

알루미늄 및 알루미늄합금에 의한 질화규소 브레이징 접합체의  
강도분포와 계면조직(II)

(Interfacial Structure and Strength Distribution of Silicon  
Nitride Joints Brazed with Aluminium and Aluminium Alloys)

한국표준과학연구원 소재특성평가센터 이우천, 권오양  
서울대, 학교 공과대학 강춘식

### 1. 서 론

활성금속 Al은 Ti 이상으로  $Al_2O_3$ ,  $ZrO_2$ ,  $Si_3N_4$  등의 세라믹과의 반응성이 크고, 연성이 우수해 세라믹과 금속의 열팽창차이에 의해 유발되는 열응력을 완화시켜주는 효과가 크기 때문에 세라믹 접합용 삽입재로서 유익한 것으로 알려져 왔다. 그러나, 반응성을 가지려면 1050K 이상이 되어야 하고, 접촉각 50 도 이하의 충분한 젖음(Wetting)이 일어나려면 1373K 이상의 온도가 되어야 한다. 더욱이 Al의 활성 때문에 진공중에서도 액상 표면에 두꺼운 산화물이 형성되어 세라믹과의 반응전단 상에서 액상의 퍼짐성(Spreadability)이 악화된다는 단점을 갖는다. Al 및 일부 Al합금을 이용한 질화규소의 브레이징에 관한 연구는 주로 X.S.Ning, M.Naka 와 T.Okamoto<sup>1-3)</sup>에 의해 중점적으로 이루어졌으나, 본고에서는 이들의 연구결과를 일부 재확인하고 합금계를 총 7 종류로 확장시켜 브레이징변수에 따른 접합강도, 계면조직 및 파괴양상을 전반적으로 조사하고자 하였다.

### 2. 실험 방법

질화규소는 소결조제로서  $Al_2O_3$  및  $Y_2O_3$ 를 사용한 12.7x12.7x4.8(mm)과 9.6x4.8(mm)크기의 정방형 및 원통형 시편을 사용하였고, 브레이징 재료는 Al 과 Al에 Ag, Sn, Mg, Zn, Si, Ni, Cu를 첨가한 형태를 사용하였다. 브레이징 조건은 1073 - 1373K, 0.6 - 7.2ks, 브레이징 분위기는 질소, 99.9% 아르곤,  $10^{-3}$ Torr 수준의 저진공 및  $10^{-5}$ Torr 수준의 고진공을 이용해 선택적으로 접합하였다. 강도평가는 특정치구<sup>4)</sup>를 사용해서 인장시험기에 의해 전단시험을 하였고, Cross-head speed는 0.05mm/min로 하였으며, 4 - 6 번 측정된 값의 평균 값을 취하였다. 조직분석 및 계면반응생물의 확인은 EDAX(Philips, PV 9900)가 장치되어 있는 SEM(AKASHI: ISI-DS130C)과 G-XRD(Rigaku Rotaflex RTP 300RE, 50kV, 150mA)를 이용하였다.

### 3. 실험결과 및 고찰

1073K, 3.6ks로 Al braze를 사용한 경우는 질소 및 저진공분위기에서 120MPa, Ar 및 고진공분위기에서 90-100MPa를 나타내었다. 첨가원소에 따른 상대적으로 높은 강도값을 보이는 분위기는 다음과 같다. 10wt% Cu를 사용한 경우 진공분위기하에서 100MPa전후, 10wt%Si 및 10wt%Ni 첨가합금의 경우 질소와 진공분위기에서 80-100MPa 전후, 10wt%Ag, Mg, Zn 첨가합금의 경우 역시 진공분위기하에서 115-135, 100-110, 85-95MPa전후. 전반적으로 진공분위기하에서 고강도가 얻어짐을 알수 있으며, Ar분위기하에서는 전반적으로 전단강도값이 낮아지고, Al 및 10wt%Si, 10wt%Ni 첨가합금의 경우 질소분위기하에서도 상대적으로 고강도접합을 이룩할수 있다. 10wt%Sn 첨가합금의 경우 분위기에 무관하게 50MPa 이하의 낮은 강도를 나타내었다. Al-Cu 및 Al-Ni합금의 경우 첨가원소량이 5wt%에서 30wt%로 증가함에 따라 강도값은 선형적으로 감소하나, Al-Si합금의 경우 농도에 따라 강도 편차가 큰 것으로 나타났다. 역시 브레이징온도 및 시간에 따른 강도시험결과에 의하면 Al-Cu 및 Al-Ni합금의 경우 선형적으로 감소 및 증가하나, Al-Si합금의 경우는 강도편차가 크게 나타나고 있다. 질화규소와 Al 및 Al합금 사이의 계면조직은 사진 1의 Al 및 Al-10wt%Si합금의 경우와 같이 전형적으로 다음과 같은 조직을 보인다. 질화규소쪽으로는 Al이 약 5에서 16at%까지 확산된 확산영역(I), Al braze쪽으로는 분해된 Si과 Al으로 구성된 층(II)의 두 영역으로 구분되며, 층(II)는 파단면 상에서 거의 항상 Dimple형태로 관찰된다. (I)은 원래 질화규소 결정입계에 존재하는 조성범위  $Si_2Al_3O_7N-Si_{12}Al_{18}O_{39}N_8$ 의 SiAlON 상에 Al이 확산해 들어가 질화규소 결정립내부까지 침투해 결국 15R AlN-type SiAlON을 형성할 것으로 예상되나 아직 확인되지 않고 있다. 층(II)도 분해된 Si 및 N과 Al 및 분위기로부터 도입된 산소와 반응해 SiAlON 형태나  $XSiO_2 \cdot YAl_2O_3$  형태로 형성될 것으로 사료되나 아직 확인되지 않고 있다. 파괴양상은 Cu-Ag-Ti계 합금<sup>4)</sup>을 사용한 경우와는 전혀 다른 세 종류(그림 1)로 분류된다. 약 100MPa이상

