

중간재가 질화규소/스테인레스 스틸 접합체의 굽힘강도에 미치는 영향

박상환 · 최영화 · 김태우*

한국과학기술연구원, 세라믹스 연구부

*국민대학교, 기계공학과

(1995년 1월 21일 접수)

Effects of Interlayers on the Bending Strength of Silicon Nitride/Stainless Steel Joints

Sang-Whan Park, Young-Hwa Choi and Tae-Woo Kim*

Division of Ceramics, Korea Inst. of Sci. and Tech.

*Dept. of Mechanical Eng., Kook-Min Univ.

(Received January 21, 1995)

요 약

활성금속 브레이징 방법으로 Mo, Cu, 및 Ni 중간재를 사용하여 접합된 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체에서 중간재와 브레이징 합금간의 반응 및 중간재의 사용이 접합체면 및 브레이징 합금의 조성 변화에 미치는 영향에 관하여 알아보았으며, Mo, Cu, 및 Ni 중간재 종류와 각 중간재의 두께 변화에 따른 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체의 상온 굽힘강도의 변화에 관하여 조사하였다. 열용력 결정요인이 작은 중간재가 접합후 질화규소에 발생되는 최대 잔류응력을 감소하여 접합체의 굽힘강도를 향상시키는데 효과적이었다. Cu/Mo 적층 중간재를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체에서 각 중간재 두께가 접합체의 굽힘강도를 변화에 미치는 영향에 관하여 조사하였으며, Cu와 Mo를 적층시킨 중간재의 사용은 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체의 굽힘강도를 현저하게 증가시켰다. Cu, Mo 다층 중간재를 사용한 접합체의 상온 최대 굽힘강도는 460 MPa^a였다.

ABSTRACT

The reactions between an active metal brazing alloy and interlayers, together with the effects of interlayer type on the interfacial microstructure change, were investigated for silicon nitride/stainless steel joint. The bending strengths were measured for joints with Mo, Cu, Ni interlayer type of different thicknesses. It was found that the interlayer with a low yield strength value is effective to improve the bending strength of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{stainless steel}$ joint. The maximum joint strength obtained at room temperature for a laminated Cu/Mo interlayer was about 460 MPa. The combined use of Mo and thin Cu layer was found to be effective in enhancing the bending strength for the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ joint.

Key words: Active metal brazing, Joining, Interlayer, Joining strength, Interface reaction

1. 서 론

내열성, 내부식성 및 경량성 등의 우수한 구조재료적 특성을 갖는 세라믹스는 최근 세라믹 가스 터빈 및 디젤 엔진 등과 같은 동적 구조물의 부품 소재로서 적용 가능성이 증대되고 있으나, 세라믹스의 취성 과정 특성 및 낮은 신뢰도 때문에 아직까지는 응력이 가해지는 동적 구조물의 부품으로서 실제응용은 극히 제한되고 있다. 세라믹스/금속 접합법은 세라믹스의 신뢰도를 높일 수

있을 뿐만 아니라 기존 금속재료에 대한 가격 경쟁력을 향상시킬 수 있기 때문에 구조 세라믹스를 금속재료로 구성된 기존의 동적 구조물의 주요 부품으로 대체할 수 있는 가장 효과적인 기술로 알려져 있다^[1,2].

활성금속브레이징 방법에 의한 세라믹스와 금속간의 접합은 일반적으로 고온에서 이루어지기 때문에, 세라믹스와 금속의 열적 기계적 특성 차이로 인하여 접착후 상온으로 냉각시 발생되는 잔류응력이 가장 큰 문제점으로 알려져 있다^[3,4]. 특히 열팽창계수의 차가 큰 질화

규소 또는 탄화규소와 금속간의 접합후 세라믹스에 인장방향의 큰 잔류응력이 발생되어 많은 경우에 있어서 접합온도에서 냉각시 세라믹스가 파괴되거나, 접합체의 접합강도가 크게 감소하게 된다. 세라믹스/금속 접합체에서 접합시 발생되는 잔류응력을 완화시키기 위한 방법으로 완충층을 접합모재 사이에 중간재로 삽입하는 방법이 있다. 접합체에서 발생되는 잔류응력을 효과적으로 감소시킬 수 있는 중간재는 항복강도가 낮은 연성금속, 열팽창 계수가 작은 내열금속 및 FGM(functionally gradient materials) 중간재등이 있으며, 특히 Cu 또는 Ni과 같이 항복강도가 낮은 연성금속을 중간재로 사용하는 것이 세라믹스/금속 접합체의 잔류응력 감소에 효과적이라고 알려지고 있다⁵⁻⁷⁾.

