

무가압침투법에 의한 SiC_p/Al 복합재료의 제조 및 기계적 특성

Fabrication and Mechanical Properties of SiC_p/Al Composites by Pressureless Infiltration Technique

진훈구 · 오명석 · 김영식

H. G. Jin, M. S. Oh and Y. S. Kim

Key Words : Pressureless Infiltration Technique(무가압침투법), SiC_p/Al Composites(SiC 입자강화 Al-기 복합재료), Reaction Product(반응생성물), Infiltration Behavior(침투거동)

Abstract : The infiltration behavior of molten Al-alloy, microstructures, hardness, and the interfacial reactions of SiC_p/Al composites fabricated by the pressureless infiltration technique were investigated. It was made clear that both the weight fraction of SiC reinforcement and additive Mg content considerably influenced on the infiltration behavior of the molten Al-alloy matrix. Complete infiltration of molten Al-alloy achieved under the conditions that weight fraction of SiC content is more than 30wt%, and additive Mg content is more than 9wt%. Interfacial region of Al-alloy matrix and SiC reinforcement phase, Mg₂Si was formed by the reaction between Mg and SiC. Another reaction product AlN was also formed by the reaction between Al-alloy matrix and gas atmosphere nitrogen.

1. 서 론

금속기 복합재료(Metal Matrix Composites; MMC)는 세라믹 강화상의 강성 및 강도와 금속 기지의 연성 및 인성을 조합하여 만든, 경량이면서 고온특성이 뛰어난 미래의 첨단재료이다. 이러한 장점을 가진 금속기 복합재료는 개발초기에는 높은 생산단가로 인해 우주·항공산업이나 군사용으로 그 응용이 제한적이었으나, 최근 제조기술의 발달과 낮은 생산단가로 각종 산업에 그 응용분야가 확대되면서 이에 대한 관심이 높아지고 있는데, 일례로 자동차 산업에 있어서는 엔진의 고성능화, 경량화 등의 문제와 맞물려 엔진의 주요 구성요소인 밸브, 커넥팅로드, 피스톤과 실린더 블록 등의 제조에 응용되고 있다^{1,2)}. 금속기 복합재료 중에서도 특히 불연속적인 강화상 SiC가 첨가된 SiC_p/Al 복합재료는 비강도 및 비강성이 높고 내마모성, 고온 특성, 피로특성 등이 우수해서 개발의 초점이 되고 있다^{3,4)}. SiC_p/Al 복합재료의 제조방법은 분말야금

법과 주조법이 그 주류를 이루고 있고^{5,7)}, 분말야금법에 의해 SiC_p/Al 복합재료를 제조할 경우 가장 성공적인 결과를 얻을 수 있으나 제조경비가 고가인 단점이 있고, 주조법에 의해 SiC_p/Al 복합재료를 제조할 경우 용융금속과 세라믹상 사이의 젖음성이 문제가 되어 제조시 기계적인 교반이나 가압을 필요로 하게 되는데, 이로 인해 세라믹이 뭉치는 현상이나 쏠림에 의한 편석 등이 나타나기도 한다.

최근 이러한 기계적 교반이나 가압을 하지 않고 복합재료를 제조하는 방법의 하나로서 무가압침투법이 미국의 Lanxide사에서 개발되었다. 이 제조법에 의하면 질소분위기하에서 Al 합금 중에 일정량 이상의 Mg이 포함되어 있을 경우, 강화상내로 용융 Al의 자발적 침투가 일어나는 것으로 보고되고 있다^{8,9)}. 이 방법은 기지내 반응에 의한 금속의 자발적 침투에 의해 복합재료를 제조하기 때문에 탄화물(SiC, TiC, B₄C 등), 질화물(AlN, Si₃N₄ 등) 및 붕화물(TiB₂ 등)과 같은 다양한 종류의 세라믹 강화상을 사용할 수 있고, 또한 강화상의 형상에도 구애를 받지않아 넓은 범위의 복합재료 제조에 이용될 수 있을 것으로 기대되고 있다.

그러나 무가압침투법에 의한 복합재료의 제조시

접수일 : 2001년 9월 28일
진훈구 : 부경대학교 대학원
오명석, 김영식 : 부경대학교 기계공학부

Table 1 Chemical composition of Al-alloy used(wt%)

Cu	Si	Mg	Zn	Fe	Mn	Ni	Ti	Pb	Al
0.98	11.99	1.11	0.04	0.29	0.03	0.85	0.01	0.01	Bal.

공정변수, 즉 강화상의 분율, 첨가제의 양, 공정온도, 유지시간 등에 따라 용융 Al의 침투거동은 크게 달라지고, 그 결과 제조된 복합재료의 미세구조와 기계적 특성도 달라지게 된다.

