

## Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/304 스테인레스강 접합체 계면구조가 접합강도에 미치는 영향

김병무 · 강정윤 · 이상래

부산대학교 공과대학 금속공학과

### The Effect of Interfacial Structure on the Bonding Strength in Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/STS304 Joint

B. M. Kim, C. Y. Kang, and S. L. Lee

Department of Metallurgical Engineering, Pusan National University, Pusan 609-735

**초 록** : 첨가원소를 달리한 두 종류의 삽입금속 Cu-10wt% Ti합금과 Cu-7.5wt% Zr 합금을 사용하여 알루미늄과 304 스테인레스강을 활성브레이징법으로 접합하였을 때 두 접합체 계면의 반응층 생성구조를 비교조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

Cu-10wt% Ti삽입금속을 사용한 접합체의 알루미늄쪽 반응층은 단층구조를 이루고 있었으나 Cu-7.5wt% Zr삽입금속을 사용한 경우 반응층은 이중구조를 이루고 있었다. 이는 두 종류의 서로 다른 삽입금속이 용융상태에서 알루미늄 표면에 갖는 젖음성(wettability) 차이에 기인하는 것으로 사료되며 이러한 반응층의 생성구조는 접합강도에 지대한 영향을 미치는 것으로 확인되었다.

Cu-10wt% Ti삽입금속을 사용한 경우 모든 접합조건에서 열응력에 의한 모서리 균열(edge crack)이 관찰되었으나 Cu-7.5wt% Zr삽입금속을 사용한 경우 적정 접합조건을 선정하면 반응층의 이중구조를 통해 열응력을 완화시킴으로써 균열발생을 억제하여 1323K×0.6ks의 접합조건에서 비교적 높은 약 86MPa의 전단강도값을 얻을 수 있었다.

**Abstract** : Joining Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and STS 304 stainless steel by active metal brazing method with using Cu-10wt% Ti and Cu-7.5wt% Zr insert metal, their interfaces were analyzed and strength of the joint brazed with Cu-7.5wt% Zr insert metal also investigated with shear strength testing method. In brazing with Cu-10wt% Ti insert metal, the single reaction layer was formed by the reaction with Ti and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> at the interface between Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and insert metal, but the double reaction layer was found in brazing with Cu-7.5wt% Zr insert metal because of the difference of their wettability on the surface of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Fracture shear strength about 86MPa was obtained from Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu-7.5wt% Zr/STS 304 stainless steel joint and reasonable strength of the joints is attributed to the formation of double reaction layer at the interface.

## 1. 서 론

파인세라믹스중 산화물계 세라믹스인 알루미늄이나 내열성, 내마모성, 내식성은 물론 고온강도 및 재료의 경량화등에서 우수한 성질을 갖기 때문에 여러분야에서 금속의 대체 재료로서 그 응용범위가 확대되고 있다.<sup>1)</sup> 그러나 세라믹스는 인성이 부족하고 가공이 곤란하다는 결점이 있으므로 그 응용범위가 제한되고 있다. 따라서 공업분야에서 세라믹스의 응용범위를 확대하기 위한 수단으로 금속과의 접

합기술 개발은 소위 첨단 기술의 기반이 되는 공정기술로 매우 중요시 되고 있다.

세라믹/금속 접합기술에 관한 연구는 주로 접합공정 및 삽입금속의 개발, 접합계면의 생성물에 대한 연구, 생성상의 생성기구, 즉 접합기구에 대한 연구등에 집중되고 있으며 잔류응력 완화에 대한 문제, 강도평가의 객관성에 대한 연구도 지속적으로 보고되어 지고 있다.<sup>2)-6)</sup> 그럼에도 불구하고 접합체의 기계적 성질에 영향을 미치는 인자들이 무엇인지에 대해서 명확하게 밝혀지지 않고 있을 뿐만 아

니라 그 결과 또한 연구자에 따라 큰 차이를 보이고 있다. 이는 주로 물성을 알아낼 수 있는 객관적이고도 표준화된 실험방법이 확립되어 있지 않기 때문이다.

