

〈단신〉

Ag-Cu-Ti Brazing 금속을 이용한 Inconel/Si₃N₄ 접합의 계면구조

정창주 · 장복기 · 문종하 · 강경인

전남대학교 무기재료공학과

(1996년 6월 24일 접수)

Interfacial Structure of Inconel/Si₃N₄ Joint Using Ag-Cu-Ti Brazing Metal

Chang Joo Jeong, Pok-Kie Chang, Jong Ha Moon and Kyung In Kang

Department of Ceramic Engineering, Chonnam National University

(Received June 24, 1996)

요 약

Ag-Cu-Ti brazing filler 금속을 사용하여 inconel과 Si₃N₄를 상압하에서 접합시켜 brazing 금속의 구성성분인 Ag, Cu, Ti와 inconel의 구성성분인 Ni, Cr, Al, Mn, Fe가 계면 반응에 어떻게 관여하는지에 관하여 조사하였다. 반응온도가 950°C로 낮을 경우 계면구조는 "Inconel 금속층/Ti-rich phase층/brazing 금속층/Si₃N₄ 세라믹스"로써 활성물질로써 첨가된 Ti는 Si₃N₄와 반응이 일어나지 않아 inconel과 brazing 금속 사이에 존재하였다. Ti는 반응온도가 상승함에 따라 Si₃N₄와 반응하면서 Si₃N₄ 계면쪽으로 이동하였다. 반응온도가 1200°C일 경우 계면구조는 "Inconel 금속층/Fe, Cr, Si가 함유된 Ni-rich phase층/Mn과 Si가 함유된 Cr-rich phase층/Si₃N₄"로써 inconel 강의 구성성분 중 Cr, Mn, Ni, Fe 등이 Si₃N₄ 쪽으로 이동하여 반응에 관여하였으며, 이들 중 Cr과 Mn이 Si₃N₄와 가장 반응성이 좋았다. 한편 활성물질로 Ag-Cu에 첨가된 Ti는 Cr-Ti 상의 형태로 Ni-rich phase층 내부에 석출되어 있었다.

ABSTRACT

Sintered Si₃N₄ and Inconel composed of Ni(58~63%), Cr(21~25%), Al(1~1.7%), Mn(<1%), Fe(balance) were pressurelessly joined by using Ag-Cu-Ti brazing filler metal at 950°C and 1200°C under N₂ gas atmosphere of 1 atm, and their interfacial structures were investigated. In case that the reaction temperature was low as 950°C its interfacial structure was "Inconel metal/Ti-rich phase layer/brazing filler metal layer/Si₃N₄". Ti used as reactive metal existed in between inconel steel and brazing metal, and moved to the interface of between brazing filler metal and Si₃N₄ according as reaction temperature increased up to 1200°C. The interfacial structure of inconel steel-Si₃N₄ reacted at 1200°C was "inconel metal/Ni-rich phase layer containing of Fe, Cr and Si/Cu-rich phase layer containing of Mn and Si/Si₃N₄". Cr, Mn, Ni, and Fe diffused to the interface of between brazing filler metal and Si₃N₄ and reacted with Si₃N₄. The most reactive components of ingredients of inconel metal were Cr and Mn. On the other hand, Ti added as a reactive component to Ag-Cu eutectic segregated into Ni-rich phase layer.

Key words: Si₃N₄, Ag-Cu brazing metal, Reactive metal, Inconel steel

1. 서 론

세라믹스는 고온강도, 내마모성, 내열성, 내부식성 등의 면에서 금속보다 우수한 특성을 가지고 있으나, 취성과 가공의 어려움 등으로 인해 용도가 제한되고 있다. 그러나 금속과 접합하여 사용될 경우 새로운 응용분야가 창출될 수 있으며, 그 대표적인 예가 열엔진 소자로서

강 샤프트(steel shaft)에 질화규소 로터(silicon nitride roter)가 접합되어 있는 터보차저(turbocharger)이다. 금속-세라믹스 접합에 요구되는 가장 중요한 특성은 접합 강도로서 금속과 세라믹스 사이에 존재하는 brazing 금속의 조성에 의존한다¹⁻⁶⁾.