본 연구는 자동차용 알루미늄 복합재료 소재의 개발을 위한 노력의 일환으로, 무가압침투법에 의해 SiC_p/Al 복합재료를 제조함에 있어서 강화상인 SiC의 무게분율과 첨가제인 Mg의 함량의 변화가 용융 Al의 침투거동 및 복합재료의 미세구조에 미치는 영향을 분석하였다. 또한 이러한 공정변수의 변화에 따른 복합재료의 기계적 특성과 복합재료의 제조공정중에 발생하는 반응생성물을 분석하였다.

2. 실험 및 방법

2.1 SiC_p/Al 복합재료 시험편의 제조



Fig. 1 SEM photograph of the powder particles : (a) SiC, (b) Mg

복합재료 시험편의 제조를 위한 기지재로는 AC8A Al 합금(우신금속제)을, 강화상으로는 순도 99%이상의 SiC 분말(Aldrich제)을 사용하였다. Table 1은 본 실험에서 사용한 Al 합금의 화학적 조성을 나타낸 것으로, 12wt% 정도의 Si와 1wt% 정도의 Mg를 함유하고 있다.

Fig. 1은 본 실험에서 사용한 SiC 및 Mg 분말의 형상을 나타낸 것으로, SiC 분말은 각형, Mg 분말은 구형에 가까운 형상을 보여주고 있다.

Fig. 2의 모식도와 같이 SiC 분말과 Mg 분말을 잘 혼합하여 $\phi 30 \times 40$ mm의 알루미늄 도가니에 넣고 그 위에 기지재가 될 Al 합금 ingot를 올려놓아 이를 노 속에 장입한 뒤 가열하였다. 가열온도는 1000℃, 가열온도에서의 유지시간을 3시간으로 하고, 실온에서부터 가열온도에 이르기까지의 소요시간은 1시간으로 조정하였다. 가열로는 tube식 진공로로서, 가열하기 전에 1.0×10^{-3} Torr의 압력으로 내부의 공기를 배제한 후 질소가스를 유입시켜 노내의 분위기를 질소 분위기로 조성하였다. 이후 냉각에 이르기까지 노내로 유입되는 질소가스의 유량은 300cc/min로 유지하였다.

상기의 공정조건하에서 기지재인 Al 합금과 강화상인 SiC 분말의 합계무게에 대한 SiC 분말의 무게분율을 10, 20, 30, 40%로 변화시키고, 또 첨가제인 Mg 분말은 Al 합금과 SiC 분말의 합계무게에 대해 3, 6, 9, 12%로 그 함량을 변화시켜, SiC

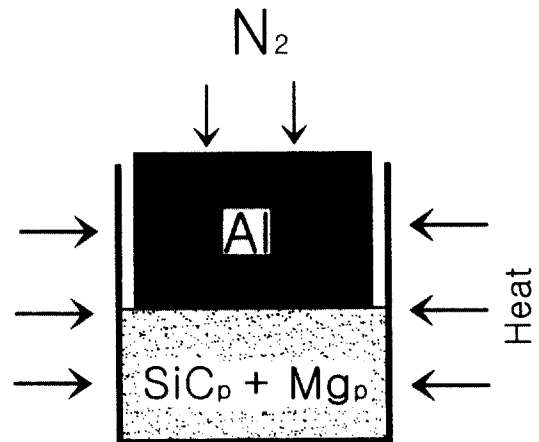


Fig. 2 Schematic drawing of pressureless infiltration process

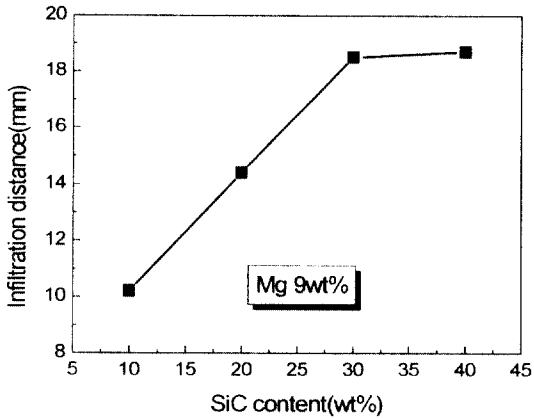


Fig. 3 Infiltration distance as a function of the weight fraction of SiC reinforcements

의 무게분율과 Mg의 첨가량이 각기 다른 16종류의 SiC_p/Al 복합재료 시험편을 제조하였다.

2.2 조직시험 및 경도시험

전술한 바와 같이 제작된 복합재료 시험편에 대해 광학현미경, EPMA 및 XRD를 이용하여 미세구조 및 반응생성물을 분석하였다. 또한 로크웰 경도시험기를 이용하여 복합재료 시험편의 경도를 측정하였다. 경도측정시 각각의 시험편에 대한 측정개소는 상부, 중간부, 하부에 각각 3개소씩 모두 9개소로 하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 용융 Al의 침투거동

Fig. 3은 Mg의 첨가량을 9%로 일정하게 유지하고 SiC의 무게분율을 10, 20, 30, 40wt%로 변화시켰을 때의 용융 Al의 침투결과를 나타낸 것이다.