의 전단강도를 나타낼 경우 a)와 같이 브레이징합금과 계면층(I)을 통해 계면에 거의 수직하게 요철형태로 파괴되다가 세라믹 내부로 파괴가 이루어지며, 약 80MPa이하의 전단강도를 나타낼 경우(C)는 브레이징합금과 계면층(I)을 통해 계면에 거의 수직하게 요철형태로 파괴되는 특징을 보이고, 약 80-100MPa범위에서는 b)에서와 같이 브레이징합금과 계면층(I)을 통해 계면에 거의 수직하게 요철형태로 파괴되나 상당한 영역에 걸쳐 계면부근의 세라믹층이 국부적으로 깨져나간 특성을 보였다.

#### 4. 결 론

1. Al 및 7 종류의 Al합금을 조사한 결과 전반적으로 진공분위기가 질소 및 아르곤분위기보다 상대적으로 고강도가 얻어짐을 알수 있으며, Ar분위하에서는 전반적으로 전단강도값이 낮아지고, Al 및 10wt%Si, 10wt%Ni 첨가합금의 경우 질소분위기하에서도 상대적으로 고강도접합을 이룰수 있었다.

2. 수행된 모든 실험조건에서 가장 높은 강도값을 보이는 조건은 Al-10wt%Ag합금을 사용해서  $10^{-5}$ Torr의 고진공분위기로 1073K, 3.6ks동안 브레이징한 경우이며 최고 158MPa, 평균 134MPa를 나타내었다.

3. 계면층은 두 종류로 분류되며, 질화규소쪽으로는 Al이 약 5에서 16at%까지 확산된 확산영역(I)이 존재하고, Al braze쪽으로는 분해된 Si와 Al으로 구성된 층(II)으로 구분되며, 층(II)는 파단면 상에서 거의 항상 Dimple형태로 관찰된다.

4. Al 및 Al합금으로 브레이징한 질화규소 접합체의 전단강도시험시 관찰되는 파괴양상은 세 종류로 분류되며, 브레이징합금과 계면층(I)을 통해 계면에 거의 수직하게 요철형태로 파괴되다가 세라믹 내부로 파괴가 이루어질때 100MPa 이상의 고강도를 나타내었다.

#### 5. 참고 문헌

- 1) X. S. Ning, T. Okamoto, Y. Miyamoto, A. Koreeda and K. Suganuma ; J. Mater. Sci., 26 (91) 4142
- 2) X. S. Ning, T. Okamoto, Y. Miyamoto, A. Koreeda and K. Suganuma ; J. Mater. Sci., 24 (89) 2865
- 3) M. Naka, M. Kubo and I. Okamoto ; J. Mater. Sci., 22 (87) 4417
- 4) 이우천, 강춘식 ; 대한금속학회지, 30 (1992) 664

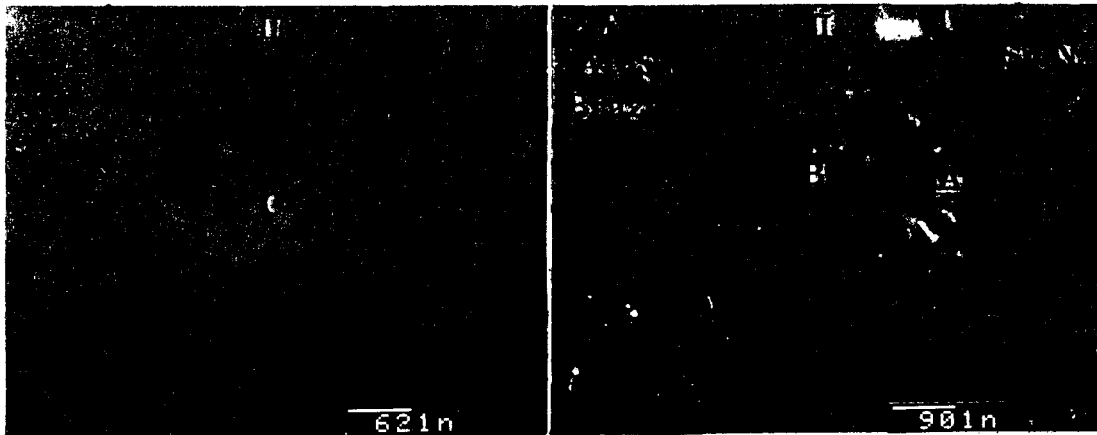


Photo 1. BE image of SEM showing the interfacial reaction products formed at the  $\text{Si}_3\text{N}_4$ / a)Al and b) Al-10wt%Si braze interface (I:Diffusion layer of Al into  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , II:reaction layer between Al braze and the dissociated components of  $\text{Si}_3\text{N}_4$ ..

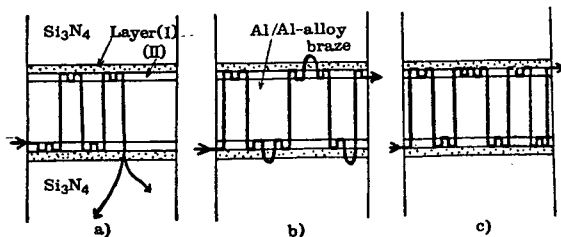


Fig 1. Schematics of fracture mode classified by shear test levels for the  $\text{Si}_3\text{N}_4$  joints brazed by Al and Al-alloys(a)  $>100\text{MPa}$ , b)  $80-100\text{MPa}$ , c)  $<80\text{MPa}$  ;  $\rightarrow$  : Fracture path).