Table 1<sup>7)-16)</sup>은 알루미늄이나 금속 접합체의 상온강도에 대해 보고된 Data를 종합정리한 것이다. Table 1에서 알 수 있는 것과 같이 모든 시험법에 대해서 얻어지고 있는 각 세라믹스와 금속 접합체의 접합강도는 피접합금속 및 접합방법, 연구자등에 따라 큰 차가 보이며, 더우기 그 절대치도 일부를 제외하고는 모재 세라믹스에 비해 아주 낮은 경우가 대부분이다. 이는 세라믹스와 금속의 접합시 열팽창 계수의 차이에 의해 열응력이 발생하기 때문이며 접합효율을 증가시키기 위해서는 반드시 열응력의 완화를 위한 대책을 마련해야만 한다.<sup>17)</sup> 이러한 관점에서 본 연구에 사용할 삽입금속은 접합부에서 발생하는 열응력의 완화효과를 얻기 위해 연질금속인 Cu를 기저로 대표적 활성 금속인 Ti, Zr을 각각 첨가하여 자체 개발한 두 종류의 합금계 삽입금속(Cu-Ti계 및 Cu-Zr계)을 사용하여 브레이징한 두 종류의 서로 다른 접합체의 접합부 계면에서 생성된 반응 생성물을 비교 분석하고 접합부의 계면구조를 정확히 파악한 후 계면구조가 접합강도에 미치는 영향을 검토하고자 하였으며 반응 생성물과 접합강도와의 상관관계를 조사하여 적합한 적합조건 도출과 유효한 첨가원소를 밝혀 산화물계 세라믹스와 금속간의 접합기술을 확립하는데 그 목적을 두었다.

Table 1. Bonding Strength of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> to metal joints at room temperature

Ceramics	Metal	Boind method	Bonding Conditions	Results	Ref.
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Pt, Fe Ni, Cu Al, Pb	S	Pt : (1823K, 100s, 0.03MPa) Fe : (1647K, 100s, 0.07Mpa) Ni : (1623K, 1.2ks, 0.148MPa) Al : (873K, 100s, 0.736MPa) Cu : (1298K, 900s, 0.148MPa) Pb : (563K, 120s, 0.98MPa)	[FB 250MPa] [FB 220Mpa] [FB 200Mpa] [FB 95MPa] [FB 153MPa] [FB 56MPa]	7
	SS41	B	{Cu} (1523K, 1.8ks)	[Sh 92MPa]	8
	Al (A1050)	M	Metallizing : {Al-4%Cu}(1373K, 3.6ks) Brazing : {BA4004} (883K, 180s)	[Sh 75MPa]	9
	SM50B	S*	{Cu} (1173K, 600s, 20MPa) {Ni} (1373K, 300s, 20MPa)	[Te 33MPa] [Te 20MPa]	10
	Steel, Ag	B	{96%Ag-4%CuO} (1273K, 60s, in air) {V <sub>2</sub> O <sub>3</sub> } (1053K, 60s, in air)	[To 48Nm] [To 10Nm]	11
	SUS304	S*	{Ag} (1173K, 1.8ks) {Cu} (1073K, 1.8ks)	[Te 3.4MPa] [Te 9MPa]	12
	Nb	S	(1873K, 3.6ks, 8.8MPa)	[Te 125MPa]	13
	Ti SUS410S	S	(1173K, 3.6ks, 3.1MPa+820K, 7.2ks) {Ti+Mo} (1273K, 10.8ks, 9.4MPa)	[Te 13MPa] [Te 47MPa]	14
	Kovar, SUS410S	B	{Cu+Cu <sub>2</sub> O+Ag-Cu-Ti}(1113K, 600s) {Cu+Cu <sub>2</sub> O+Ag-Cu-Ti}(1113K, 600s)	[Sh 53MPa] [Sh 65MPa]	15
	SUS321	S	TiC precipitation treatment (200K, 3.6ks, 7.4MPa)	[Te 22MPa]	16

S : Solid state bonding B : Brazing M : Metallizing  
 { } : Insert metal < > : Inter layer ( ) : Bonding conditions  
 [ ] : Bonding strength \* : Using solid soft metal  
 Te : Tensile test Sh : Shear test To : Torsion test  
 B : Bending test TB : Three point bending test FB : Four point bending test

