

천이액상확산접합에 대하여

姜 晶 允*

On the Transient Liquid Phase Diffusion Bonding

C.Y.Kang*

1. 서 언

Joining(접합)이란 2개의 물체를 연결한다는 의미이고, 최근에는 Welding(용접)과 Bonding(접합)으로 구별하여 쓰는 경향이 있다. 용접은 모재를 용융시켜 2개의 물체를 연결하는 의미로서 주로 조선, 자동차와 같은 구조물을 제작하는 경우에 많이 사용되고 있으며, 접합은 모재를 용융시키지 않고 2개의 물체를 연결하는 의미로서 전자 부품과 같은 소형제품에 널리 사용되고 있다. 그리고, 용접과 접합의 또 다른 구별로써 용접은 선(線) 즉 2차원적으로 두 물체를 연결하는 것이고, 접합은 면(面) 즉 3차원적으로 연결하는 것이다.

차세대의 접합기술로서는 고성능화, 고능률화, 고정밀화라는 관점으로부터 선용접보다 면접합이 더욱 각광을 받을 것으로 생각된다.

더우기, 최근 연구 개발되고 있는 신금속 즉 초내열합금(Superalloy), 결정제어합금(예를들면, 일방향응고합금, 단결정합금, 공정합금 등), 분산강화합금(예를들면, Oxide Dispersion Alloy), 금속기섬유강화합금(Metal Matrix Fiber Reinforced Alloy)등에 용융용접을 적용하는 경우, 용접균열, 재열균열등과 같은 문제가 발생할 뿐만아니

라^{1)~9)}, 모재의 본질적인 강화기구를 소실하는 것이 큰 문제점으로 지적할 수 있다. 따라서, 이와 같은 신금속재료의 접합에는 용융용접 대신에 모재를 거의 용융시키지 않는 면접합이 이용되고 있다.

면접합으로는 고상확산접합법(Diffusion Bonding), 브레이징법(Brazing), 천이액상확산접합법(Transient Liquid Diffusion Bonding)등이 있다. 천이액상확산접합법은 접합과정중 일시적으로 액상을 형성시킨 후, 접합온도에서 유지시키므로써 액상을 등온응고(Isothermal Solidification)시켜 접합하는 방법이다.

천이액상확산접합법은 접합계면에 일시적으로 액상이 형성되기 때문에, 고상확산접합법과 비교하여 비교적 쉽게 금속결합을 이룰 수 있을 뿐만 아니라, 정밀하게 표면을 가공할 필요가 없으며, 접합압력이 거의 필요 없다는 것이 잇점이라고 할 수 있다. 또한, 접합온도에서 등온응고되기 때문에, 브레이징법과 비교하여 접합계면에 취약한 금속간화합물(Metallic Compound)이 생성되지 않으므로, 기계적성질 및 내식성이 우수한 접합이음부를 얻을 수 있다는 잇점이 있다.

따라서, 본 접합법은 원리적으로 모재(Base

* 釜山大學校 工科大學 金屬工學科 助教授

Metal)와 거의 같은 정도의 물리적, 화학적, 기계적 성질을 갖는 접합이음부(Joint or Bonded Interlayer)를 얻을 수 있는 접합법이라고 생각되어진다. 본 해설에서는 천이액상화산접합법의 기본원리, 접합기구, 접합인자 및 실용된 예에 대해서 서술하고자 한다.

2. 천이액상화산접합법의 기본원리와 접합기구

2.1. 기본원리

천이액상화산접합법의 기본 개념은 1959년 J.B Lynch¹⁰⁾에 의해 얇은 Ni판을 삽입금속(Insert Metal)으로 하여 Ti합금을 접합한 것으로 부터 시작되었다. 그후 1970년 초에 Ni기 초내열합금(Ni Base Superalloy)을 대상으로 이와같은 개념을 적용한 G.S.Hoppin의 Activated Diffusion Bonding¹¹⁾ 혹은 D.S.Duval의 TLP Bonding(Transient Liquid Phase Bonding)¹²⁾이라는 천이액상화산접합법이 개발되었다.

우선 본 접합법의 접합과정을 살펴보자. Fig.1¹²⁾은 본 접합법의 접합과정을 모식적으로 표시한 것이다. 간단히 하기 위해서 모재로서는 순금속 A를 삽입금속으로서는 A-B 2 원계합금을 설정하였다. 또한, 그림 중의 기호는 다음과 같이 표시된다.

--- C_1 : 삽입금속의 초기 B금속의 농도, T_{m1} : 삽입금속의 고상선의 온도 즉 공정점의 온도 (Eutectic Point), T_{mb} : 모재(A금속)의 용융온도 (Melting Point), T_B : 접합온도, C_s : 접합온도에서 고상의 B금속의 평형농도, C_l : 접합온도에서 액상의 B금속의 평형농도---

Fig.1에서 알 수 있듯이, 접합과정은 4단계, 즉 (1) 삽입금속의 용융과정, (2) 삽입금속에 의한 모재의 용융과정, (3) 액상의 소멸과정, (4) 성분 원소의 균일화과정으로 분류할 수가 있다.

(1) 삽입금속의 용융과정 ; A금속과 A금속 사이에 삽입금속(A-B합금)을 끼워서 로(Furnace)에 장입하여 접합온도 T_B 로 가열하면, Fig.1의 1과 같이 B금속의 농도가 C_1 인 삽입금속만이 용융하여 접합부를 메운다.

(2) 모재의 용융과정 ; 접합온도에 유지하면, 용융한 삽입금속과 모재가 반응하여 Fig.1의 2에 표시한 것 같이 접합부근방의 모재가 용융하고 액상층은 더욱 확대된다. 이와같은 반응은 액상의 B금속의 농도가 C_l 로 저하할 때 까지 계속되고, 이 반응이 완료한 경우, 고상층의 B금속의 농도는 C_s 로 된다.

(3) 액상의 소멸과정 ; 더욱 접합온도에 유지하면, 액상 중의 B금속이 고액계면(Solid-Liquid Interface)으로 부터 B금속의 농도구배에 따라서 고상인 모재측으로 확산유출됨과 동시에, 액상의

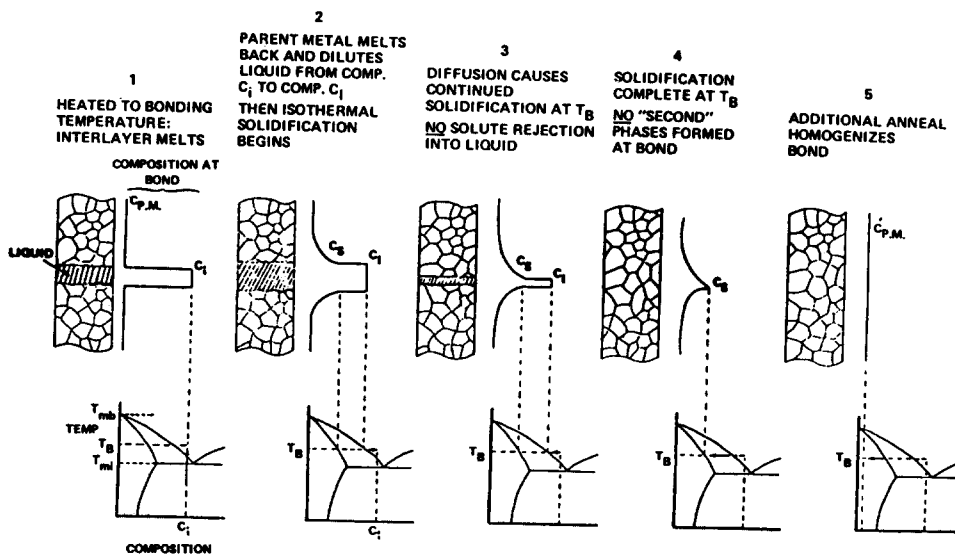


Fig.1 Mechanism of isothermal solidification during transient liquid phase bonding

농도는 늘 C_1 로 일정하게 유지할 필요가 있으므로, 고액계면의 액상은 등온응고하여 Fig.1의 3과 같이 점차적으로 액상이 감소된다. 결국, 액상의 B금속의 농도가 C_0 로 되면 Fig.1의 4에 표시한 것처럼 등온응고가 완전히 끝난다.