완충재를 사용한 질화규소/금속 접합체에서의 잔류응력 감소 기구 및 잔류응력을 효과적으로 완화시킬 수 있는 중간재에 대한 체계적인 연구는 아직까지 활발히 이루어지고 있지 않다. 본 연구에서는 활성금속 브레이징 방법으로 Ni, Cu, Mo 중간재를 사용하여 접합된 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체에서 사용된 중간재와 브레이징 합금간의 반응성 및 중간재의 사용이 접합계면에서 각 성분의 변화에 미치는 영향에 관하여 조사하였다. 중간재 종류 및 두께 변화에 따른 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체의 굽힘강도 변화를 조사하였다. 또한, 열적 기계적 특성이 다른 두 종류의 중간재가 적용된 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}/\text{Mo}/\text{S.S.316}$ 접합체에서 중간재의 구조가 접합체의 굽힘강도 변화에 미치는 영향에 관하여 조사하였다.

2. 실험방법

브레이징 실험에 사용된 세라믹스 및 금속 모재는 GTE사의 $\text{Si}_3\text{N}_4(\text{PY6})$ 및 삼미 종합특수강(주)사의 stainles steel 316이었으며, 순도 99.9% 이상의 Cu, Ni, 및 Mo를 접합체에 발생되는 전류응력을 감소시키기 위한 중간재로서 사용하였다. 활성금속 브레이징 합금은 GTE Wesgo에서 구입한 50 μm 두께의 Cusil ABA이었으며, 각 소재의 열적, 기계적 특성을 Table 1에 요약되었다.

4-점 굽힘강도 시험용 접합체 제조에 사용된 질화규소 및 스테인레스 스틸 시편의 각각의 크기는 $3 \times 4 \times 15$ mm이었으며, Cu, Ni 및 Mo 중간재의 크기는 $4 \times 5 \times 0.1 \sim 1.2$ (두께) mm이었다. 질화규소 접합부위는 표면 거칠기가 0.5 μm 되게 표면 연마를 하여 사용하였으며, 중간재 및 스테인레스 스틸은 1000 grit SiC paper로 연마하여 금속의 표면 산화피막을 제거한 후 사용하였다. 표면 연마된 접합모재, 중간재 및 브레이징 합금은 trich-

Table 1. Mechanical Properties for Materials Used in the Joint

material	Young's modulus (GPa)	Poisson's ratio	Thermal expansion coefficient ($10^{-6}/^\circ\text{C}$)	Yield strength (MPa)
Si_3N_4	300	0.22	3.2	---
Cu	120	0.37	17.7	70
Stainless Steel 316	150	0.25	14.0	240
Mo	320	0.25	5.7	565
Ni	207	0.31	13.3	138
Cusil ABA (Ag-35 Cu-2Ti)	83	0.36	18.5	271

loroethylene, acetone 및 iso-propanol 용액에서 ultrasonic cleaner를 사용하여 각 용액에서 5분간 세척하였다. Si_3N_4 /중간재/S.S.316 접합체를 제조하기 위하여 중간재 양쪽에 브레이징 합금을 적층하여 모재 사이에 위치시킨후 Astro사의 vacuum furnace(Model 1100-2560-W2)을 사용하여 850°C에서 10분간 10^{-5} torr 이하의 진공 분위기하에서 브레이징 하였다. 브레이징 후 접합체의 250°C까지 냉각속도는 5°C/min이었으며, 브레이징시 접합계면에서 발생되는 결함을 최소화하기 위하여 접합계면에 250 Pa 정도의 압력을 가하였다.

접합체의 굽힘강도는 Instron(Model 4200)을 사용하여 5개 이상의 시편에 대하여 4-점 굽힘강도방법으로 상온에서 측정하였다. 굽힘강도 측정시 사용된 cross head speed는 0.5 mm/min, upper span은 10 mm, lower span은 20 mm이었다.

Si_3N_4 /중간재/S.S.316 접합체의 중앙을 절단하여 접합단면을 표면연마한 후 Si_3N_4 /브레이징 합금 접합계면 근방에서 중간재 종류에 따른 성분 및 미세구조 변화를 SEM(scanning electron microscope) 및 EPMA(electron probe micro-analyzer)를 사용하여 조사하였다.

3. 결과 및 고찰

브레이징된 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체에서 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cusil ABA}$ 접합계면의 미세구조 및 Si, Ti, Ag 및 Cu의 EPMA 분석은 Fig. 1에서 보여주는 것과 같다. Si_3N_4 와 Ag-Cu-Ti계 브레이징 합금 사이에서의 계면 반응은 열역학적

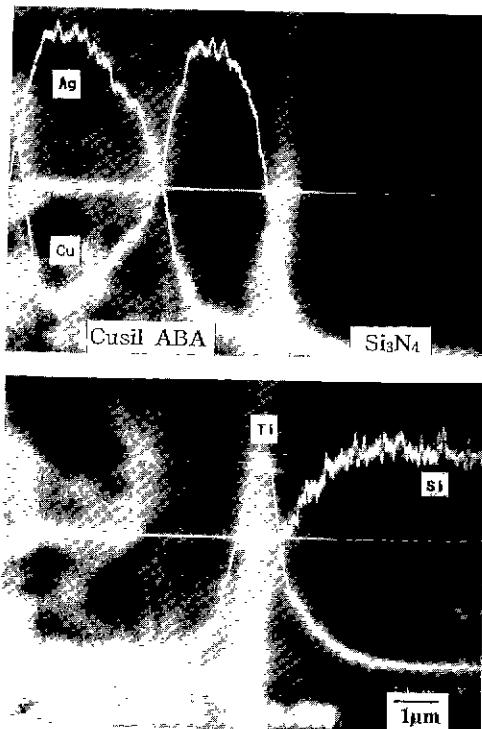


Fig. 1. SEM microstructure and EPMA analysis of Si_3N_4 /Cusil ABA interface of Si_3N_4 /Cusil ABA/S.S.316 joint brazed for 10 min. at 850°C.

