강도에 매우 큰 영향을 미쳤다. 브레이징 간격을 0.2 mm에서 0.1 mm로 감소시켰을 때 접합강도는 SiC/SiC 브레이징에서는 187 MPa → 263 MPa로 크게 증가하였으며, SiC/연강 브레이징에서는 189 MPa → 212 MPa로 다소 증가하였다. 반면 SiC/SiC 브레이징에서 브레이징 간격을 0.05 mm로 줄였을 때는 접합강도가 112 MPa로 크게 줄어들었다. 이것은 브레이징 간격내로 브레이징 합금이 완전히 충전되지 않았기 때문으로 판명되었다. 반면 SiC/연강 브레이징의 경우에는 브레이징 간격은 완전히 충전되었으나, 시편의 냉각과정에서 발생하는 응력을 견디지 못하고 파단하였다.

결국 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징에서 접합강도는 접합면에서의 Ti_5Si_3 반응층과 브레이징 합금의 미세조직에는 거의 영향이 없으며, 브레이징 간격과 시험편의 치수와의 비율에 가장 큰 영향을 받는다.

참 고 문 헌

1. T. W. Eagar : Ceramic-metal bonding research in Japan, Weld. J., Vol. 66, 1987, pp. 35.
2. M. E. Twentyman : High-temperature metallizing, J. Mater. Sci., Vol. 10, 1975, pp. 765.
3. J. A. Pask : From technology to the science of glass/metal and ceramic/metal sealing, Amer. Ceram. Soc. Bull., Vol. 66, 1987, pp. 1587.
4. H. Mizuhara and E. Huebel : Joining ceramic to metal with ductile active filler metal, Weld. J., Vol. 65, 1986, pp. 43.
5. H. K. Lee, S. H. Hwang and J. Y. Lee : Effects of the relative contents of silver and copper on the interfacial reactions and bond strength in the active brazing of SiC, J. Mater. Sci., Vol. 28, 1993, pp. 1765.
6. H. K. Lee and J. Y. Lee : Decomposition and interfacial reaction in brazing of SiC by copper-based active alloy, J. Mater. Sci. Lett., Vol. 11, 1992, pp. 550.
7. H. K. Lee and J. Y. Lee : A study of the wetting, microstructure and bond strength in brazing SiC by Cu-X (X=Ti, V, Nb, Cr) alloys, J. Mater. Sci., Vol. 31, 1996, pp. 4133.
8. 이형근, 이재영 : Ag-Ti계 합금을 사용한 SiC/SiC 및 SiC/연강 브레이징에 대한 연구, 대한용접학회지, Vol. 14, 1996, pp. 270.
9. Y. Ikuhara, H. Kurishita and H. Yoshinaga : Grain boundary and high-temperature strength of sintered SiC, Yogyo-Kyokai-Shi, Vol. 95, 1987, pp. 76.
10. D. Munz, M. A. Sckuhr and Y. Yang : Thermal stresses in ceramic-metal joints with an interlayer, J. Am. Ceram. Soc., Vol. 78, 1995, pp. 285.
11. T. B. Massalski : Binary Phase Diagram Vol. 1, ASM, Metal Park, Ohio, 1986, pp. 105.
12. R. S. Krishnan, R. Srinivasan and S. Devanarayanan : Thermal Expansion of Crystals, Pergamon Press, Oxford, 1979.
13. 柳田博明 : ファインセラミックス 事典, 技報堂出版, 1987.