SiC의 무게분율이 증가할수록 용융 Al의 침투량도 점진적으로 증가하여, SiC의 무게분율이 30wt% 이상일 때 잔류 Al이 없는 완전한 침투가 이루어졌다. Fig. 4의 (a)와 (b)는 각각 SiC의 무게분율이 10, 30wt%인 조건하에서 제작한 복합재료 시험편의 단면 미세구조를 나타낸 것이다. SiC의 무게분율이 10wt%인 (a)의 경우 복합재료 상부에 침투하지 않은 잔류 Al을 관찰할 수 있으며, 또한 복합화가 이루어진 영역과의 경계도 명확하게 잘 나타나 있다.

Fig. 5는 Mg의 첨가량이 9wt%로 일정할 때 SiC의 무게분율의 변화에 따른 복합재료 시험편의 단면 미세구조를 나타낸 것으로, SiC의 무게분율에 관계없이 강화상인 SiC가 Al 기지내에 균일하게 분포되어 있음이 잘 나타나 있는데, 잔류 Al이 남아있는 시험편 (a) 및 (b)의 경우에 있어서도 복합화가 이루어진 영역에서는 Al 합금 기지내에 SiC 강화상이 고르게 잘 분포되어 있다.

한편 본 그림에서 강화상인 SiC 입자 주위에 많은 반응생성물이 형성되었음을 관찰할 수 있는데, 이에 대해서는 3.3절에서 다시 언급하기로 한다.

Fig. 6은 SiC의 무게분율을 30wt%로 일정하게 유지하고 Mg의 첨가량을 3, 6, 9, 12wt%로 변화시켰을 때의 용융 Al의 침투결과를 나타낸 것이다. Mg의 첨가량이 증가할수록 용융 Al의 침투량도 증가하다가 Mg의 첨가량이 9wt% 이상일 때 잔류 Al이 없는 완전한 침투가 이루어졌다. Mg은 복합재료를 제조하는 동안에 강화상 표면에 있는 산소를 제거해서 표면에너지를 증가시키고, 또한 계면에서 새로운 화합물의 형성시키거나 강화상 표면에서 화학반응을 유발해 고체-액체 계면에너지를 감소시키는 것으로 보고되고 있다¹⁰⁾. 한편 Al-Mg 합금에 질소가 유입되면 Mg은 Mg₃N₂를 형성해서

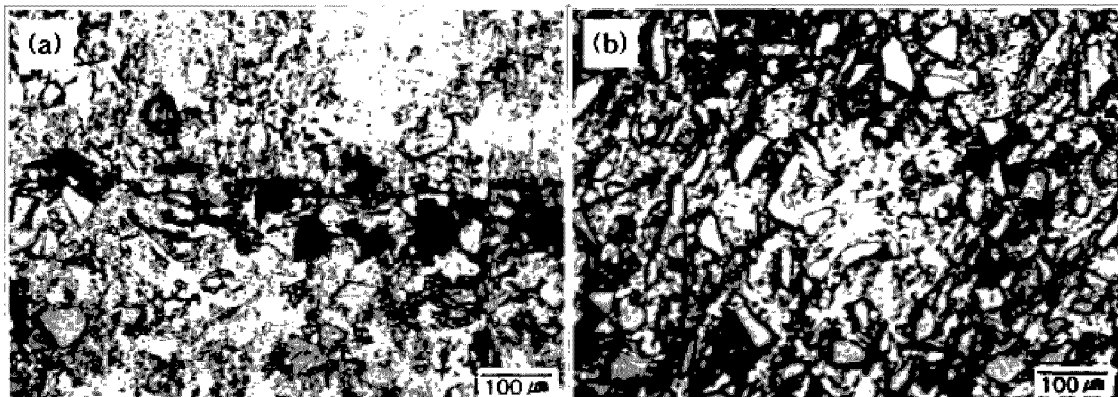


Fig. 4 Microstructures of the SiC/Al composites fabricated(Mg content 9wt%) : (a) Al-10SiC, (b) Al-30SiC