(4) 성분의 균일화과정; 액상이 소멸한 후, 고상상태에서 B금속이 모재로 확산하여 모재와 접합부의 농도가 균일하게 분포한다. 또한 조직적으로 보아도 접합면이 소실하여, 모재와 접합부가 구별할 수 없게 되어 접합이 완료하게 된다. 다원계합금의 경우는 용점저하원소 이외의 합금원소의

균일화가 이루어져야만 완전한 접합조건으로 된다. 이때문에 접합온도 보다 약간 낮은 온도에서 장시간 균일화처리를 할 필요가 있다. 이상이 본 접합법의 기본적인 원리이다.

Fig.2은 본접합법의 접합과정과 접합현상에 대하여 Ni-B 2원계 상태도의 모식도 및 광학현미경 조직을 표시한 것이다. 모재는 Ni기 초내열주조합금인 MM 007이고, 삽입금속은 Ni-15.5 Cr-3.7B합금($50\mu\text{m}$)이다.

(a)는 접합온도 1423K로 가열한 후 즉시 냉각한 경우의 접합부의 조직이고, 거의 공정조직으로

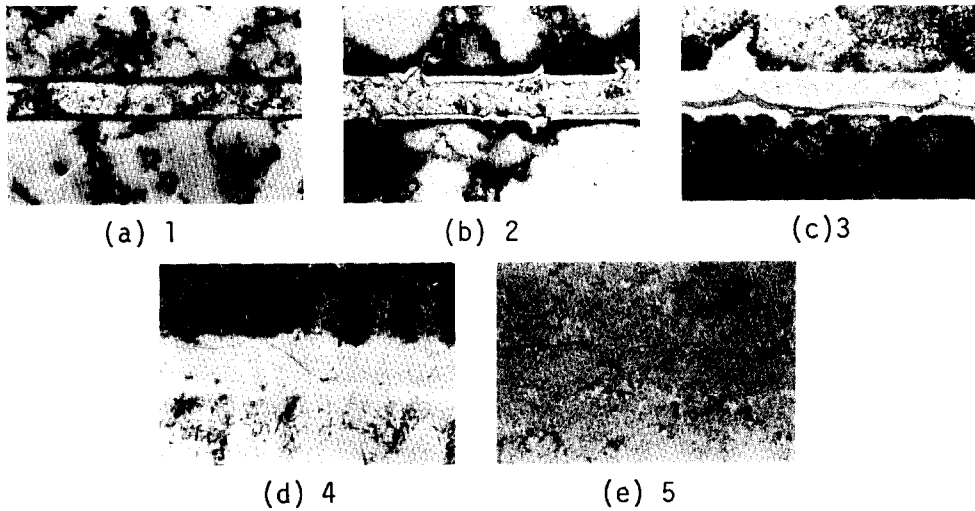


Fig.2 Schematic illustration for transient liquid insert metal diffusion bonding process

되어 있는 것을 알 수 있다. 이것은 삼입금속이 용융한 것을 의미한다. (b)는 1423K에서 50s동안 유지한 경우의 접합부의 조직으로 고용체와 공정조직으로 되어 있고, 그 량은 (a)보다 증가되어 있는 것을 알 수 있다. 이것은 액상의 삼입금속과 모재가 반응하여 액상량이 증가하고, 접합온도(상태도상의 2)에서 냉각시 고용체가 1차로 정출한 후 잔류액상이 공정변태하기 때문이다. (c)는 1423K에서 3.6ks동안 유지한 경우의 접합부의 조직이고, 공정량이 감소하는 것을 알 수가 있다. 이것은 등온응고에 의해 액상량이 감소하는 것을 의미한다. (d)는 1423K에서 6.0ks동안 유지한 경우의 접합부의 조직을 나타낸다. (d)에서 알 수 있듯이 공정조직은 존재하지 않는다. 이것은 액상이 완전히 소멸한 것을 의미한다. (e)는 1423K에서 6.0ks로 접합한 후, 1423K에서 86.4ks동안 균일화처리한 경우의 접합부의 조직을 나타낸다. 모재와 접합부의 조직이 거의 유사한 것을 알 수 있다.

또한, 전술한 바와 같이 접합과정은 (1) 삼입금속의 용융과정, (2) 모재의 용융과정, (3) 액상의 소멸과정, (4) 성분원소의 균일화과정으로 분류할 수 있다.

2.2. 접합현상

전술한 바와 같이 접합과정은 크게 4단계로 나누어 생각할 수 있으나 그 중에서도 모재의 용융과정, 액상의 소멸과정 및 (모재)성분의 균일화과정은 더욱 중요하다고 말할 수 있다. 이들의 각 과정에 있어서 접합현상 및 접합기구에 대한 연구결과 및 문제점에 대해서 기술한다.

2.2.1. 모재의 용융과정

액상의 삼입금속에 의한 모재의 용융과정은 접합결합과 밀접한 관계가 있을 것으로 예상된다. 따라서, 접합결합이 없는 건전한 접합이음부를 얻기 위해서는 이 과정에 대해서 충분한 검토가 이루어져야 할 것으로 생각되어지고, 접합기구를 파악하기 위해서도 중요한 과정으로 생각되지만, 이 과정의 접합현상 및 접합기구에 대한 연구는 아주 드물다. 이 과정에 영향을 미치는 인자로서는 모재의 표면상태, 모재의 성분 및 조직, 삼입금속의 성분 및 형태 등을 들 수 있다.

Fig.3¹³⁾은, 접합 초기단계에 있어서 접합부의 조

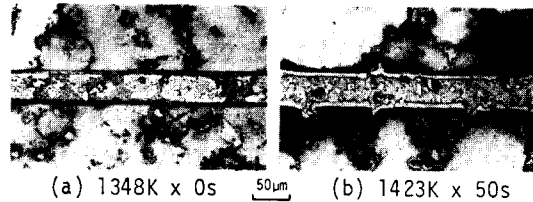


Fig.3 Dissolution phenomenon of the base metal into liquid insert metal

직 변화를 표시한 것이다. 이것으로 부터 모재와 용융금속층의 계면은 최초에는 평활한 계면이지만, 유지시간이 증가할수록 부분적으로 모재가 우선적으로 용융한 영역이 보여지고, 이 영역은 Dendrite경계와 잘 일치하고 있다. Dendrite경계가 Dendrite중심(Core)에 비하여 용점이 낮기 때문 일 것이다.