## 2. 실험방법

본 실험에 사용된 삽입금속의 제조를 위하여 순도 99.99% Cu와 Ti, Zr의 순금속을 Cu-10wt% Ti과 Cu-7.5wt% Zr 조성이 되게 정량한 다음 Ar 분위기 중에서 아아크 용해하였고 진공용 고주파 유도로에서 재용해 한 후  $\phi$  10mm $\times$ t 8 mm인 봉상으로 주조하였다. 이후 200 $\mu$ m의 두께가 되게끔 절단 및 연마한 후 삽입금속으로 접합에 이용하였다. 접합용 모재로는 상압소결방법에 의해 국내에서 제조된 순도가 99.9%이고 크기  $\phi$  10mm $\times$ t 10mm인 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 봉재와 알루미늄과 동일한 크기의 STS 304 스테인레스봉재를 사용하였다.

접합은 알루미늄과 금속의 양모재 사이에 준비된 삽입금속을 장착한 후 자체 제작한 접합용 진공브레이징로 내에서 행하였으며 시편의 비틀림을 방지하기 위하여 알루미늄 holder로 고정하였다. 이때 알루미늄 표면에 대한 용융삽입금속의 젖음성을 향상시키기 위해 약 25g의 dead weight를 가하였고 접합장치내의 진공도는 10<sup>-3</sup>~10<sup>-4</sup>torr로 유지하였다. 접합 후 냉각속도는 3°C/min로 일정하게 유지하였으며 접합온도의 측정은 PR 열전대가 시편에서 5mm이내가 되게끔 측정하였다.

접합부의 조직은 미세절단기를 이용하여 접합시편편을 접합면에 수직으로 절단하여 연마한 후 FeCl<sub>3</sub>+HCl 용액으로 부식시켜 광학 및 주사전자현미경을 이용해서 관찰하였으며 EDX와 WDX에 의한 정성분석 및 X-선 회절 분석법을 통해 접합부에 존재하는 생성상을 확인하였다.

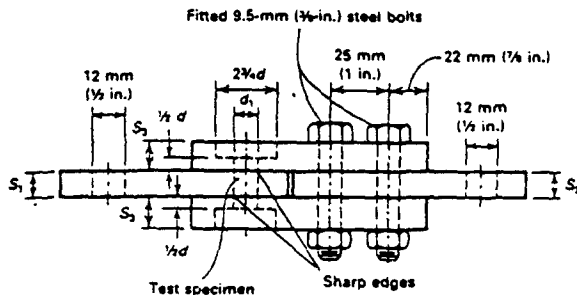


Fig. 1. Jig for shear strength test recommended in ASTM B565

d=nominal diameter of specimen

d<sub>1</sub>=actual diameter of hole

d<sub>2</sub>=actual diameter of specimen

접합시편편은 Fig.1과 같은 치구에 끼워 인장시험기의 Grip측과 치구의 중심축이 일치하도록 해준 후 최대하중 1000kg, cross-head speed는 1mm/min으로 전단시험을 행하였다. 접합강도 값은 파괴시 최대하중 값으로 측정되었으며 전단강도 값을 얻기 위하여 최대 하중 값을 접합면적으로 나눈값을 취하였고 각각의 접합온도에서 세번 측정해 얻은 값의 평균값을 취하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 접합부 미세조직관찰