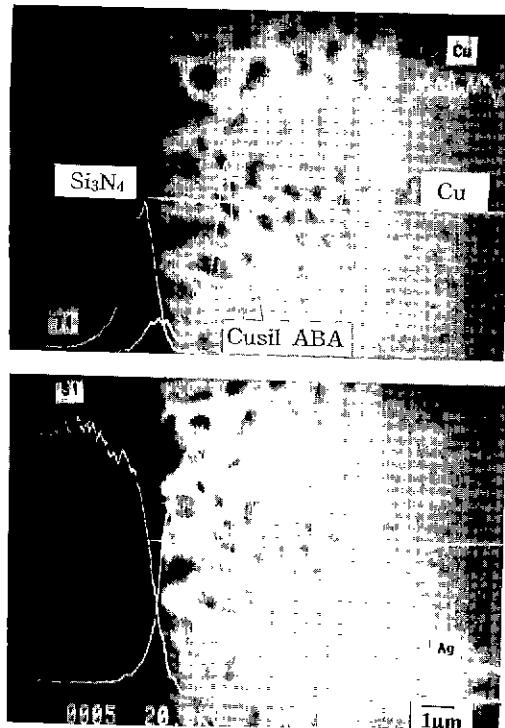


Fig. 2. SEM microstructure and EPMA analysis of Si_3N_4 /Cusil ABA/Cu interface of Si_3N_4 /Cusil ABA/Cu/Cusil ABA/S.S.316 joint brazed for 10 min. at 850°C.

자료로부터 예측할 수 있으며, 계면 반응물의 형성에 관해 많은 연구가 수행되어 왔다. Si_3N_4 /Cusil ABA 접합계면에서는 활성금속 Ti와 질화규소 사이에서의 화학반응으로 TiN , Ti_2N 및 Ti_5Si_3 가 형성된다고 알려져 있으나, 명확한 반응기구의 규명은 이루어지고 있지 않다^{8,9}. Si_3N_4 /Cusil ABA 접합계면에서는 활성금속 Ti와 Si_3N_4 사이에서 열역학적으로 안정한 TiN 및 titanium silicide 등의 계면반응물을 형성하기 위한 화학반응으로 Ti가 접합계면에 편석되었으며, 브레이징 합금내부에서는 Ti가 관찰되지 않았다. Si은 Si_3N_4 에서 Si_3N_4 /Cusil ABA 접합계면 반응층으로 확산이동 되었으며, 계면반응층의 Si은 Ti 와 Si_3N_4 화학반응으로 생성되는 free Si이 활성금속 Ti와 반응으로 titanium silicide상을 형성함에 따른 것으로 생각된다. 브레이징후 나타나는 접합계면 반응물층의 두께는 0.5~0.7 μm 정도이었다. 브레이징 합금 성분인 Ag 및 Cu는 계면반응층으로 확산이동된 것으로 나타났으나, Si_3N_4 및 활성금속 Ti와 열역학적으로 안정한 화학반응물이 없기 때문에 Ag 및 Cu 확산이동의 주된 구동력은 계면에서의 농도차 때문인 것으로 생각된다. Fig. 2는 브레이징된 Si_3N_4 /Cu/S.S.316 접합체에서 Si_3N_4

/Cusil ABA 접합계면의 미세구조 및 EPMA 성분분석을 보여준다. 접합부위에서 계면반응층 및 브레이징 합금내의 공정조직이 명확히 구분되어 나타나며, 계면 반응층의 두께는 0.5~0.7 μm 정도로 Cu 중간재를 사용하지 않았을 때와 큰 차이가 없었다. Si_3N_4 /Cu/S.S.316 접합체에서 Si_3N_4 /Cusil ABA/Cu 접합계면의 미세구조 및 EPMA 성분분석 결과는 Si_3N_4 /S.S.316 접합체에서와 비교하여 큰 차이는 관찰되지 않았다. 따라서, Cu 중간재의 사용은 접합체 계면 반응물 및 브레이징 합금 조성에 큰 영향을 주지 않을 것으로 판단된다.