금속-세라믹스의 접합강도는 brazing 금속-세라믹스 간의 반응의 정도와 금속과 세라믹스간의 열팽창계수의

차이에 의존하므로 세라믹스의 종류와 조성에 따라 brazing 금속의 조성이 달라져야 한다⁷⁾. Brazing 금속은 Ag-Cu eutectic 조성을 주로 사용하며 세라믹스가 SiC인 경우 반응을 촉진시키는 활성물질로써 Ti가 첨가되며^{8,9)}, Si₃N₄인 경우 Ti나 Zr이 첨가된다¹⁰⁾. 또한 세라믹스가 Si₃N₄인 경우 활성물질로써 Mo, Ni, Fe, Cr, V, Nb 등이 검토되었다¹⁰⁻¹²⁾. 따라서 brazing 금속-세라믹스 간의 반응을 촉진시키는 최적의 활성물질에 관한 연구는 매우 중요하다.

본 연구에서는 Ag-Cu-Ti brazing filler 금속을 사용하여 Inconel과 Si₃N₄를 상압인 질소분위기에서 접합시켜 접합계면을 조사함으로써 brazing 금속의 구성성분인 Ag, Cu, 그리고 Ti 뿐만 아니라 Inconel의 구성성분인 Ni, Cr, Al, Mn, 그리고 Fe가 계면 반응에 어떻게 관여하는지에 관하여 조사하였다.

2. 실험방법

본 실험에서는 brazing 금속으로 Ag-Cu-Ti(日本 NI-

LACOT 社製) 분말을 사용하여 Ni(58~63%), Cr(21~25%), Al(1~1.7%), Mn(<1%), Fe(balance) 조성을 갖는 Inconel(일본 NILACOT 社製)과 Si₃N₄ 소결체를 접합시켰다.

Inconel 강과 Si₃N₄ 소결체를 10×10×5 mm 크기로 절단한 후, 접합시킬 면을 8μm 다이아몬드 분말로 연마하여 초음파로 세정하였다. 두 시편 사이에 Ag-Cu-Ti brazing 금속분말 (Ag/Cu=72/28, 8 wt% Ti)을 넣은 후 금속제 치구로 고정시켰다. 이 시편을 950~1,200℃, N₂ 분위기에서 30분 동안 열처리 하였다. 이때 외압은 가하지 않았다.

열처리된 시편을 접합계면과 직각방향으로 절단 및 연마한 후 주사전자 현미경으로 반응층의 조직을 관찰하였고, EPMA를 이용하여 각 상의 성분을 정성분석하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig.1은 Ag-Cu-Ti brazing 금속을 사용하여 접착한

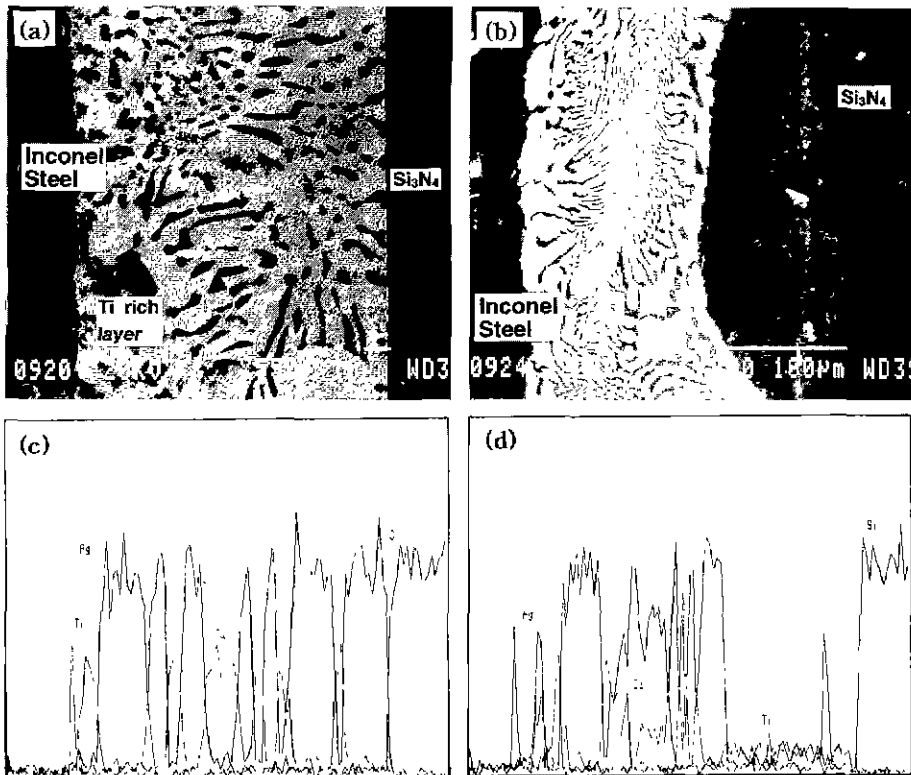


Fig.1 SEM micrographs and EPMA line scanning of the interface of Inconel/Si₃N₄ joint brazed at 950°C (a,c) and 1200°C (b,d) for 0.5 h under N₂ atmosphere.