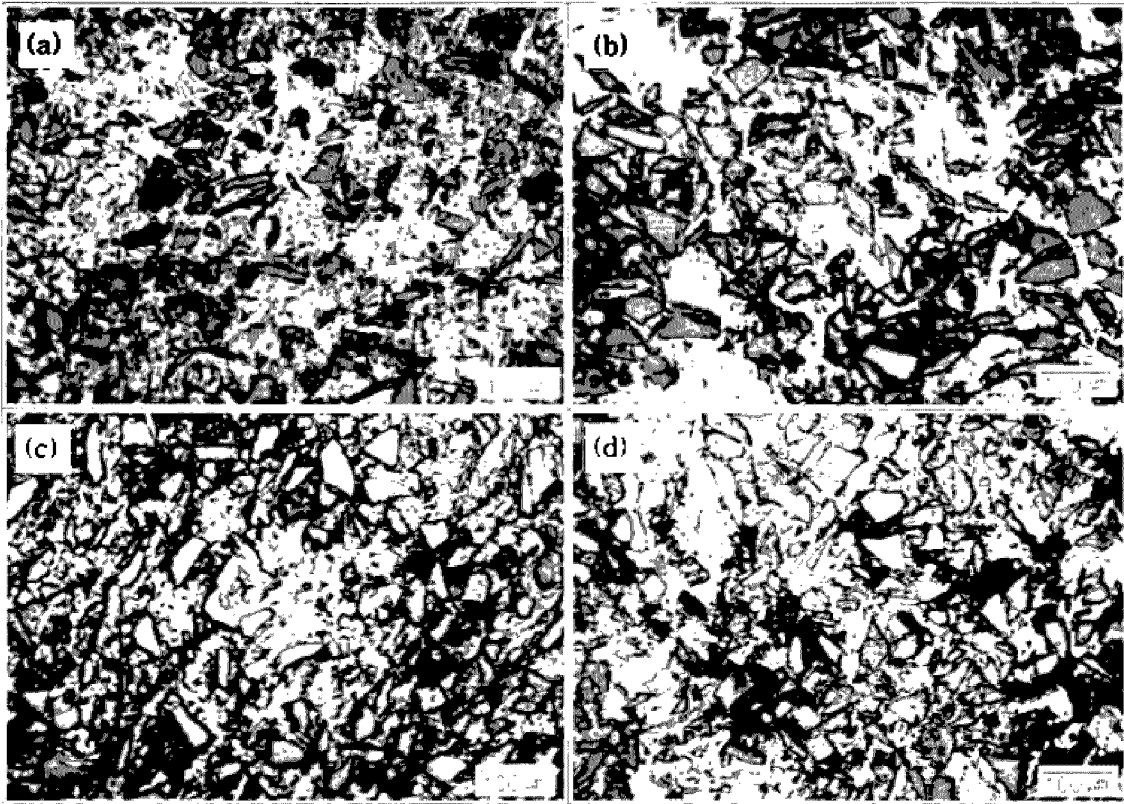


Fig. 5 Microstructures showing distribution of SiC reinforcement in composites fabricated(Mg content 9wt%) : (a) Al-10SiC, (b) Al-20SiC, (c) Al-30SiC, (d) Al-40SiC

기체상태의 N 원자를 액체상태의 Al 용탕에 공급해 주는 역할을 하고¹¹⁾, 무가압침투법에 의해 복합재료를 제조할 때 Mg_3N_2 는 용융 Al 합금과 강화상 사이의 젖음성을 향상시킴으로써 용융금속의 자발적 침투를 가능하게 하는 것으로 알려져 있다¹²⁾. 본 연구의 결과 질소분위기하에서 Mg의 첨가량이 증가함에 따라 용융 Al의 침투량이 증가하는

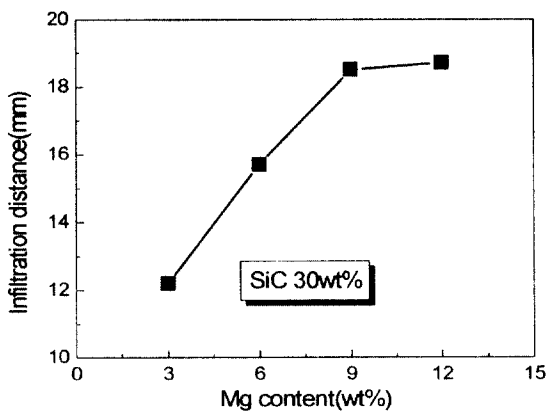


Fig. 6 Infiltration distance as a function of additive Mg content in content of in composites

것은 바로 이러한 이전의 연구결과들을 잘 반영하고 있는 것이다. Fig. 7의 (a), (b)는 각각 Mg 첨가량이 3, 9wt% 인 조건하에서 제작한 복합재료 시험편의 단면 미세구조를 나타낸 것으로, Mg의 첨가량이 3wt%인 (a)의 경우 상부의 잔류 Al과 하부의 복합화된 영역 및 그 경계면이 명확하게 관찰되고 있다.

Fig. 8은 SiC의 무게분율이 30wt%로 일정할 때 Mg 첨가량에 따른 복합재료 시험편의 단면 미세구조를 나타낸 것으로, 강화상인 SiC가 Al 기지재 내에 균일하게 분포되어 있는 것이 잘 나타나 있다. 한편 Mg 첨가량이 6wt% 이하인 (a)와 (b)에서는 반응생성물이 거의 나타나지 않지만, Mg 첨가량이 9wt% 이상인 (c)와 (d)에서는 Mg의 첨가량이 증가할수록 SiC 입자 주위에 더 많은 반응생성물이 형성되었음을 확인할 수 있다.