Cu-10wt% Ti 삽입금속과 Cu-7.5wt% Zr

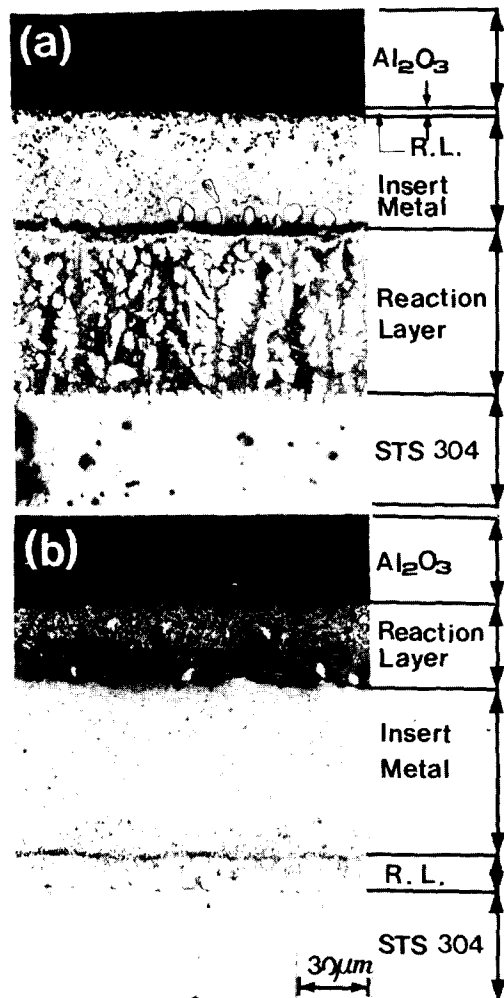


Photo.1. a) Microstructure of the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu-10wt% Ti/STS304 joint brazed at 1423K for 3.6ks

b) Microstructure of the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu-7.5wt% Zr/STS304 joint brazed at 1373K for 1.8ks

삽입금속을 사용하여 알루미늄과 304 스테인레스강을 접합한 경우 두 접합체의 접합강도에 미치는 요소는 무엇보다도 접합부 근방의 미세조직과 특성이다. 따라서 그 미세조직을 광학현미경을 이용하여 조사하였고 Photo 1은 접합부의 대표적인 광학현미경조직을 나타낸다.

접합부계면에 형성된 반응층의 두께와 생성상의 크기 및 양은 접합조건에 따라 약간의 차이가 있었지만 두 접합체계면에서 각각 공

통적인 특징을 관찰할 수 있었다. 즉 Cu-10wt% Ti 삽입금속을 사용한 경우 Photo 1(a)에서와 같이 304 스테인레스강측에 반응층이 폭넓게 형성되어 있는 것과 사진으로는 구별되지 않지만 광학현미경으로 관찰하면 삽입금속의 계면에서 매우 미세하긴 하나 색깔 및 빛의 반사정도가 뚜렷이 차이가 나는 반응층의 관찰이 가능하다는 것이다.

한편 이와는 달리 Cu-7.5wt% Zr 삽입금속을 사용한 경우에는 Photo 1(b)에서와 같이 304 스테인레스강측에 비교적 폭좁은 반응층이 형성되어 있으며 알루미늄과 삽입금속의 계면에 형성된 반응층은 비교적 그 폭이 넓으며 광학현미경으로 관찰하면 뚜렷이 개의 서로 다른층으로 구별될 수 있다는 것이다. Photo 2는 두 접합체의 계면과 각 층내에 존재하는 상의 종류와 특징을 보다 자세히 검토하여 계면구조를 파악하기 위하여 주사전자현미경을 이용해 관찰한 사진이고 이때 나타난 각 상에 대해 EDX, WDX 및 XRD를 이용해 생성상을 확인(identification)하였다. Fig. 2는 그 결과를 나타낸 것이다.

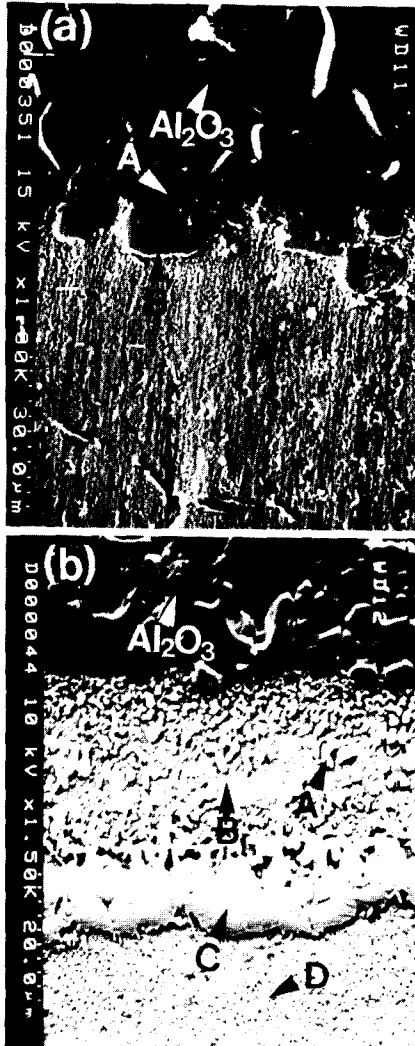


Photo. 2. a) SEM micrograph of the interface between Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Cu-10wt% Ti insert metal brazed at 1373K for 3.6ks

b) SEM micrograph of the interface between Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Cu-7.5wt% Zr insert metal brazed at 1323K for 0.6ks