또한 모재의 용융현상은 액상/고액계면에 있어서 고상으로 부터 액상으로 용질원소(용점저하 원소, B,P,Si등)가 용출하는 계면반응과 계면으로부터 고상의 내부로 용질원소가 확산 이동하는 소과정(素過程)을 포함하는 다음식으로 나타내는 Nernst-Brunner식을 이용하여 해석되고 있다¹⁴⁾.

$$n = n_s [1 - \exp\{-K(A/V)\}] \dots\dots\dots (1)^{15)}$$

n : t 초 후의 용질원소의 농도, n_s : 용질원소의 포화농도, K : 모재의 용융반응의 속도정수, A : 반응 면적, V : 반응액상의 체적, t : 시간

(1)식을 기초로 하여 모재의 용융폭의 시간적 변화를 표시하는 식으로서 다음의 식이 얻어진다.

$$K \cdot t = h [\ln \{ X_s (X + p \cdot h) / p \cdot h (X_s - X) \}] = P \dots\dots\dots (2)$$

여기서, X : 모재의 용융폭, X_s : 모재의 평형 용융폭, p : 액상과 고상의 밀도비, $2h$: 초기의 액상폭, P : 모재의 용융 Parameter이다.

Fig.4¹⁴⁾는 Ni기 초내열 주조합금 MM 007을 삼입금속으로서 Ni-Cr-B계 합금을 사용하여 접합을 행한 경우, 유지시간에 따르는 모재의 용융폭의 변화를 용융Parameter로 정리한 결과이다. 유지시간과 용융Parameter의 관계는 거의 직선관계가 있는 것을 알 수 있다. 이것으로 부터 모재의 용융현상에 대해서 Nernst-Brunner식이 적용 가능하다는 것을 알 수 있으나, 이 용융현상의 율속과정(Controlled Process)이 확산율속과정인가,

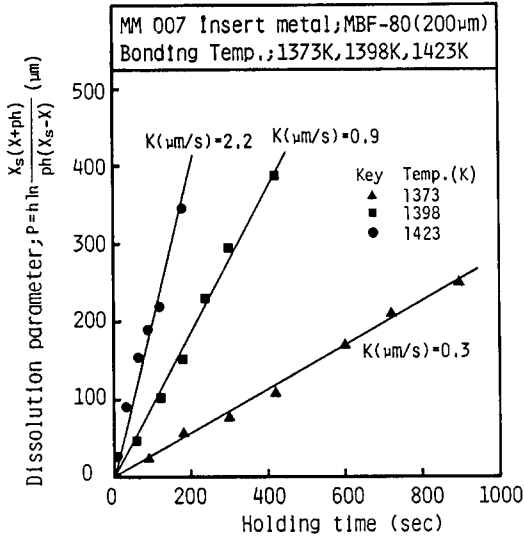


Fig.4 Relation between dissolution parameter P and holding time t at various temperature

계면반응에 의한 것인가는 아직 규명되어 있지 않다.

2.2.2. 액상의 소멸과정

접합계면에 형성된 계면은 접합온도에 유지시키므로써 액상으로 부터 모재를 향해서 용점저하 원소(B, P, Si 등)가 확산유출하는 것에 의해 등온응고하는 것으로 생각된다. 이와같은 제안은 이론적 해석과 실험적 검증을 통해서 Ni-B, Ni-P, Ag-Cu 2원계 합금에 대해서는 거의 규명되어 있다.

Fick 제2법칙과 Mass Balance로 부터 액상의 두께를 2h로 하는 경우, 액상의 소멸에 필요로 하는 시간 t_r 는 다음과 같이 주어진다.

$$t_r = h^2 / 4Db^2 \dots\dots\dots (3)^{16}$$

단, $b = -x / 2(Dt)^{1/2}$

또한, 간단히 하기 위하여 고액계면에 있어서 고상 중의 용질원소가 일정하다고 가정하면, 임의의 시각 t에 있어서 액상폭은 다음과 같이 주어진다.

$$2x = 2h - (C_s / \pi^{1/2} V_s) (C_i / V_1 - C_s V_s)^{-1} (Dt)^{1/2} \dots\dots\dots (4)^{17}$$

여기서, D; 고상 중의 용점저하원소의 확산계수, V₁; 액상의 몰 체적(Molar Volume), V_s; 고상의 몰 체적, 2x; 임의의 시각에 있어서 액상폭, 2h; 액상의 초기폭이다. Fig.5¹⁸⁾는 모재로서

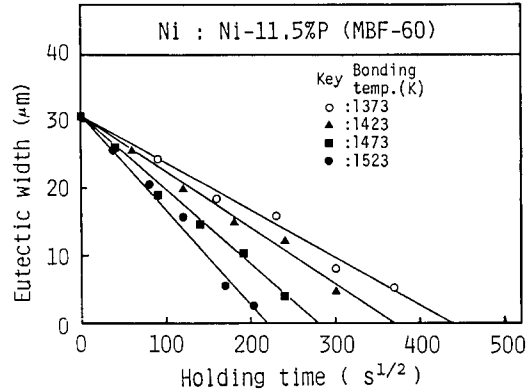


Fig.5 Effect of holding time at each temperature on eutectic width for Ni-P system

Ni을, 삽입금속으로서 Ni-11.5P 합금을 사용하여 접합한 경우, 유지시간에 따르는 액상폭의 변화를 나타낸다. 액상과 유지시간의 평방근($t^{1/2}$)사이에는 직선관계가 이루어지고, 상기의 (4)식이 성립한다는 것을 알 수 있다. 다시말해서, 액상의 소멸현상은 용점저하원소의 확산과정에 율속된다는 것을 알 수가 있다.

2.2.3. 합금원소의 균일화 과정

등온응고가 완료한 시점에 있어서도 접합부에는 Fig.2의 4에 표시된 것 처럼 용점저하원소의 불균일 분포가 존재한다. 다원계 합금의 접합부에서는 타의 합금원소도 이 단계에서 불균일한 상태에 있다. 만족할 만한 기계적 성질을 얻기 위해서는 합금원소의 분포를 균일화할 필요가 있고, 이를 위해서 열처리를 행할 필요가 있다. 이 열처리 과정에서 원소의 균일화는 고상 내의 확산에 의해서 율속된다. 다원계 합금에 관해서, 이 과정의 이론적 해석을 행하기 위해서는 다수 원소의 상호확산을 고려할 필요가 있으므로, 일반적으로 해석이 거의 불가능할 것이다. 그러나, 현상론적으로는 다음과 같이 취급이 가능한 것으로 보고되어 있다¹⁹⁾. 확산계수 D가 농도에 의존하지 않는다고 가정한 경우, Fick의 제2법칙은 다음 식으로서 표시된다.

$$dC/dt = D(d^2C/dx^2) \dots\dots\dots (5)$$

$-h \leq x \leq h$; $C = C_0$, $|x| > h$; $C = 0$ 의 초기조건 하에서 h^2 이상의 고차항을 무시하여 (5)식을 풀면 다음 식이 얻어진다.

$$C = \{C_0 h / (\pi Dt)^{1/2}\} \exp(-x^2 / 4Dt) \dots\dots\dots (6)$$

(6)에 있어서 접합층 중앙부 ($x=0$)에서의 원소 농도 C_p 라고 하면, D 는 다음 식으로 표시할 수가 있다.

$$D = (h^2/\pi t) (C_o/C_p)^2 \dots\dots\dots(7)$$

각 원소에 대하여 어떤 시간 t 에 있어서, $x=0$ 에서의 농도 C_p 의 실측치를 (7)식에 대입하는 것에 의해 각각의 겔보기 확산계수가 계산에 의해 구할 수가 있을 것이다. 즉 다원계 합금의 균일화 처리 과정의 각 원소의 농도분포는 실측치로부터 구한 각 원소의 겔보기 확산계수를 이용하여 (6)식에 의해 계산된다. Fig.6²⁰⁾에 ODS합금인 MA 754의 접합에 있어서 상술의 수법에 의해 실측치로부터 구한 각 원소의 겔보기 확산계수를 표시한다. 각 원소의 겔보기 확산계수를 (6)식에 대입하는 것에 의해, 이 합금의 접합부의 균일화처리 과정에서의 시간에 따르는 합금원소의 분포를 예견할 수 있을 것이다.