Si₃N₄와 Inconel의 접합계면의 미세구조와 brazing 금속 성분에 관한 EDS 분석결과이다. 열처리 온도에 따라 석출상의 모양과 반응층의 구조가 현저히 달라짐을 알 수 있다. 950°C, 질소분위기에서 30분 동안 열처리한 경우 반응층은 "Inconel 금속/Ti-rich phase층/brazing 금속층/Si₃N₄ 세라믹스"로 구성되어 있다(Fig. 1(a)). EDS를 통한 line profile 결과(Fig. 1(c))에 의하면 brazing 금속과 세라믹스의 wettability를 증진시켜 접합을 용이하게 하는 역할을 한다¹⁰⁾고 알려진 Ti 성분의 대부분은 금속층 계면에 분포하여 Ti-rich phase층을 형성시키며, Si₃N₄층의 매우 얇은 계면에는 Si, Ag와 함께 적은 양의 Ti가 존재함을 알 수 있다. Brazing 금속층은 Ag-rich(기지상) 상과 Cu-rich상(분산상)으로 분리된 조직을 갖고 있다.

반응온도가 상승하여 1200°C, 질소분위기에서 30분 동안 열처리한 경우(Fig. 1(b)) 세라믹스와 brazing 금속 사이의 Ti-Ag-Cu-Si로 구성된 반응층의 두께는 매우 넓어졌으며, Fig. 1(d)의 EDS 결과에 의하면 금속층의 Ti-rich phase는 Ti양이 상대적으로 줄어들면서 Ag-Ti층으로 바뀌었다. 따라서 1200°C에서 반응층은 "Inconel 금속/Ag-Ti층/brazing 금속층/Cu-Ag-Ti-Si층/Si₃N₄ 세라믹스"로 나타낼 수 있다. 여기에서 brazing 금속층은 950°C에서 반응시킨 경우와 마찬가지로 Ag-rich 상과 Cu-rich 상으로 분리되어 있으며, 금속-세라믹스의 접합에서 매우 중요한 Cu-Ag-Ti-Si 층에서 Cu의 함량은 세라믹스측으로 갈수록 점점 감소하며, 반대로 Si의 함량은 brazing 금속측으로 갈수록 점점 감소한다. 한편 Ti의 대부분은 Si₃N₄