Morphology	EDX	XRD
<p>(a)</p>	<p>A ; Ti, O, Cu B ; Ti, Fe C ; Cu</p>	<p>Ti<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Fe<sub>2</sub>Ti Cu</p>
<p>(b)</p>	<p>A ; Zr, O B ; Cu, Al C ; Zr, O D ; Cu</p>	<p>ZrO<sub>2</sub> Cu</p>

Fig. 2. Results of EDX and XRD analysis

a) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu-10wt% Ti/STS304 joint

b) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu-7.5wt% Zr/STS304 joint shown in Photo. 2

이상의 분석결과로부터 알루미늄과 Cu-10wt% Ti 삽입금속의 계면에 형성된 띠상 (band phase) A는 (Photo. 2(a)) Ti<sub>2</sub>O<sub>3</sub>로 밝혀졌으며 이는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 표면에서 Ti와 O가 반응하

여 Ti 산화물을 형성시킨 것이라 생각할 수 있고<sup>12)</sup> 이러한 계면화학반응에 의한 반응생성물층이 바로 알루미늄과 금속과의 접합을 이루는 근본적인 이유가 된다고 볼 수 있다.<sup>18)</sup> 한편 Cu-7.5wt% Zr 삽입금속을 사용한 접합체의 경우 알루미늄과 삽입금속과의 계면에는 알루미늄과 용융삽입금속 중의 Zr 원자들이 서로 반응하여 형성시킨 원형의 작은  $ZrO_2$  입자(particle)들이 Cu 기지내에 생성되어 있으며 그 아래 이들 입자들의 상호친화력으로 인해 형성된 일정한 형태의 띠상을 볼 수 있다.(Photo 2(b))

이와 같이 두 접합체의 접합부구조가 서로 다른 것은 알루미늄표면에 대한 Cu-10wt% Ti 용융삽입금속과 Cu-7.5wt% Zr 용융삽입금속의 젖음성(wettability)의 차이에 기인하는 것으로 사료된다.(Fox와 Slaughter<sup>19)</sup>는 Cu 기지에 Ti와 Zr을 각각 첨가하여  $Al_2O_3$ 표면에 대한 젖음성 실험을 한 결과 Ti첨가의 경우가 Zr첨가의 경우보다 우수한 젖음성을 갖는다고 보고하였다.) 즉 알루미늄표면에 대한 Cu-10wt% Ti 용융삽입금속의 젖음성이 Cu-7.5wt% Zr 용융삽입금속의 젖음성보다 크다면 용융삽입금속중의 Ti는 보다 넓은 알루미늄의 표면과 접촉하여 전체적으로 균일하게 반응하므로 이때 생성된 Ti 산화물은 알루미늄표면과 평행하게 적층된 띠형태의 생성구조를 이룰 것이라 여겨지나 Zr은 알루미늄표면에 대한 좋지않은 젖음성때문에 부분적으로 반응하여 연속된 띠형태의 생성구조를 갖지 못하고 작은 반응생성물들은 용융삽입금속내로 분리되어 떠돌아 다니다 상호 인력에 의해 또다른 반응생성물층을 이루는 것이라 생각할 수 있다.

### 3.2 계면구조가 Crack 발생에 미치는 영향

일반적으로 이종재료, 특히 세라믹스와 금속의 접합체에 있어서 냉각시 탄성계수와 열팽창계수의 차이로 인해 금속재료에서는 수축응력이 발생하고 세라믹스에서는 인장응력이 발생하며 계면의 가장자리에서 큰 응력이 집중하여 균열이 발생하게 된다.<sup>20)21)</sup>

본 실험에서는 접합시 발생하는 열응력의 완화를 위해 연결금속인 Cu를 삽입금속의 기지로 사용하였으나 접합한 접합체의 접합계면

을 관찰한 결과 육안으로도 식별이 가능한 모서리 균열(Edge crack)을 관찰할 수 있었다. Cu-10wt% Ti 삽입금속을 사용한 접합체의 경우 모든 접합조건에서 Photo 3)의 a)와 같은 crack이 관찰되었는데 이는 이미 서술한