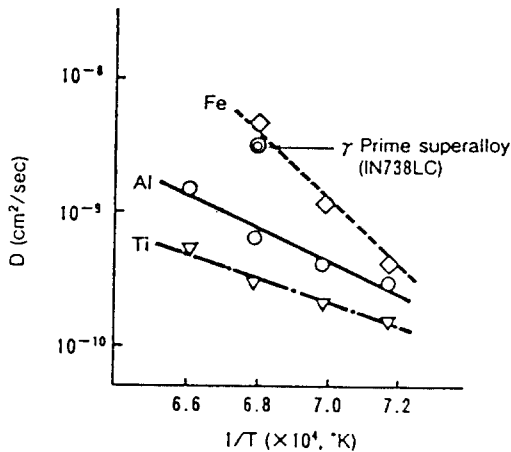


Fig.6 Apparent diffusion coefficients

2.2.4. 접합기구

본 접합법의 접합기구는 접합온도에 유지시켰을 때 액상으로 부터 용점저하원소인 B,P 등이 모재측으로 확산하는 것에 의해 액상이 점차 소멸하여, 현상적으로는 접합이 된다. 그러나, 액상의 소멸에 따르는 고액계면으로부터 고상의 성장기구에 관해서는 충분한 검토가 이루어지지 않은 상태이다.

Fig.7²¹⁾은 삽입금속으로서 Ni-15.5 Cr-3.7B Amorphous합금을, 모재로서 MM 007을 사용한

접합부의 TEM조직 및 Diffraction Pattern이다. 사진에서 알 수 있는 것처럼 접합층 내에 형성된 입계를 경계로 하여, 접합층의 Diffraction Pattern은 각각에 인접한 모재의 Diffraction Pattern과 일치하고 있다. 이것으로 부터, 액상의 소멸에 따라 모재측으로부터 고상이 Epitaxial Growth하여 접합이 이루어지는 것을 알 수 있다. 따라서, 본 접합법의 접합층에 있어서 고상의 성장은 Epitaxial Growth한다는 것이 인정되어진다. 즉 용융용접의 경우와 똑같은 성장기구에 의해서 접합이 이루어지는 것을 알 수 있다.

Table 1은 각종 조건으로 접합한 접합부를 대상으로 하여 접합층과 모재의 경계에 있어서 모재의 결정립수 및 접합층 중의 결정립수를 측정한 결과이다. 모재의 결정립수 및 접합층 중의 결정립수는 거의 대응관계가 있다. 이것은 등온응고시 고상의 Epitaxial Growth에 의한 접합기구임을 뒷받침하고 있다. 따라서, 등온응고 과정중에 있어서, 천이액상확산접합법의 고상의 성장 및 결정입계의 형성은 양쪽의 모재측으로부터 고상이 Epitaxial Growth하여, 양쪽의 고상이 마주치는 곳에서 결정입계가 형성된다고 말할 수 있다.

그러나, 이와같은 접합기구의 해명은 극히 국한된 모재와 삽입금속의 조합에 대해서만 밝혀졌기 때문에, 이후 보다 광범위한 조합에 관해서 검토를 행하여, 일반성에 대해서 규명할 필요가 있다.

3. 삽입금속(Insert metal)

본접합법에 있어서 삽입금속의 역할은 대단히 중요하다. 삽입금속이 구비해야만 할 조건으로서 는 모재와 젖음성(Wettability)이 좋을 것, 모재보다 용점이 낮을 것, 접합온도에서 비교적 단시간에 등온응고할 것, 공동(Void)등의 접합결함을 형성하지 않을 것, 유해한 금속간화합물을 형성하지 않을 것, 비교적 단시간으로 모재 성분의 균일화가 이루어질 것, 광범위의 면접합이 가능할 것 등을 들 수 있다. 따라서, 삽입금속의 합금설계로서는 앞의 조건을 종합적으로 만족할 필요가 있다.

Ni합금 및 Fe합금에 사용되는 삽입금속의 조성으로서 는 모재와 거의 동조성인 합금에 용점저하 원소인 B,P,Si등을 첨가한 합금이 가장 이상적이다. 기본조성계 합금으로서 는 Ni에 B,P,Si 등의

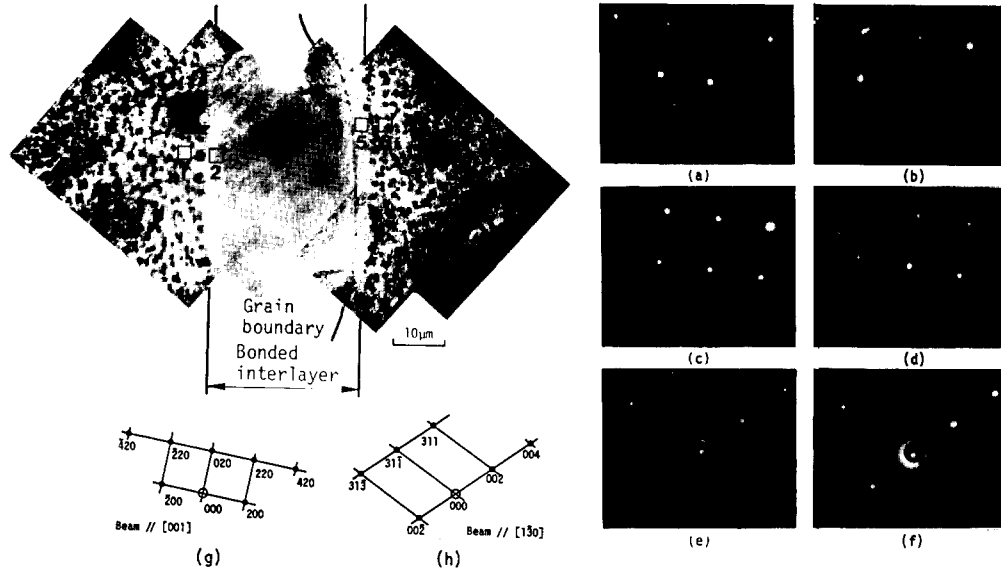
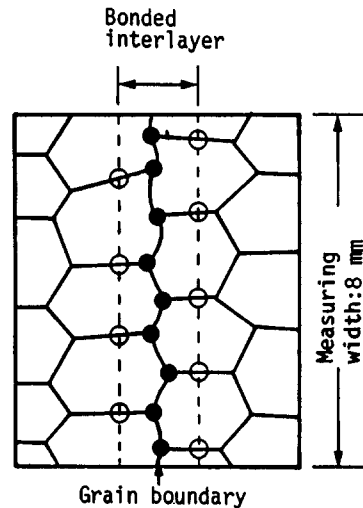


Fig.7 TEM structure of the bonded interlayer and diffraction pattern and its key diagrams taken from numbering zones (MM 007 : Ni-15.5Cr- 3.7B, 1423K×3.83ks) (a) 1, (b) 2, (c) 3, (d) 4, (e)5, (f) 6, (g) key diagram of (a), (b), (c), (d), (h) key diagram of (e), (f)

Table 1 Relation between number of grain at mating surface of base metal and number of grain at the bonded interlayer

Base metal	Insert metal	Bonding condition		ΣN_b	ΣN_i
		temp.(K)	time(ks)		
H-1	MBF-80	1373	3.84	52	50
				39	39
		1423		34	34
				33	33
		1453		20	20
	28			28	
H-1(D.S.)	MBF-80	1423	4	4	

ΣN_b : Summation of nodes, ○
 ΣN_i : Summation of nodes, ●



용점저하원소를 함유한 것이다. 용점저하의 효과로서 B에 대하여 살펴 보면, Ni에 4% 첨가하는 것에 의해 약 300°C의 용점을 저하시킬 수가 있다. 이와같은 관점에서, 기본적인 삽입금속의 조성으로서 생각되는 것을 Table 2에 표시하였다.

