

질화규소/브레이징합금 계면에 형성된 반응생성물의 미소조직과
접합대상금속의 역할

(Role of Adhered Metal and Microstructure of Reaction Product
formed at the Silicon Nitride/Brazing Alloy Interface)

한국표준과학연구원 소재특성평가센타 李愚天, 權五陽
서울대학교 공과대학 姜春植

1. 서 론

Cu-Ag-Ti계 합금에 의한 질화규소와 스테인리스강 접합의 경우 질화규소와 브레이징합금 계면에 형성된 반응생성물은 1083 K 조건에서 Ti_5Si_4 (Orthorhomhic, $a_0=6.645 \text{ \AA}$, $b_0=6.506 \text{ \AA}$, $c_0=12.69 \text{ \AA}$) 및 $FeTiSi$ (Orthorhombic, $a_0=6.997 \text{ \AA}$, $b_0=10.83 \text{ \AA}$, $c_0=6.287 \text{ \AA}$)로 보고하였다¹⁾. 그러나, 브레이징온도가 1163 K 이상이 되면 접합금속성분인 Fe의 거동이 크게 변화하게 되며 접합강도도 크게 변화하게 되는데, 이 Fe가 질화규소와의 계면화학반응과 관련이 있는가, 또한 Fe가 계면에서 어떠한 분포로 존재하고 접합강도에는 어떠한 영향을 미치는가에 관한 연구는 이미 보고되어 있는 질화규소/S45C 접합의 경우²⁻³⁾에서 조차 언급되지 않거나 매우 불명확하다. 따라서, 본 연구에서는 계면반응생성물의 미소조직과 미소화학의 분석을 통해 Fe 및 각 관련원소의 분포를 브레이징합금 및 세 종류의 접합대상재료에 따라 비교하고 접합강도와 연관시켜 고찰하였다.

2. 실험재료 및 방법

브레이징합금은 $11\Phi \times 0.15t$ 의 크기를 갖는 디스크 형상의 Cu-Ag-Ti(BT로 명명)과 Cu-Ag-Ti-Sn(BS로 명명), Cu-Ag-Ti-Al(BA로 명명)계로서 유도용해에 의해 제작하였다. 질화규소(Si_3N_4)는 소결조제로써 소량의 Al_2O_3 및 Y_2O_3 가 포함되어 있는 $\alpha-Si_3N_4$ 분말을 Hot press 한 후 HIP처리한 $12.7 \times 12.7 \times 4.8$ 의 정방형 시편을 사용하였고, 접합대상재료는 치수가 $10\Phi \times 5t$ 인 냉간기공된 상태의 304 스테인리스강 및 순동과 질화규소 등종 세라믹을 사용하였다. 브레이징 조건은 1163 K, 1.2 ks, 4×10^{-5} Torr로 하였으며, 접합시편은 전단강도시험용 치구⁴⁾에 설치한 후 인장시험기를 이용해 전단시험을 하였다. 이때 최대하중은 2 ton, Cross-head speed는 0.05mm/min으로 하였으며, 전단강도 값은 파괴시 전단하중값을 Lap area로 나눈 값을 취하였고, 동일 조건의 시편을 세번 측정해 얻은 값의 평균값을 취하였다. 미소조직관찰 및 화학분석은 EDS(Philips PV9900)가 장치되어 있는 주사전자현미경(AKASHI : ISI-DS130C)을 이용하였다.

3. 실험결과 및 고찰

Si_3N_4/STS 304 접합체의 계면반응층은 근본적으로 질화규소와 편석된 Ti과의 산화-환원반응으로 형성된 비화학양론적인 Titanium silicide층(원자비 $Ti:Si=5:4.65$)과 이층과 접합대상금속 성분인 Fe와의 고상반응으로 생성된 비화학양론적인 Iron titanium silicide ($Ti:Fe:Si=56:19:25$)층으로 구성된 층상구조를 형성하였다. 이에 반해 Si_3N_4/Cu 접합체는 접합대상금속인 Cu가 일부 확산해 들어간 단일층의 비화학양론적인 Ti-titanium silicide($Ti:Si=5:5-6:3$)만을 형성하고, Si_3N_4/Si_3N_4 접합체의 경우는 Ti 및 Si으로만 구성된 단일층의 비화학양론적인 Titanium silicide($Ti:Si=5:0.70-5:1.95$)만을

형성하였다. 즉, Titanium silicide의 Stoichiometry 및 제 2 반응층의 형성 유무는 접합대상재료의 종류에 의해 좌우된다고 할 수 있다. Si_3N_4 /STS 304 접합체의 경우 Cu-Ag-Ti계 합금에 Al이 첨가되었을 경우 접합대상금속의 영향인 Fe에 의해 부수적으로 형성되는 제 2의 반응층의 두께가 크게 감소하였으며 접합강도가 평균 202 MPa 까지 향상되었다. 즉, 접합대상금속의 영향인 제 2 반응층의 두께를 감소시킬 수 있을 때 고강도접합을 이룩할 수 있다. Si_3N_4 /Cu 접합체의 경우 Al이 첨가된 Cu-Ag-Ti계 합금을 사용하였을 경우, 0.6 μm 두께의 Cu를 포함하는 비화학양론적인 Ti-silicide 층 이외에 일부 Al 및 유리 Si을 포함하는 Cu-Ti계 금속간화합물이 0.6-4.7 μm 두께에 걸쳐 형성되었으며, 이 영역이 Si_3N_4 /Cu접합체의 경우의 잠재적인 제 2 반응층이 될 수 있다. 이러한 영역이 형성되었을 경우 접합강도는 급격히 감소하였다. 즉, 접합대상금속의 영향인 제 2 반응층의 두께를 감소시킬 수 있을 때 고강도접합을 이룩할 수 있다.

4) 결 론

제 2 반응층의 형성 유무 및 종류는 접합대상재료의 종류에 의해 좌우되고, 그 두께변화는 브레이징합금의 화학성분에 의해 좌우된다. 또한, 계면반응층이 단일층의 비화학양론적인 Titanium silicide 만이 형성되고, 이 층에 대해서 접합대상금속의 확산 및 반응의 정도가 최소화될 때 고강도접합을 이룩할 수 있다.(전단강도로 최고 평균 270 MPa이상).

참 고 문 헌

1. 이우천, 강춘식 : 대한금속학회지, 제29권, 6호(1992) 664
2. S. I. Tanaka : " Metal-Ceramic Joints " in Proceedings of the MRS Int'l Meeting on Advanced Materials, Vol. 8, Mater. Research Soci., (1988) 125
3. 田中俊一郎 : 鑄物, 第 62 卷, 第 1 號 (1990) 6
4. 이우천, 강춘식 : 대한금속학회지, 제 29 권, 4호(1991) 313