3.2 경도분포

Fig. 9는 Mg의 첨가량을 9wt%로 일정하게 유지하고, SiC의 무게분율을 변화시키면서 제작한 복합재료 시험편의 경도분포를 나타낸 것이다. SiC의 무게분율이 20wt%일 때 복합재료 시험편의 경도

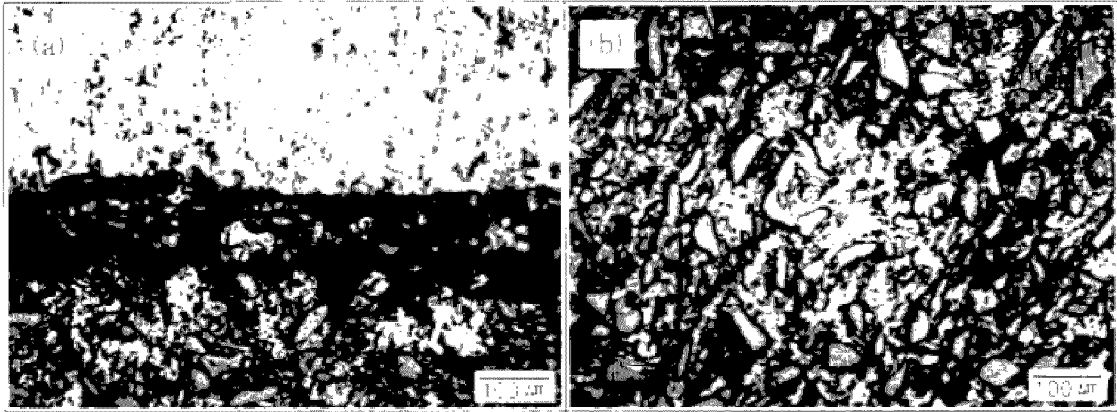


Fig. 7 Microstructures of the SiC/Al composites fabricated (SiC content 30wt%) :
(c) (a) Mg 3wt%, (b) Mg 9wt%

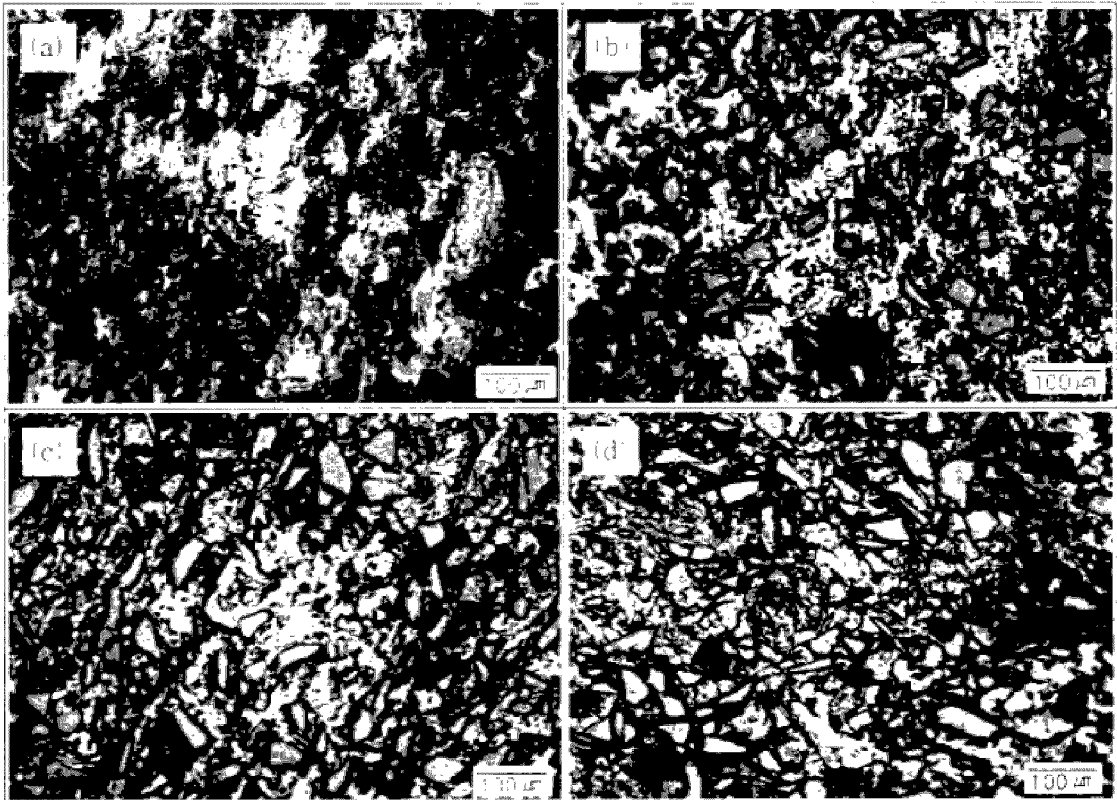


Fig. 8 Microstructures showing distribution of SiC reinforcements in composites fabricated (SiC content 30wt%) : (a) Mg 3wt%, (b) Mg 6wt%, (c) Mg 9wt%, (d) Mg 12wt%