또한 Table 3은 현재 시판되고 있는 Ni기 삽입금속을 표시한다.

어떤 삽입금속이 좋은가는 일률적으로 말할 수 없고, 모재의 조성과 요구되는 성질 다시 말해서 기계적 성질 및 내식성 등을 고려하여 선택해야

Table 2 Insert metal of Ni and Fe base

組 成	融點(℃)	備 考
Ni-4B	1080	共晶點
Ni-11, 5Si	1152	共晶點
Ni-11P	880	共晶點
Ni-15Cr-3, 5B	1055	3元共晶
Ni-14Cr-3B-4, 5Si-4, 5Fe	1075	BNi-1A
Ni-18, 5Cr-10Si	1135	BNi-5
Fe-3, 8B	1149	共晶點
Fe-4, 3C	1147	共晶點

Table 3 Amorphous insert metal of Ni base

Materials	Chemical composition (mass%)					Melting range (K)	Remark
	Ni	B	Si	Co	Cr		
MBF-30	Bal.	3, 0	4, 4	-	-	1253-1313	BNi-3
MBF-35	Bal.	2, 1	7, 5	-	-	1233-1283	-
MBF-50	Bal.	1, 4	7, 1	-	17, 8	1338-1423	BNi-5
MBF-80	Bal.	3, 7	-	-	15, 5	1293-1338	-
MBF-90	Bal.	2, 7	4, 0	20, 0	-	1253-1383	-

할 것이다.

Ti용의 삽입금속으로서는 순동(Pure Copper)이 아주 옛날 부터 사용되어져 왔고, Ti과 Cu의 공정반응(16% Ti)이 이용되었다. 더욱 용점을 낮추기 위해서는 Ni등을 첨가시킨다. Table 4에 사용되는 삽입금속의 조성을 나타낸다.

Table 4 Insert metal of Ti base

組 成	融點(℃)	備 考
Cu	1083	
Ti-84Cu	870	共晶點
Ti-28, 5Ni	955	共晶點
Ti-14Ni-14Cu	960	
Ti-25Zr-50Cu	815	
Ti-37, 5Zr-15Cu-10Ni	815	

Al합금의 접합에는 Al-Cu, Al-Si-Cu합금 등의 삽입금속이 사용되지만, 될 수 있는 한 얇은 것이 양호한 이음부를 얻을 수가 있다.

천이액상화산접합법에 사용되는 삽입금속은 B, P, Si등의 원소를 포함하고 있기 때문에 연신가공이 곤란한 경우가 많다. 이때문에 분말상으로 하든가, 혹은 삽입금속용 합금을 액체상태로 부터 급냉응고시켜, Amorphous화한 초박판으로 하여

사용한다. 삽입금속을 Amorphous화 시키는 것에 의해, 취급이 용이하게 되고, 접합성능도 분말상보다도 우수한 것으로 알려져 있다. 일반적으로 삽입금속의 두께는 약 0~100 μ m 정도의 것이 사용되고 있다.

삽입금속을 양쪽의 모재 사이에 끼우지 않고, 모재 표면에 Ni-B 및 Ni-P합금을 도금하는 방법도 행하여지고 있다. 최근에는, Laser Beam으로 모재에 저융점 합금층을 형성시켜, 이것을 삽입금속으로써 이용하여 접합하는 방법²²⁾이 개발되고 있다. 똑같은 개념으로 접합면을 저융점화하여 접합하는 방법으로서 Boron Packing법²³⁾ 혹은 Sputtering증착에 의해 B를 합금화하는 방법²⁴⁾도 시도되고 있다. 이와같은 방법은 접합 작업성을 향상시키고, 복잡한 면의 접합을 용이하게 하고, 공동이 감소하게 되어 신뢰성을 향상시킬 수 있는 잇점이 있는 반면, 공정수가 증가하여 비용이 비싸게되는 점이 결점으로 지적될 수 있다.

4. 접합인자

접합이음부의 기계적 성질에 영향을 미치는 제 인자의 계통도를 Fig.8에 표시한다. 주요 접합인자로서는 모재의 표면상태, 삽입금속, 접합조건, 균일화 처리조건, 접합결합등을 들 수 있다. 그이 외에도 재료에 따라서는 이음부의 형상, 석출입자의 분포상태, 결정의 배향성 등을 들 수 있다.

모재의 표면상태는 표면 거칠기(Roughness), 흡착층, 산화피막 등에 의해 좌우된다. 그 중에서 산화피막이 제일 문제가 된다. 산화피막은 접합온도로 가열중에 형성되고, 접합초기에 즉 모재의

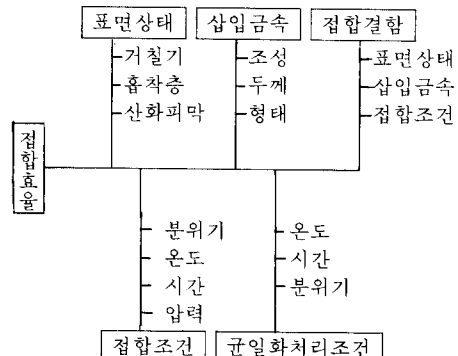


Fig.8 Tensile strength of joint at room temperature
shaded portions are broken in metal

용융과정에서 모재와 분리되고, 액상인 삼입금속과 반응하여 절단, 분해되지만, 일부 잔존하여 기계적 성질을 열화시킨다. 따라서, 될 수 있는 한 산화피막이 형성되지 않도록 고진공 분위기에서 접합을 행하는 것이 좋다.

삼입금속의 인자로서는 조성, 두께, 형태 등을 들 수가 있다. 각 합금 및 재료에 대해서 적정 삼입금속의 조성에 관한 연구가 계통적으로 이루어지지 않은 실정에 있으므로 여기에 대해서는 논할 수가 없다. 일반적으로 기본계 조성인 삼입금속은 균일화 처리 시간이 길다는 것이 단점으로 지적할 수가 있다. 모재성분+용점저하원소인 삼입금속을 사용한 경우, 대체로 Fe합금에서는 양호한 접합이음부의 기계적 성질을 얻을 수가 있으나, Ni합금 중 특히 Al, Ti등이 많이 포함된 주조합금에 있어서는 접합효율이 대체로 낮은 경향이 있다. Fig.9에 삼입금속으로서 Amorphous박판 및 분말상을 사용하여 Inconel 713C를 접합한 접합이음체의 응력-파단시험(Creep-Rupture Test)결과를 나타낸다²⁵⁾. 이것으로 부터 같은 합금조성이라도 분말상 보다 Amorphous박판을 사용하는 것이 양호한 결과를 얻을 수 있다는 것을 알 수가 있다. 그 이유는 아직 분명하지 않다.