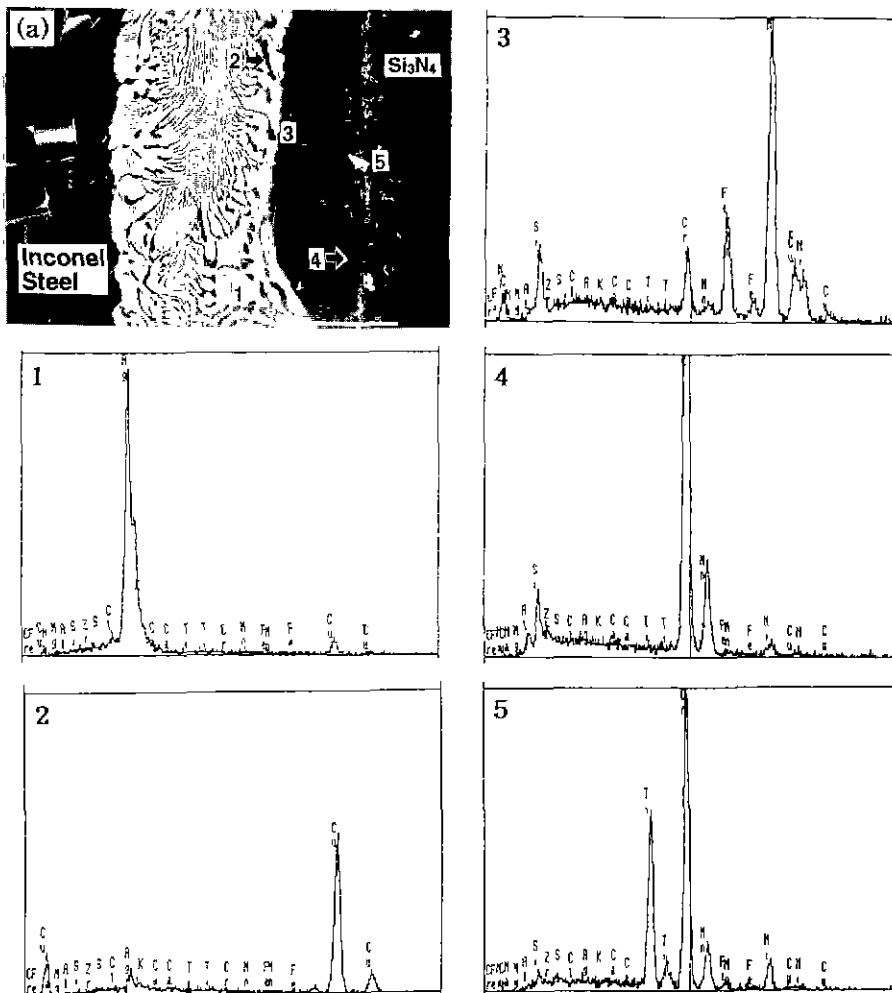


Fig. 2. SEM micrographs of the interface of Inconel/Si₃N₄ joint brazed at 1200°C for 0.5 h and EPMA analysis for the interface.

세라믹스측에 존재하고, inconel 금속과 brazing 금속층 사이에 미량 존재한다.

Ag-Cu-Ti brazing 금속을 사용하여 금속과 세라믹스를 접합할 경우 파괴는 brazing 금속과 세라믹스의 계면에서 주로 일어난다. 따라서 금속-세라믹스 접합에 관한 많은 연구가 brazing 금속과 세라믹스 반응층에서의 Ag, Cu 그리고 Ti의 분포에 초점을 두고 이루어져 왔다. 그러나 본 연구에서 처럼 Ag, Cu, 그리고 Ti의 분포를 접합계면의 전 영역에서 조사한 결과 접합계면에서의 Ti 분포는 매우 흥미롭다. 반응온도가 낮아서 Ti와 Si_3N_4 가 반응이 일어나지 않을 경우 대부분의 Ti는 금속과 brazing 금속의 계면에 존재하나, 온도가 높을 경우 Ti는 Si_3N_4 와 반응하면서 brazing 금속과 세라믹스의 계면으로 이동함을 알 수 있다. 이때 Ti와 Si_3N_4 의 반응에 의해 Ti_3Si_3 와 TiN이 생성된다고 알려져 있다¹⁰.

Fig. 2는 1200°C, 질소분위기에서 30분 동안 열처리한 시편의 계면조직(Fig. 2(a)) brazing 금속- Si_3N_4 의 계면을 EDS에 의해 점분석한 결과이다. Brazing 금속 내부의 흰 기지상(1)은 Ag-rich 상이며 검은 분산상(2)은 Cu-rich 상이다. Brazing 금속- Si_3N_4 의 계면에서 brazing 금속에 가까운 반응층(3)은 Inconel의 성분인 Ni, Fe, Cr과 세라믹스 성분인 Si로 구성되어 있으며, 검은 석출물(4)은 Cr과 Ti가 주성분이다. Si_3N_4 에 가까운 반응층(5)은 Cr이 주성분이며 Mn과 Si가 함유되어 있다. 따라서 brazing 금속- Si_3N_4 의 계면은 "Fe, Cr, Si가 함유된 Ni-rich phase층/Mn과 Si가 함유된 Cr-rich phase층"으로 이루어졌으며, Fe, Cr, Si가 함유된 Ni-rich phase층 내부에는 Cr과 Ti로 이루어진 석출물이 분산되어 있다.

금속-세라믹스 또는 세라믹스-세라믹스 접합을 용이하게 하기 위해서는 brazing 금속의 조성이 매우 중요하다. Ag-Cu eutectic에 Ti가 첨가될 경우 Ti는 brazing 금속과 세라믹스 사이의 wettability를 증진시켜 접합강도를 증진시킨다. 따라서 Ti와 같은 역할을 하는 활성물질을 찾기 위해 Zr, Mo, Cr, Ni, Fe와 같은 성분에 대해 실험 또는 열역학적 고찰이 이루어 졌다¹⁰⁻¹². Fig. 2의 brazing 금속- Si_3N_4 의 계면에서 brazing 금속 성분이 아닌 Ni(58~63%), Cr(21~25%), Al(1~1.7%), Mn(<1%), Fe(balance)로 구성된 inconel의 성분으로 이루어진 상이 관찰되었다. 여기에서 Si_3N_4 쪽에 Cr, Mn-rich phase층이 생성된 것은 inconel- Si_3N_4 접합에서는 Cr, Mn, Ni, Fe 등이 T. Shimoo가 열역학적으로 고찰한 것처럼 Ti와 같은 활성물질 역할을 할 수 있음을 의미한다.