Fig. 3은 Si_3N_4 /Mo/S.S.316 접합체에서 Si_3N_4 /Cusil ABA/Mo 접합계면의 미세구조 및 Ti , Cu , Ag 및 Mo 성분의 EPMA 성분분석을 보여준다. Si_3N_4 /Cusil ABA 접합계면의 EPMA 원소 분석결과는 Si_3N_4 /Cu/S.S.316 접합체에서 Si_3N_4 /Cusil ABA 접합계면과 유사하게 나타났으나, 작은 양의 Mo가 브레이징 합금내로 확산이동되어 Si_3N_4 /Cusil ABA 접합계면에 인접한 곳에 편석되었다. Si_3N_4 /Cusil ABA 접합계면 부근에 나타난 Mo의 편석은 Ti 와 Si_3N_4 사이에서의 반응으로 생성된 free Si과

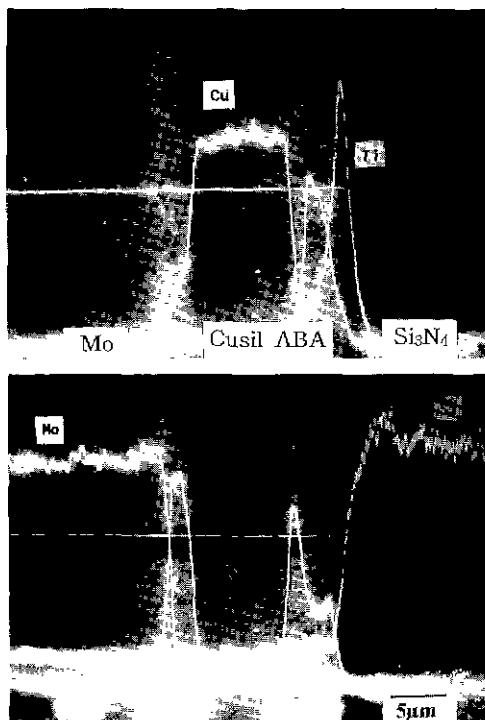


Fig. 3. SEM microstructure and EPMA analysis of Si_3N_4 /Cusil ABA/Mo interface of Si_3N_4 /Cusil ABA/Cu/Cusil ABA/S.S.316 joint brazed for 10 min. at 850°C.

브레이징 합금으로 확산이동한 Mo가 반응하여 Mo-Si 금속간 화합물의 형성에 의한 것으로 생각되며, 이 부위에서 Si 성분의 조성 변화도 Mo-Si 금속간 화합물의 형성 가능성을 보여준다. Si_3N_4 /Cusil ABA/Mo 계면의 브레이징 합금의 두께는 20 μm 정도로써 Si_3N_4 /Cusil ABA/Cu 접합계면에서보다 증가되었으며, 접합후 형성되는 브레이징 합금의 두께 차이는 브레이징 합금의 각 금속 소재에 대한 젖음성의 차이 때문으로 생각된다¹⁰⁾.

Ni를 중간재로 사용한 Si_3N_4 /S.S.316 접합체에서 Si_3N_4 /Cusil ABA/Ni 접합계면의 미세구조 및 Ti, Si, Ag, Cu 및 Ni 성분의 EPMA 성분분석은 Fig. 4에서 보여준다. Si_3N_4 /Cusil ABA/Ni 접합체에서 접합계면의 성분분석 결과는 중간재를 사용하지 않은 접합체 및 Cu, Mo 중간재를 사용한 접합체 접합계면과는 달리, Si_3N_4 /Cusil ABA 접합계면에서 계면 반응물층이 뚜렷이 구별되어 나타나지 않았다. EPMA 분석 결과로 부터 중간재로 사용된 Ni이 브레이징 합금으로 많은 양이 확산이동되었음을 알 수 있으며, Miyazawa 등¹¹⁾에 따르면 중간재로 사용된 Ni은 Ag-Cu-Ti계 브레이징 합금에 용해되어

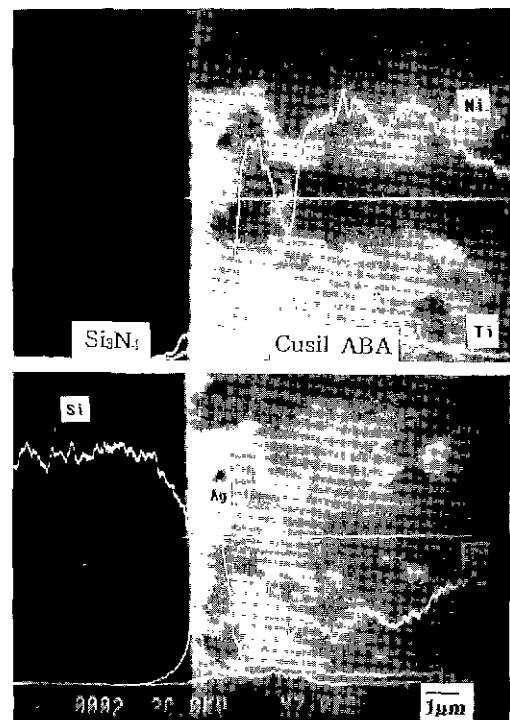


Fig. 4. SEM microstructure and EPMA analysis of Si_3N_4 /Cusil ABA/Ni interface of Si_3N_4 /Cusil ABA/Ni/Cusil ABA/S.S.316 joint brazed for 10 min. at 850°C.