접합조건으로서의 접합온도, 접합시간, 접합압

력, 접합분위기 등을 들 수 있다. 접합시간은 접합계면에서 형성된 액상의 등온응고 완료시간을 기준으로 정할 수가 있다. 등온응고 완료시간은 (3)식에서 알 수 있는 것 처럼, 접합온도, 삼입금속의 두께, 삼입금속의 조성에 의해서 결정된다. 접합시간은 접합이음부의 기계적 성질에 큰 영향을 미치지 않을 것으로 생각된다.

본 접합법에서, 접합압력은 원칙적으로 필요가 없고, 다만 접합체의 자중 만으로도 가능할 것이다. 접합압력을 아주 높이면, 접합계면의 액상은 시편 주변부에 흘러나와, 액상폭을 감소시켜, 접합시간 및 균일화 처리시간을 단축시킬 수가 있다. 그러나, 너무 과다하면 액상양의 부족으로 인하여 접합계면과 결정입계가 일치한 상태로 형성되거나, 산화물 등이 분해되지 않은 상태로 잔존하므로 기계적 성질이 열화하는 경향이 있다.

접합온도는 삼입금속과 모재와의 반응성 및 접합결합 등과 밀접한 관계가 있고, 접합결과를 지배하는 중요한 인자이다. 접합온도를 높이면 확산이 촉진되어, 등온응고 시간을 단축시키는 동시에 유해한 생성상이나 공동 등의 접합결합을 감소시키는 경향이 있다. 그러나, 과열하면 모재를 열화시키고 동시에, 접합계면에 형성되는 액상폭이 증가하는 것과 더불어, 모재의 변형에 의해 접합체

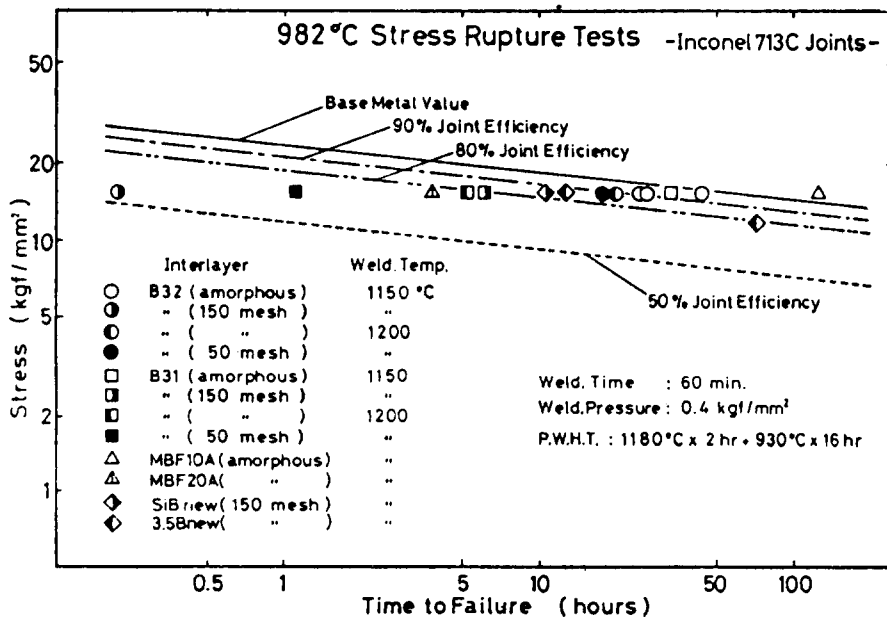


Fig.9 Results of stress rupture test on Inconel 713C joints t 982°C

의 정밀도가 나빠진다. 따라서, 삽입금속의 용점 및 모재의 성질을 고려하여 적절한 접합온도를 선택할 필요가 있다. 접합온도는 일반적으로 삽입금속의 용점 보다 약 50~150°C 높은 온도가 채용되고 있다.

Fig.10은 Inconel 713C를 Ni-15.5 Cr-3.5B합금 (m.p ; 1055°C)을 삽입금속으로 사용하여 접합한 경우의 이음부 강도에 미치는 영향을 표시한 것이다²⁵⁾. 1170°C 이상의 접합온도에서는 전부 모재에서 파단하고, 양호한 접합결과를 나타내고 있다. 1150°C 이하의 낮은 접합온도로 접합한 경우, 이음체에서는 접합부에서 파단하고, 이음부의 강도가 저하하는 것을 알 수가 있다.

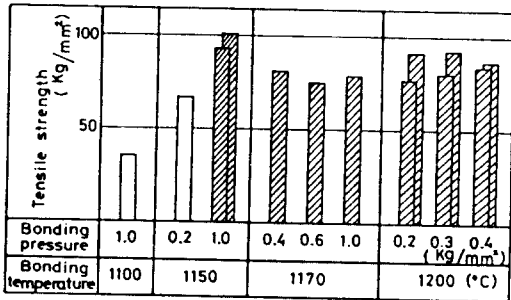


Fig.10 Tensile strength of joint at room temperature shadowed portions are broken in base metal.

천이액상확산접합법은 접합면 또는 삽입금속의 표면의 산화를 방지하기 위하여 진공 혹은 불활성가스 분위기 중에서 행하고 있다. 특히, 모재나 삽입금속 중에 Al, Ti, Hf, Zr 등과 같은 산소와 친화력이 큰 원소가 함유되어 있는 경우는 접합이음부의 특성에 미치는 영향은 현저하다. Fig.11는 Al, Ti, Hf을 함유한 Ni기 초내열합금인 MM 007을 Ni-15.5 Cr-3.5B합금인 삽입금속을 사용하여 접합한 접합이음부의 인장성질에 미치는 영향을 나타낸다²⁶⁾. 670mPa의 낮은 진공도에서는 인장강도가 저하하는 경향이 인정되지만, 13.3mPa 이상의 고진공도에서는 높은 인장강도가 얻어지는 것을 알 수가 있다. 활성인 원소를 함유하지 않은 재료의 접합에 관해서는 접합분위기의 영향은 대체로 작고, 불활성가스 분위기 중에서 접합하여도, 모재의 강도에 필적하는 강도를 얻을 수가 있다는 보고도 있다.