는 최대값을 보이다가 40wt%에서 급격하게 떨어 짐을 알 수가 있는데, SiC의 무게분율이 30wt% 이상인 복합재료 시험편의 경우에는 조직의 취약 함을 육안으로도 쉽게 관찰할 수 있었다. 이러한 원인은 SiC의 무게분율이 30wt%를 넘어서게 되면 상대적으로 Al 기지재내에 SiC 입자들이 많아지게 되고, 그 결과 기지재와 입자 사이에 계면이 많이 발생하기 때문인 것으로 판단된다. Fig. 10은 SiC

의 무게분율을 30wt%로 일정하게 유지하고, Mg의 첨가량을 변화시키면서 제작한 복합재료 시험편의 경도분포를 나타낸 것이다. Mg 첨가량이 증가할수록 복합재료 시험편의 경도는 점진적으로 증가하여 9wt%에서 최대값을 나타내다가 12wt%에서는 반전되어 오히려 경도가 떨어지는데, 이러한 원인은 Mg의 첨가량이 일정량 이상으로 증가 하게 되면 복합재료내에 바람직하지 않은 금속간

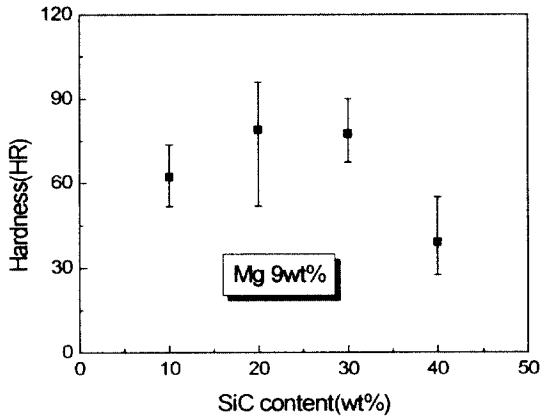


Fig. 9 Hardness distribution of composites according to the weight fraction of SiC content

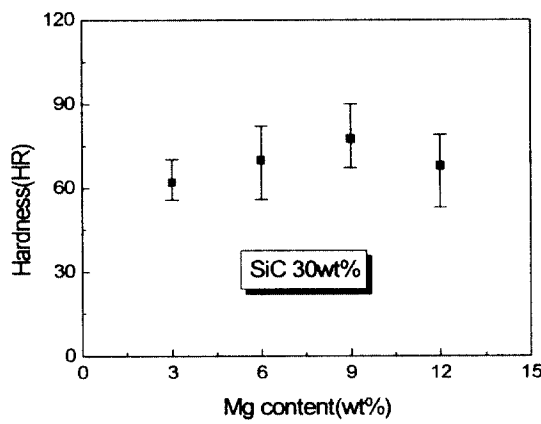
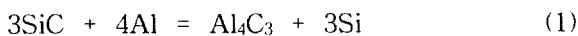


Fig. 10 Hardness distribution of composites according to the weight fraction of SiC content

화합물의 형성이 증가할 뿐 아니라, Mg 자체가 반응성이 강하므로 금속과 세라믹상에 침식이 발생하여 계면이 취약해지기 때문인 것으로 판단된다.

3.3 반응생성물

Fig. 11은 본 연구에서 제작한 Al-30wt% SiC(Mg 첨가량 9wt%) 복합재료의 XRD 분석결과를 나타낸 것이다. SiC_p/Al 복합재료 제조시 계면 반응의 결과로 Al₄C₃가 형성되고 Si는 기지로 방출되는데, 그 반응식은 다음과 같다^{13,14}.



본 연구에서는 Al₄C₃의 형성을 관찰할 수 없었

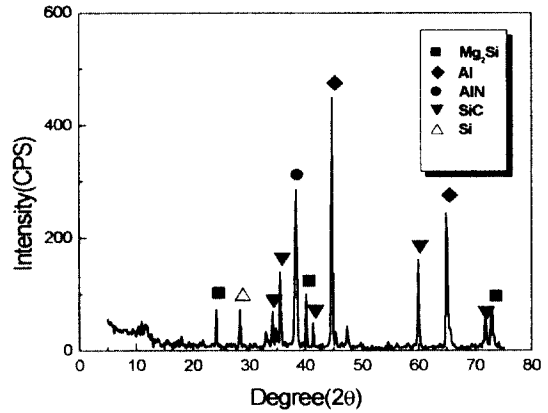
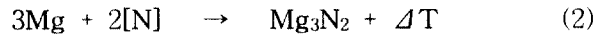


Fig. 11 XRD pattern of Al-30SiC(Mg 9wt%) composites specimen fabricated

고, 다만 Mg₂Si와 AlN 피크가 나타나는 것을 확인할 수 있었는데, AlN은 Al-Mg계에 질소개스의 유입으로 인한 in-situ 반응에 의해 생성되어진 것으로 판단되며, 이때의 반응식은 다음과 같다¹⁵.