4. 결 론

Brazing 금속으로 Ag-Cu-Ti 분말을 사용하여 Ni(58~63%), Cr(21~25%), Al(1~1.7%), Mn(<1%), Fe(balance)로 구성된 Inconel과 Si_3N_4 를 접합시킨 후 접합체의 계면을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

(1) 반응온도가 950°C로 낮아서 활성물질인 Ti와 Si_3N_4 사이에 반응이 일어나지 않을 경우 Ti는 Inconel과 brazing 금속 사이에 존재하며, 반응온도가 상승하여 Si_3N_4 와 반응하면서 Si_3N_4 계면쪽으로 이동한다.

(2) 반응온도가 1200°C일 경우 활성물질인 Ti 뿐만 아니라 Inconel의 구성성분도 Si_3N_4 쪽으로 이동하여 접합계면은 "Brazing metal층/Fe, Cr, Si가 함유된 Ni-rich phase층/Mn과 Si가 함유된 Cr-rich phase층/ Si_3N_4 층"의 구조가 되었다. 위의 결과로부터 Cr, Mn, Ni, Fe 등도 Ti와 같은 활성물질 역할을 할 수 있음을 알 수 있다.

REFERENCES

1. R. Standing and M. Nicholas, "The Wetting of Alumina and Vitreous Carbon by Copper-Tin-Titanium Alloys," *J. Mater. Sci.*, **13**, 1509-14 (1978).
2. A.J. Moorhead, "Welding and Brazing of Film Probe Assemblies," *Weld. J.* (Miami), **62**(10), 17-22 (1983).
3. M. Naka, T. Tanaka, I. Okamoto, and Y. Arata, "Non-Oxide Ceramics (Si_3N_4 , SiC) Joint Made with Amorphous $Cu_{50}Ti_{50}$ and $Ni_{24.5}Ti_{75.5}$ Filler Metals," *Trans. JWRI*, **12**(2), 177-80 (1983).
4. H. Mizuhara and K. Mally, "Ceramic to Metal Joining with Active Brazing Filler Metal," *Weld. J.* (Miami), **64**(10), 523-29 (1985).
5. E.O. Ballard, E.A. Meyer, and G.M. Brennan, "Brazing of Large Diameter Ceramic Rings Using an Active Filler Metal Ticusil Process," *Weld. J.* (Miami), **64**(10), 37-42 (1985).
6. J.A. Pask, "From Technology to the Science of Glass/Metal and Ceramic/Metal Sealing," *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **66**(11), 1587-92 (1987).
7. Rakesh, R. Kapoor and Thomas W. Eager, "Oxidation Behavior of Silver- and Cooper-based Brazing Filler Metals for Silicon Nitride/Metal Joints," *J. Am. Ceram. Soc.*, **72**(3), 448-54 (1989).
8. Jonas Kofi Boadi, Toyohiko Yano, Takayoshi Iseki, "Brazing of Pressureless-sintered Sic Using Ag-Cu-Ti Alloy," *J. Mat. Sci.*, **22**, 2431-34 (1987).

9. Satoshi KATO, Toyohiko Yano and Takayoshi ISEKI, "Interfacial Structures between Ag-Cu-Ti Alloy and Sintered SiC with Various Additives," *J Ceram Soc Jpn.*, **101**(3), 325-330 (1993).
10. Y. Morizono, T. Nakata, M. Nishida, A. Chuba, "Effect of Active Metal on Bonding Characteristics and Interfacial Structure of the Si₃N₄/Si₃N₄ Joints Brazed by Ag-Cu Filler Metal," *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **103**(8), 810-815 (1996).
11. T. Shimoo, Y. Kobayashi, and K. Okamura, "Kinetics of Reaction between Si₃N₄ and Cr in N₂ Atmosphere," *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **101**(6), 675-680 (1993).
12. T. Shimoo, Y. Kobayashi, and K. Okamura, "Kinetics of Reaction between Si₃N₄ and Mo," *J Ceram Soc Jpn.*, **101**(9), 1012-1017 (1993).