Cu-Ni 또는 Ti-Ni 금속간 화합물을 형성하는 것으로 알려져 있다. 브레이징 합금내의 활성금속 Ti는 브레이징 합금에 용해된 Ni과 반응하여 금속간 화합물을 형성하기 때문에 Si_3N_4 /브레이징 합금 접합계면에서 형성되는 TiN 또는 titanium silicide 등 계면 반응물 형성에 참여하는 Ti의 양은 감소될 것으로 생각된다. 또한, 브레이징 합금내에 금속간 화합물의 형성은 브레이징 합금의 소성 강도를 증가시키기 때문에, 브레이징 합금의 소성변형에 의해 브레이징후 냉각시 발생되는 잔류응력의 완화효과를 감소시킬 것으로 생각된다.

Fig. 5는 Si_3N_4 /S.S.316 접합체에서 Cu, Ni 및 Mo 중간재의 두께에 따른 접합체의 4-점 굽힘강도의 변화를 활성금속 브레이징 접합된 Si_3N_4 / Si_3N_4 접합체의 굽힘강도와 비교하여 보여준다. Cusil ABA를 사용하여 같은 조건에서 접합된 Si_3N_4 / Si_3N_4 접합체의 굽힘강도는 670 MPa이었으며, 접합체의 파괴는 접합계면에서 일어나지 않고 접합계면에 균열한 Si_3N_4 에서 일어났다. 얇은 두께의 브레이징 합금과 Si_3N_4 사이에서도 이들 소재간의 열팽창계수차에 의하여 접합후 냉각시 Si_3N_4 에 잔류응

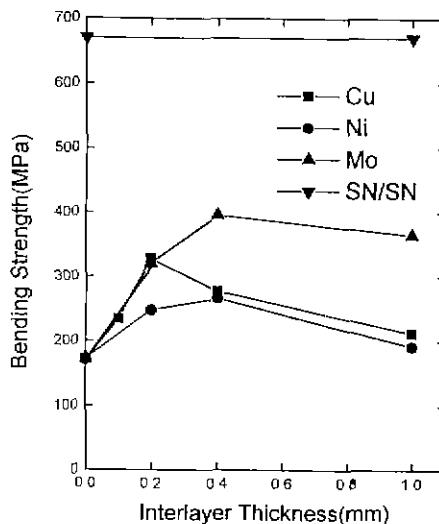


Fig. 5. Variation of 4-point bending strength of $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ joint with Ni, Cu, Mo single interlayer as a function of the interlayer thickness.

력이 국부적으로 발생되기 때문에, Si_3N_4 의 파괴강도를 감소시키는 것으로 생각된다. Johnson 등¹⁰⁾에 따르면 활성금속 브레이징된 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}_3\text{N}_4$ 접합체의 접합강도는 브레이징 합금의 두께가 증가됨에 따라 급격히 감소된다고 알려져 있다. 따라서, 50 μm 의 두께인 $\text{Cu}-\text{Si}-\text{Al}-\text{B}$ 를 사용하여 브레이징된 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ 접합체에서 Si_3N_4 와 스테인레스 스틸의 열팽창계수 차에 의해 발생되는 잔류응력을 최대한 감소시켰을 때 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ 접합체의 최대 굽힘강도는 670 MPa까지 증가될 수 있을 것으로 예상할 수 있다.

$\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ 접합체에서 연성금속 Cu 중간재의 사용은 접합체의 굽힘강도를 현저하게 증가시켰으며, Cu 중간재를 사용한 접합체의 굽힘강도 증가는 접합후 냉각시 질화규소와 금속간의 열팽창계수차에 의해 질화규소에 발생되는 잔류응력이 Cu의 소성변형에 의해 완화되었기 때문으로 생각된다. Cu 중간재의 두께가 0.2 mm일 때 최대 굽힘강도가 나타났으며, Cu 중간재의 두께가 증가함에 따라 굽힘강도는 감소하였다. 연성금속 Ni를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ 접합체에서는 Ni 중간재 두께에 따라 접합강도의 변화는 크게 나타나지 않았으나, Ni 중간재의 두께가 0.4 mm보다 증가하였을 때는 굽힘강도가 감소하였다. $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ 접합체에서 중간재 Ni의 굽힘강도 증가 효과는 Cu보다 작게 나타났으나, 두꺼운 Ni 중간재를 사용한 접합체에서는 Cu 중간재를 사용한 접합체와 비교하여 굽힘강도의 차이는 감소하였다.

다. 연성 중간재를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ 접합체에서 나타나는 굽힘강도 증가 효과의 차이는 Ni의 항복강도가 Cu에 비해 높고 Fig. 4에서 보여주는 것과 같이 브레이징 합금에 Ni이 용해되어 금속간 반응물을 형성시킴으로써 브레이징 합금의 소성강도를 증가시켜 접합체에 발생되는 잔류응력을 효과적으로 완화시키지 못하기 때문으로 생각된다. 일정 두께 이상의 Ni 또는 Cu 연성금속을 중간재로 사용한 세라믹스/금속 접합체에서 나타나는 굽힘강도의 감소는 세라믹스에 발생되는 응력집중요인(stress concentration factor)의 증가로 알려져 있으나⁶⁾, 정확한 규명은 아직까지 이루어지고 있지 않다.