AlN은 영률, 강도, 내마모성 등이 우수하고, 고온에서도 강화재의 분해가 발생하지 않는 우수한 열적 안정성을 지니고 있으며, 또한 기지 Al에 대해 보다 젖음성이 뛰어난 것으로 보고되고 있다¹⁶.

Fig. 12는 Al-30wt%SiC(Mg 첨가량 9wt%) 복합재료에 대한 EPMA mapping 및 line profile의 결과이다. mapping 결과 반응생성물 영역에 Mg와 Si가 관찰되었고, 또한 line profile의 결과 반응생성물 영역에서 Mg와 Si의 강도가 매우 높게 나타난 것을 볼 수 있는데, 앞서 보인 Fig. 11의 XRD 분석결과와 병행해서 생각해 볼 때 이 반응생성물은 Mg₂Si인 것으로 판단된다. Mg₂Si는 시효경화를 발생시켜 복합재료의 경도를 향상시키는 것으로 보고되고 있다^{17,18}.

4. 결 론

본 연구에서는 무가압침투법에 의해 SiC_p/Al 복합재료를 제조함에 있어서 강화상인 SiC의 무계분율과 첨가제인 Mg의 함량의 변화가 용융 Al의 침투거동 및 복합재료의 미세구조에 미치는 영향을 분석하였다. 또한 이러한 공정변수의 변화에 따른 복합재료의 기계적 특성과 복합재료의 제조공정중에 발생하는 반응생성물을 분석하였다. SiC_p/Al 복