한편, 탄소강이나 Stainless Steel 등의 범용재

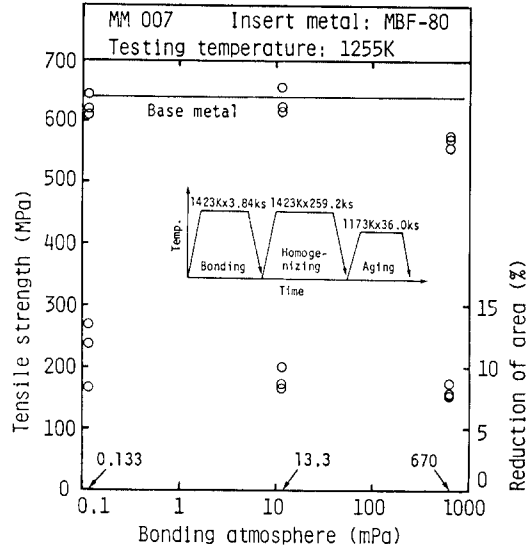


Fig.11 Effect of bonding atmosphere on tensile properties at 1255K of MM 007 joint

료의 접합에 있어서는 대기중에서 접합하는 경우도 있다. Fig.12²⁷⁾은 Ni-P합금을 삽입금속으로서 사용하여 SUS 304와 탄소강을 대기 중 및 진공 (10⁻⁴ Torr)중에서 접합한 경우, 접합강도를 비교한 결과이다. 삽입금속 중의 P량이 낮은 쪽과 가열시간이 5분 보다 짧은 경우에는 진공 중에서 접합한 것이 접합강도가 높지만, 삽입금속 중의

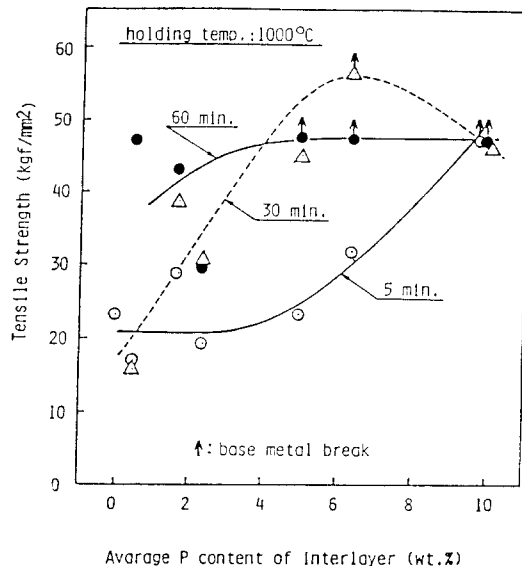


Fig.12 Effect of P content on tensile strength

P의 량이 4% 이상이고, 접합시간이 30분 이상인 경우에는 대기중 및 진공중에서 접합한 접합이음부의 강도 차이가 거의 없고, 모두 모재에서 파단하고 있다.

고용체강화나 석출경화에 의해서 강화되는 합금을 접합하는 경우, 삽입금속중에 강화에 관여하는 원소가 함유되어 있지 않다면, 접합만 완료된 상태에서 모재와 동등한 성능을 얻을 수가 없는 것은 물론이다. 따라서 이들 원소를 접합층으로 확산시켜, 원소분포를 균일화하는 열처리도 접합이음부의 성능을 보증하기 위한 중요한 과정임을 알 수가 있다.

균일화 처리조건은 온도, 시간 및 분위기에 의해 좌우된다. 균일화 처리는 접합온도 보다 약간 낮은 온도에서 장시간 행하는 것이 보통이다. 즉 치환형원소를 확산시키기 위해서는 장시간의 처리가 필요하다. Fig.13 및 Fig.14는 각각 균일화 처리 온도 및 시간에 따르는 접합층 중앙부의 원소들의 농도 및 인장성질을 나타낸다²²⁾. 단, Ni기 합금인 IN 738LC의 접합면 위에 Laser표면합금법으로 형성된 저합금층을 삽입금속으로 하여 접합하였다. 1120°C에서, 접합층의 각 원소의 량을 모재의 수준과 거의 같게 하기 위해서는 약 15hr 유지할 필요가 있다는 것을 알 수가 있다. 한편, 1120°C×15hr 조건으로 균일화 처리한 접합이음부는 거의 모재와 동등한 인장특성이 얻어지고 있다.

접합결함으로서의 금속간화합물, 공동(Void),

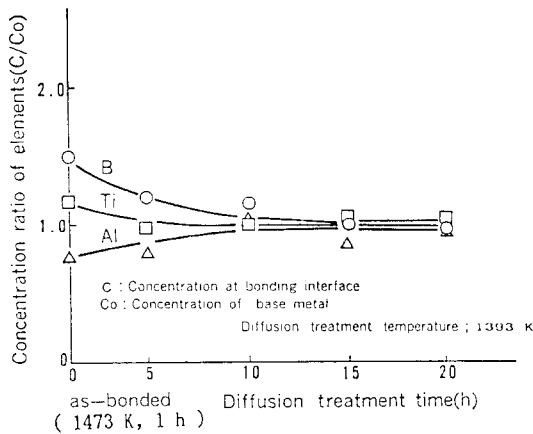


Fig.13 Relation between concentration ratio of elements and diffusion treatment time

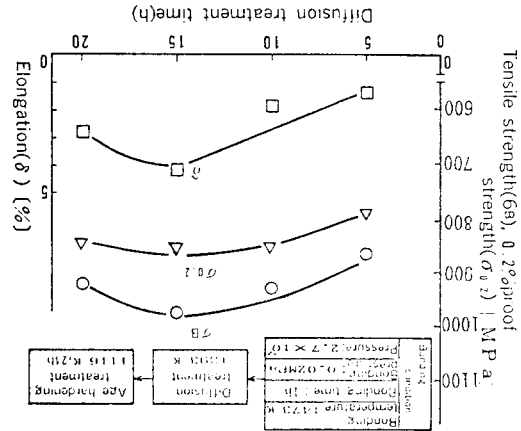


Fig.14 Effect of diffusion treatment time on bonding strength at room temperature

산화물 등이 있다. 삽입금속의 용점저하 및 젖음성(Wettability)을 개선하기 위하여 첨가된 B, P, Si등의 원소는 기지(Matrix)의 원소와 결합하여 붕화물(Boride), 인화물(Phosphide), 규화물(Silicide)등을 형성한다. 이와같은 개재물은 주로 부적당한 조건으로 접합하면, 잔류액상이 존재하여 냉각시 정출하는 경우가 많다. 한번 정출된 생성물은 그후에 열처리를 하여도 고용하지 않은 경우가 많다. 한편, 액상이 응고한 후에도 이와같은 원소가 접합계면에 많이 농축하여 있으면, 냉각과정 중에 석출하는 경우도 있다.

이와같은 생성물은 단단하고 취약하기 때문에 접합부의 기계적 성질을 열화시킬 뿐만아니라 내식성에도 악영향을 주기 때문에 접합이음부의 신뢰성을 저하시키는 하나의 요인이 된다. 개재물의 생성을 방지하기 위해서는 다음과 같은 방법이 유효할 것으로 생각된다. (1) 접합온도를 상승시킨다, 접합시간을 증가시켜, 생성물을 형성하는 원소의 모재측으로 확산을 촉진시킬 것, (2) 삽입금속의 두께를 얇게 하거나, 약간의 압력을 증가시켜 액상폭을 줄일 것, (3) 삽입금속 중에 개재물 형성에 관여하는 원소의 량을 될 수 있는 한 줄일 것, (4) 고용화 열처리를 행할 것.

접합계면에 형성되는 공공은 유효 접합면적의 감소나 역학적 절결 효과를 초래하여, 접합이음부의 신뢰성을 저하시키는 요인 중의 하나이다. 공동의 생성원인은 (1) 삽입금속에 포함된 가스 성분이나, 분위기 중의 가스가 접합계면의 액상으로

Trapping. (2) 삽입금속의 젖음성의 불량. (3) 산화물의 편석 혹은 국부적으로 존재. (4) 삽입금속의 증발에 의한 삽입금속 양의 부족 등을 들 수가 있다. 따라서 공동에 대한 대책으로서는 그 생성원인을 잘 파악하는 것이 중요하다. 대체로 Amorphous합금을 삽입금속으로써 사용하고, 진공 분위기 중에서 접합하면 공동은 거의 생성되지 않는다.