열팽창계수가 작은 Mo를 중간재로 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ 접합체의 굽힘강도는 현저하게 증가되었으며, 굽힘강도 증가의 직접적인 요인은 Mo와 Si_3N_4 의 열팽창계수의 차가 작아 질화규소에 발생되는 잔류응력의 크기가 감소되기 때문으로 생각된다. 또한, $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ 접합체에서는 0.1 mm 두께의 Mo 중간재의 사용만으로도 질화규소에 발생되는 잔류응력을 효과적으로 감소시킬 수 있었으며 Mo 중간재의 두께가 0.4 mm일 때 접합체의 굽힘강도는 최대로 나타났다. Mo 중간재의 두께가 0.4 mm 이상일 때 Mo 중간재 두께 증가에 따른 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ 접합체의 굽힘강도의 변화는 크게 나타나지 않았다.

Fig. 6은 단일 중간재를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ 접합체의 굽힘강도 측정시 나타나는 접합체의 개략적인 파괴경로를 보여준다. 중간재를 사용하지 않은 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.}316$ 접합체 및 굽힘강도가 250 MPa 이하인 중간재를 사용한 접합체에서는 브레이징시 질화규소에 발생되는 잔류응력에 의해 Fig. 6(a)에서 보여주는 것과 같이 질화규소가 둠 형상으로 파괴되었다. 연성금속인 Cu 또는 Ni를 중간재로 사용한 접합체에서 파괴는 Fig. 6(b)에서 보여주는 것과 같이 굽힘강도 측정시 인장응력이 작용하는 부위의 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{brazing}$ 합금 접합체면에서 시작하여 질화규소 내부로 파괴가 진행되거나, $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{brazing}$ 합금 접합체면을 따라 파괴가 진행되었다. Cu 또는 Ni를 중간재로 사용한 접합체에서는 접합시 질화규소에 발생되는 잔류응력이 중간재의 소성변형에 의해 완화되기 때문에 접합체의 파괴는 파괴강도가 상대적으로 낮고 잔류응력의 집중이 높게 나타나는 접합체면에서 일어나며, 파괴는 큰 잔류응력이 발생되는 접합체면 및 질화규소 내부로 진행되는 것으로 생각된다. 열팽창계수가 작은 Mo를 중간재로 사용한 접합체에서 접합체의 파괴경로는 Fig. 6(c)에서 보여주는 것과 같이 대부분의 접합체의 파괴는 Mo/S.S. 316 접합체면, 또는 Mo/S.S.316 접합체면에 근접한 Mo에서 일어났다. $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Mo}/\text{S.S.}316$ 접합체에서 나타나

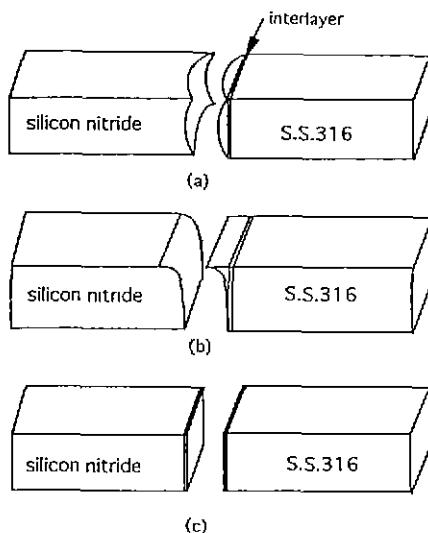


Fig. 6. Schematic of fracture paths of $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ joints (a) low strength, (b) moderate strength, (c) high strength joint

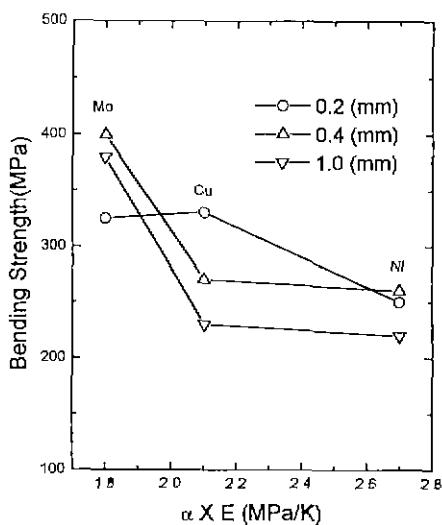


Fig. 7. Variation of 4-point bending strength of $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{interlayer}(\text{Cu}, \text{Mo}, \text{Ni})/\text{S.S.316}$ joint related to $\alpha \times E$ factor.

는 이러한 파괴경로의 변화는 Mo와 S.S.316 사이의 열팽창계수 차이가 Mo와 질화규소 사이의 열팽창계수 차보다 크기 때문에 중간재 Mo 또는 Mo/S.S.316 접합계면에 최대 잔류응력이 발생되며 때문으로 생각된다.