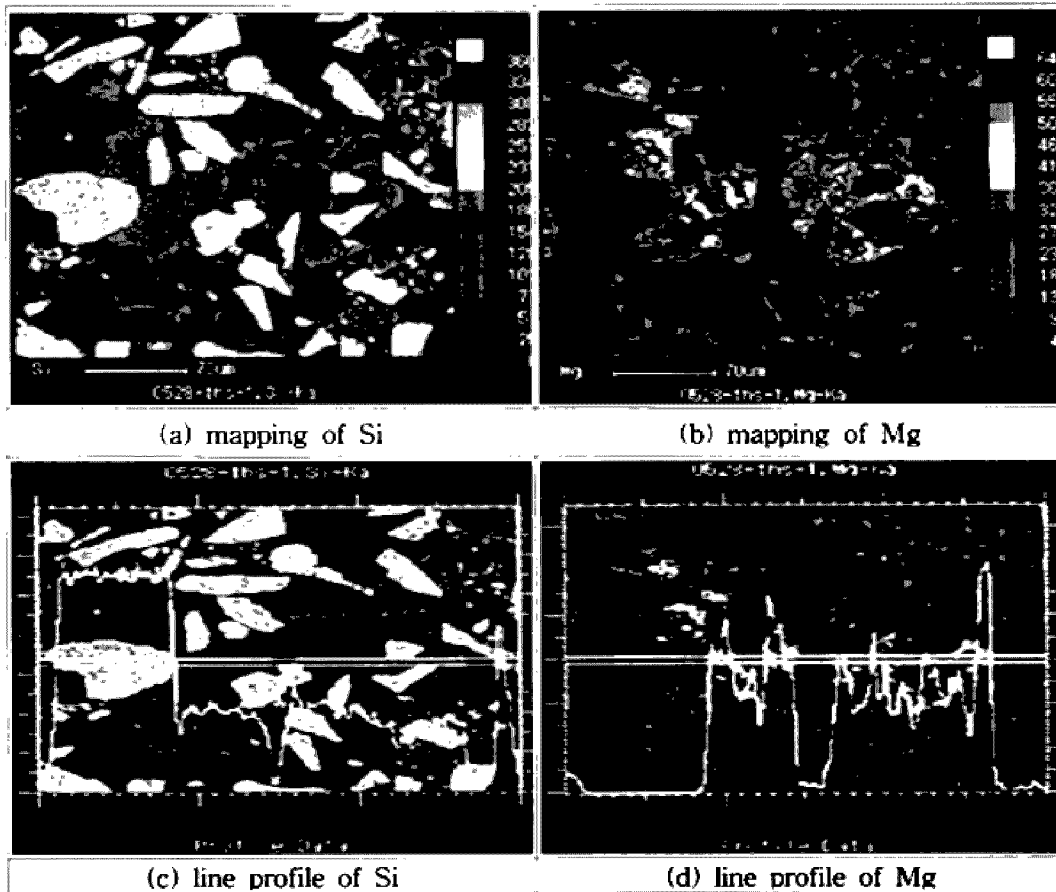


Fig. 12 EPMA analysis of Al-30SiC(Mg 9wt%) composites specimen fabricated

합재료의 제조에 있어서는 강화상의 무게분율과 첨가제의 함량이 모두 용융 Al의 침투거동에 직접적인 영향을 미치는 것으로 확인되었는데, 가열온도 1000℃, 유지시간 3시간의 공정조건하에서는 SiC의 무게분율 30wt% 이상, Mg의 함량 9wt% 이상일 때 완전한 침투가 일어나 강화상이 균일하게 분포된 SiC_p/Al 복합재료가 제조되었다. 이 두 변수는 복합재료의 경도분포에도 큰 영향을 미치는 것으로 확인되었다. 한편 SiC_p/Al 복합재료 제조시 기지재와 강화상의 계면에서 용융 Mg이 SiC 입자와 직접 반응하여 Mg₂Si라는 반응생성물을 형성하였으며, 또한 기지재와 노내의 질소가스의 반응에 의해 또 다른 반응생성물인 AlN이 형성되었다.

후 기

이 논문은 2000학년도 부경대학교 기성회 학술조성비에 의하여 지원되었음.

참 고 문 헌

1. 조원식, "자동차산업의 신소재기술", 대한기계학회지, 제34권 제5호, pp. 351~360, 1994
2. 한경섭, 김영한, "금속복합재료의 제조 및 응용", 대한기계학회지, 제32권 제1호, pp. 46~56, 1992
3. A. P. Divecha, S. G. Rishman and S. D. Karmarkar, "Silicon Carbide Reinforced Aluminum A Formable Composite", J. Metals, Vol. 33, pp. 12~17, 1981
4. S. V. nair, J. K. Tien and R. C. Bates, "SiC-reinforced aluminium metal matrix composites", Intern. Metals Review, Vol. 30, pp. 275~288, 1985
5. A. Ibrahim, F. A. Mohamed and E. S. Lavemia, "Particulate reinforced metal matrix composites-a review", J. Mater. Sci., Vol. 26, pp. 1137~1156, 1991
6. A. Mortensen and I. Jin, "Solidification processing of metal matrix composites", Int. Mater. Rev., Vol. 37, pp. 101~128, 1992
7. S. Ray, "Review synthesis of cast metal matrix particulate composites", J. Mater. Sci., Vol. 28, pp. 5397~5413, 1993

8. M. K. Aghajanian, M. A. Rocazella, J. T. Burke, S. D. Keck, "The fabrication of metal matrix composites by a pressureless infiltration technique", *J. Mater. Sci.*, Vol. 26, pp. 447~454, 1991
9. A. W. Urquhart, "Novel reinforced ceramics and metal : a review of Lanxide's composite technologies", *Mat. Sci. and Eng.*, Vol. A144, pp. 75~82, 1991
10. B. C. Pal, Geetha Ramani, R. M. Pillai, K. G. Satyanarayana, "Review role of magnesium in cast aluminium alloy matrix composites", *J. Mater. Sci.*, Vol. 30, pp. 1903~1911, 1995
11. 전형준외 4인, "Al-Mg 합금에서 in-situ 반응에 의한 AlN의 형성", *대한금속학회지*, 제36권 제5호, pp. 706~714, 1998
12. 이견배외 5인, "무가압침투법에 의해 제조된 Al-Mg/SiC_p 복합재료에 미치는 침투온도 및 시간의 영향", *대한금속학회지*, 제36권 제2호, pp. 242~248, 1998
13. T. Iseki, T. Kameda, T. Maruyama, "Interfacial reactions between SiC and aluminium during joining", *J. Mater. Sci.*, Vol. 19, pp. 1692~1698, 1984
14. F. H. Samuel, H. Liu, and A. M. Samuel, "Effect of melt cleanliness on the properties of an Al-10 wt Pct Si-10 Vol. Pct SiC(p) composite", *Metall. Trans. A*, Vol. 24, pp. 1631~1645, 1993
15. M. I. Pech-Canul, R. N. Katz, M. M. Makhlof, "Optimum conditions for pressureless infiltration of SiC_p pre-forms by aluminum alloys", *J. Mater. Pro. Technol.*, Vol. 108, pp. 68~77, 2000
16. Qinghua Hou, Raj Mutharasan and Michael Koczak, "Feasibility of aluminium nitride formation in aluminum alloys", *Mater. Sci. and Eng.*, Vol. A195, pp. 121~129, 1995
17. N. Han, G. Pollard, and R. Stevens, "Interfacial structure and fracture of aluminium alloy A356-SiC particle metal matrix composite", *Mater. Sci. Technol.* Vol. 8, pp. 184~187, 1992
18. A. Zulfia, R. J. Hand, "Role of Mg and Mg+Si as external dopants in production of pure Al-SiC metal matrix composites by pressureless infiltration", *Mater. Sci. Technol.*, Vol. 16, pp. 867~872, 2000