활성인 원소가 다량 포함되어 있는 합금을 저진공 분위기에서 접합하는 경우에는 가끔 모재의 표면산화물이 잔류하는 경우가 있다. 이와같은 경우에는 액상의 양을 증가시키든가, 모재의 표면을 전해연마하여 청정하게 하든가, 모재표면을 Ni, Cu, Ag 등을 도금하면 제어할 수 있을 것으로 생각된다.

5. 천이액상확산접합의 적용 예

천이액상확산접합법은 주로 Ni기 또는 Co기 초내열합금의 항공기 엔진 부품 및 가스터어빈의 제작에 사용되어지고 있다. Fig.15는 본접합법에 의해 제작된 Inconel 713製の 제트 엔진의 터어빈벤(Turbine Vane)이다.

탄소강관(JIS-SGP강관 25A)을 Fe-Si-B계 Amorphous박판을 삽입금속으로 사용하여 천이액상확산접합한 결과, 양호한 성능(인장강도, 굽힘시험, 내압시험에 합격)을 얻을 수 있을 뿐만 아니라, 고능률적인 것으로 판명되었다²⁹⁾.

본접합법의 장점의 하나로서, 이종금속(異種金屬)의 접합이 용이하다는 점을 들 수가 있다. 따라서 금속이종관의 제작에도 적용할 수가 있다. 예를들면, 50 μ m의 Ni박판의 양면에 Ni-P합금(15 μ m)을 도금한 삽입금속을 사용하여, 내관인 저합금강관(API-X42 Grade)과 외관인 Incoloy 825의 Ni합금관을 접합하여 이종관을 제작한 예를 Fig.16²⁹⁾에 나타내었다. Joint는 25~35kgf/mm²인 높은 전단강도가 얻어졌고, 밀착성도 우수할 뿐만 아니라, 굽힘시험에 있어서도 접합면에서의 박리현상은 보이지 않았고, 충분한 굽힘연성을 나타내었다. 따라서, 사용목적에 부응하는 각종 재료 및 다양한 성능을 조합한 각종 이종관의 제조가 가능하다는 것을 알 수가 있다.

이외에도 Al합금이 있어서, 모재의 표면을 Ar으로 Sputtering한 후에, Al-5Si-5Cu 합금층을

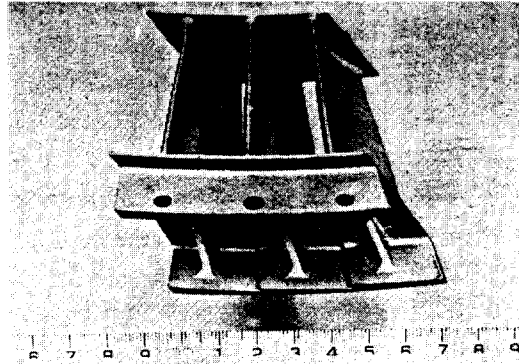


Fig.15 Gas turbine vane jointed TLP bonding

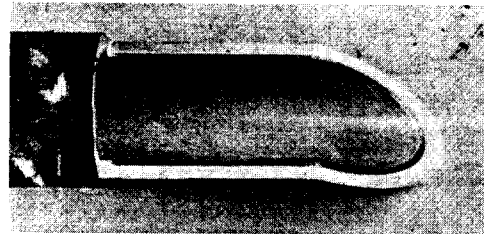


Fig.16 Composite tube jointed TLP bonding

삽입금속으로 사용하여 접합한 결과, 모재에서 파단한 접합이음부를 얻을 수가 있었다³⁰⁾. 같은 방법으로 Cu와 SUS 304의 이종금속 간을 Cu-30Ti 합금층을 사용하여 접합한 경우도 모재에서 파단하는 접합이음부를 얻을 수가 있었다³⁰⁾.

6. 맺음말

공업제품에 대한 고성능화, 고정밀화, 고부가가치화에 부응하여, 금속재료의 접합기술도 크게 변화하고 있는 경향이 있다. 면접합의 요구의 증가도 그 경향의 결과라고 말할 수가 있다. 여기서 취급한 천이액상확산접합법은 고성능, 고정밀화, 고능률화를 겨냥한 면접합 방법으로서, 고가인 초내열합금 및 신금속 재료 뿐만 아니라, 범용재료까지 적용범위가 확대되어 가는 추세에 있다. 본접합법의 특징을 더욱 살리고, 적용범위도 확대하기 위해서는 각종 재료 및 목적에 알맞은 삽입금속의 개발과 더불어 기능적인 접합장치의 개발 등과 주변기술의 충실을 도모해야 할 것으로 생각되어진다.

특히 우리나라에서는 본접합에 대한 연구가 거의 찾아 볼 수가 없는 것이 필자의 마음을 섭섭하게 한다. 이후 우리나라에서도 본 접합법에 대한 연구가 활발히 진행되길 기원한다.

참고문헌

- 1) R.G.Barker ; Philos. Trans. R.Soc. A282(1976), 207
- 2) D.S.Duvall ; W.J., 46-9(1967), 423
- 3) M.J.Lucus ; W.J., 49-2(1970), 46s
- 4) H.Ikawa ; Trans.Japan Weld.Soc., 2-2(1971), 177
- 5) H.Ikawa ; Trans.Japan Weld.Soc., 5-1(1974), 5
- 6) R.Thamburaj ; Inter.Metals Revies, 28 - 1(1983), 1
- 7) E.G.Toompson ; W.J., 47-7(1968), 299s
- 8) W.A.Owczarski ; W.J., 50-9(1971), 401s
- 9) M.H.Haafkens ; W.J., 61-11(1982), 25
- 10) J.F.Lynch ; W.J., 38-2(1959), 85s
- 11) G.S.Hoppins ; W.J., 49-11(1970), 505s
- 12) D.S.Duvall ; W.J., 53-4(1974), 299s
- 13) 姜, 中尾 ; 日本熔接學會界面接合委員會(IJ-86)
- 14) 姜, 中尾 ; 日本熔接學會論文集 6-4(1988), 519
- 15) E.A.Moelwyn - Hughes ; The Kinetics of Reaction in Solution, Clarredon Press Oxford (1974), 374
- 16) 鈴村 ; 日本熔接學會講演概要集(87-9), 36
- 17) 姜, 中尾 ; 日本熔接學會論文集 7-2(1989), 47
- 18) Kang, Nakao ; Superalloys 1988, Met.Soc AIME, p775
- 19) 恩擇 ; 熔接學會誌 45-8(1976), 657
- 20) 平根 ; 日本學術振興廳123 委員會研究報告, 27 -2(1983), 225
- 21) Kang, Nakao ; IIW Doc. IA-334-86(1986)
- 22) 舟本 ; 日本熔接學會論文集 2-4(1984), 594
- 23) 舟本 ; 日本熔接學會論文集 5-3(1987), 378
- 24) 舟本 ; 日本熔接學會論文集 3-4(1985), 207
- 25) 恩擇 ; 熔接學會誌 47-3(1978), 161
- 26) 姜, 中尾 ; 日本學術振興廳123 委員會研究報告, 26-3(1982)
- 27) 上野 ; 日本熔接冶金研究委員會資料 MW-27-86
- 28) 三浦 ; 日本熔接學會講演概要集(87-9), 39
- 29) 上野 ; 鐵の綱, 73-5(1987), 272
- 30) 舟本 ; 日本熔接學會講演概要集(87-9), 51