Fig. 7은 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{중간재}/\text{S.S.316}$ 접합체의 굽힘강도 변화를 중간재의 열, 기계적 특성에 따른 열응력 결정요인, 즉 열팽창계수(α)와 탄성계수(E)의 곱의 크기의 함수로

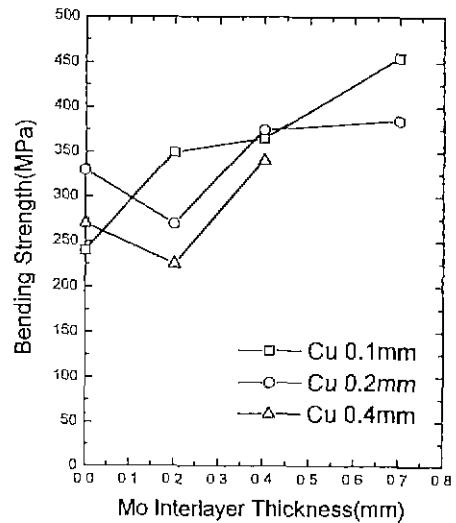


Fig. 8. 4-point bending strength of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}/\text{Mo}/\text{S.S.316}$ joints with various Cu interlayer thickness as a function of Mo interlayer thickness.

보여준다. Table 1에서 보여주는 각 중간재 재료의 열팽창계수와 탄성계수를 곱한 값은 중간재가 각각 Mo, Cu, Ni일 경우 순서대로 1.8, 2.1, 2.7 MPa/ $^{\circ}\text{C}$ 로 계산되며, 사용된 0.1, 0.2 및 0.4 mm의 두께의 각 중간재에 대하여 측정된 접합체의 굽힘강도와의 관계를 보여준다. 단일 중간재를 사용한 접합체에서는 열응력 결정요인이 작은 Mo가 Cu 또는 Ni에 비하여 접합체의 굽힘강도를 증가시키는 데 효과적이었다. $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{중간재}/\text{S.S.316}$ 접합체의 굽힘강도는 중간재의 열응력 결정요인이 작아짐에 따라 증가되었으며, 중간재의 두께가 두꺼워질수록 중간재의 열응력 결정요인의 크기가 접합체의 굽힘강도에 큰 영향을 주는 것을 알 수 있다. 따라서, $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{중간재}/\text{S.S.316}$ 접합체의 굽힘강도를 증가시키기 위해서는 접합후 냉각시 열응력에 의해 접합체에 발생되는 잔류응력을 효과적으로 완화시킬 수 있게 열응력 결정요인이 작은 중간재를 사용하는 것이 효과적이었다.

단일 중간재를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체의 굽힘강도 결과로부터 소성강도가 작은 Cu와 열팽창계수가 작은 Mo가 접합체의 강도증가에 효과적임을 알 수 있었다. 따라서, 본 연구에서는 이들 두 중간재를 적층한 다층 중간재를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}/\text{Mo}/\text{S.S.316}$ 접합체에서 각 층의 두께 변화에 따른 접합체의 굽힘강도의 변화에 관하여 조사하였다. Fig. 8은 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}/\text{Mo}/\text{S.S.316}$ 접합체에서 Cu 및 Mo의 두께에 따른 굽힘강도의 변화를 보여준다. $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}/\text{Mo}/\text{S.S.316}$ 접합체에서 Cu의 두께가 0.1 mm일 때 Mo 두께가 증가될수록 접합체의 강도는

현저하게 증가하였다. Cu의 두께가 0.2 mm 이상의 적층 중간재를 사용한 접합체에서는 0.2 mm 두께의 Mo의 적층은 굽힘강도를 감소시켰으나, Mo의 두께가 증가됨에 따라 굽힘강도는 증가하였다. $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}/\text{Mo}/\text{S.S.316}$ 접합체에서는 얇은 두께의 Cu와 두꺼운 Mo를 적층한 중간재를 사용할 때 굽힘강도 증가 효과가 크게 나타났으며, 0.1 mm 두께의 Cu 중간재와 0.7 mm 두께의 Mo 중간재를 적층하여 사용한 접합체의 굽힘강도는 460 MPa 이상이었다. 열적, 기계적 특성이 전혀 다른 Cu 및 Mo를 적층한 중간재를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체의 굽힘강도는 Cu 또는 Mo 중간재만을 사용한 접합체의 굽힘강도 보다 증가되었으며, Cu/Mo 적층 중간재를 사용한 접합체의 굽힘강도의 증가는 연성금속 Cu의 소성변형에 의한 잔류응력 완화 효과 및 열팽창계수가 작은 Mo를 중간재로 사용함에 따라 발생되는 잔류응력의 크기 감소 효과가 같이 나타나기 때문으로 생각된다. Cu/Mo 적층 중간재를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체의 파괴경로는 접합체의 강도에 따라 다르게 나타나며, 접합체의 굽힘강도가 400 MPa 이상인 높은 접합체에서는 Fig. 6(c)에서 보여주는 것과 같은 파괴가 일어났다.

Cu 및 Mo의 두께비에 따라 질화규소 및 접합체에 발생되는 잔류응력의 크기 및 최대 잔류응력의 분포가 다르게 나타나기 때문에 접합체의 굽힘강도가 다르게 나타나는 것으로 생각된다. Cu/Mo 적층 중간재를 사용한 접합체에서 나타나는 굽힘강도 증가 효과를 정확히 설명하기 위해서는 collimated X-ray 및 유한요소법을 사용하여 다층 중간재를 사용한 접합체에 발생되는 잔류응력의 크기 및 분포에 관한 연구가 요구된다.

4. 결 론

Cu, Ni, 및 Mo 중간재를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체의 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cusil ABA}$ 접합계면에서는 Ti-rich 계면 반응물이 형성되었으며, 중간재의 종류에 따라 접합부위의 미세구조 및 조성은 다르게 나타났다. Cu 중간재는 질화규소/브레이징 합금 계면의 미세구조 및 계면 반응물 형성에 큰 영향을 주지 않았다. 또한, $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체에서 Mo 중간재의 사용은 브레이징시 작은 양의 Mo가 브레이징 합금내로 확산 이동되어 접합부위에 Mo-Si 금속간 화합물 형성에 따른 편석이 일어났으나, 접합계면의 미세구조 및 조성에는 큰 변화가 없었다. Ni 중간재는 접합시 브레이징 합금에 많은 양이 용해되어 브레이징 합금내에서 Cu 및 Ti와 반응으로 금속간 화

합물이 형성되었으며, $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{브레이징}$ 합금 계면에서는 다른 중간재를 사용한 접합체에서와 비교하여 상대적으로 얇은 Ti-rich 계면 반응물층이 형성되었다.

Cu, Ni, 및 Mo 중간재의 사용은 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체의 굽힘강도는 증가하였다. 연성금속 중간재를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체에서 소성강도가 작은 Cu 중간재가 접합체의 굽힘강도를 증가시키는데 효과적이었으며, 열팽창계수가 작고 소성강도가 큰 Mo 중간재를 사용한 접합체의 굽힘강도는 연성금속 Cu 중간재를 사용한 접합체의 굽힘강도와 비교하여 현저하게 증가하였다. 따라서, $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체의 굽힘강도를 증가시키기 위해서는 접합체에 발생되는 잔류응력의 크기를 감소시킬 수 있는 열응력 결정요인이 작은 Mo 등의 중간재를 사용하는 것이 효과적이었다.

적층 Cu/Mo 중간재를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체에서는 얇은 Cu 중간재와 두꺼운 Mo 중간재를 적층시켰을 때 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체의 굽힘강도를 증가시키는데 효과적이며, Mo 중간재의 두께가 증가될수록 접합체의 굽힘강도는 증가되었다. Cu/Mo 적층 중간재를 사용한 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{S.S.316}$ 접합체의 상온에서 최대 굽힘강도는 460 MPa이었다.

REFERENCES

1. R.E. Loehman, and A.P. Tompkins, "Joining of Ceramics," *Am Ceram Bull.*, **67**(2), 375-380 (1989).
2. M.G. Nicholas, and D.A. Mortimer, "Ceramic/Metal Joining for Structural Application," *Mater. Sci. and Tech.*, **2**(9), 657-665 (1986).
3. S. Kang, E.M. Dunn, J.H. Selverian, and H.J. Kim, "Issues in Ceramic-to-Metal Joining; An Investigation of Braze Silicon Nitride based Ceramic to a Low-Expansion Superalloy," *Am. Ceram Bull.*, **68**(9), 1608-1617 (1989).
4. B.J. Dalglish, M.C. Lu, and A.G. Evans, "The Strength of Ceramics Bonded with Metals," *Acta Metall.*, **36**(8), 2029-2035 (1988).
5. K. Suganuma, and T. Okamoto, "Interlayer Bonding Methods for Ceramic/Metal Systems with Thermal Expansion Mismatches," *J. Am Ceram. Soc.*, **67**(12), C256 (1984).
6. S. Tanaka, "Residual Stress Relaxation in $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Metal}$ Joined Systems," *Proc. of the MRS Mtg. on Adv. Mats.*, 125-130 (1989).
7. Y. Miyazawa, E. Suzuki, and K. Hayashi, "Effect of Pre-compression on the Strength of Ceramic/Steel

- Joint," *Proc. of the MRS Int. Mtg. on Adv. Mats.*, 131-136 (1989).
8. W.C. Lee, O. Kwon, and C.S. Kang, "Interface Structures and Bonding Strength of Si_3N_4 /304 Stainless Steel Joints," *Ceramic Transactions*, **35**, 197-206 (1992).
9. H. Suematsu, J.J. Petrovic, and T.E. Mitchell, "Interfacial Structure of Si_3N_4 Brazed with a Ag-Cu-Ti Alloy," *Ceramic Transactions*, **35**, 59-68 (1992).
10. M.G. Nicholas, "Promoting the Wetting and Brazing of Ceramics," *Ceramic Transactions*, **35**, 115-124 (1992).
11. S.M. Johnson, "Mechanical Behavior of Brazed Silicon Nitride," *Ceram. Eng. Sci. Proc.*, 1846-1853 (1989).