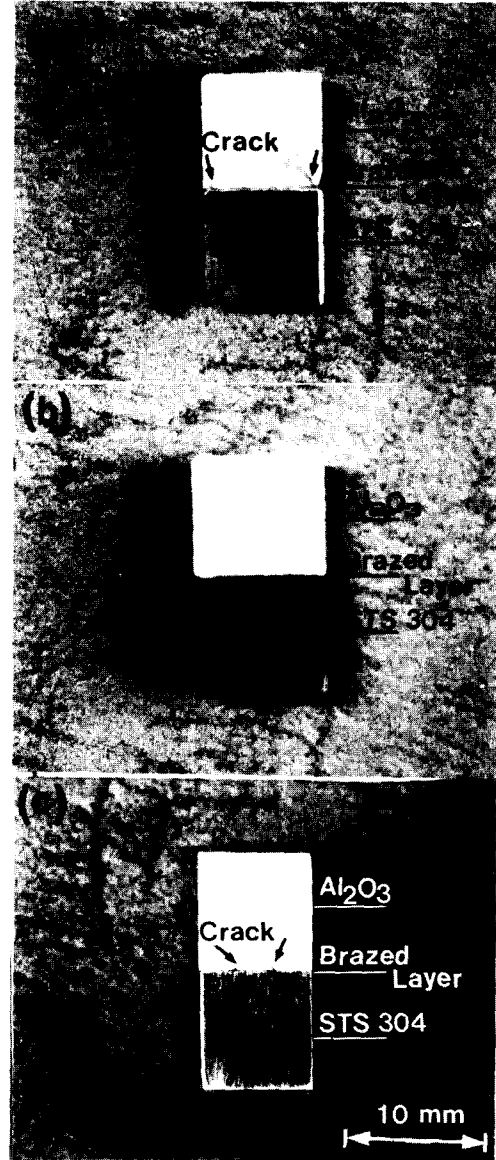


Photo. 3. a) Illustration of the crack initiated in the edge of  $Al_2O_3$  of  $Al_2O_3F/Cu-10wt\%$  Ti/STS304 joints

b) Illustration of the crack-free in  $Al_2O_3$  of  $Al_2O_3/Cu-7.5wt\%$  Zr/STS304 joints

c) Illustration of the crack initiated on the center of  $Al_2O_3$  of  $Al_2O_3/Cu-7.5wt\%$  Ti/STS304 joints

바와 같이 세라믹과 금속의 열팽창계수 차이로 인해 냉각시 접합계면의 가장자리 부근에서 응력집중이 발생했기 때문으로 사료된다. 하지만 Cu-7.5wt% Zr 삽입금속을 사용해 접합한 시험편에서는 Photo 3의 b)에서와 같이 특정 접합조건에서 crack을 관찰할 수 없었고 그 외의 조건에서는 계면의 가장자리에서 또는 중앙부에서 crack이 관찰되었다.(Photo 3(c)) Fig. 3은 두 종류의 삽입금속을 이용하여 각각 다른 접합조건에서 접합하였을 때 균열 발생의 유무를 관찰한 결과이다.

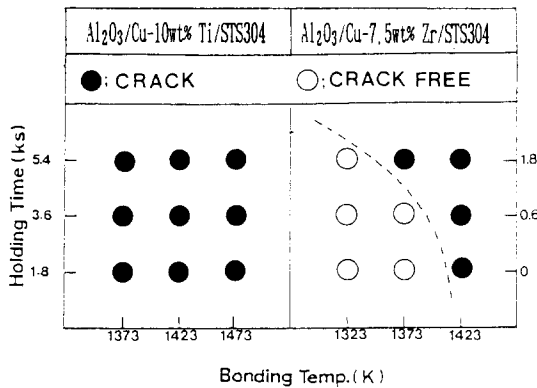


Fig.3. Results of the observation on crack formation

접합계면에서 crack이 발생하지 않은 원인을 검토하기 위해 광학현미경을 이용하여 접합부 미세조직을 관찰하였다. Photo 4의 a)는 균열이 발생하지 않은 접합시험편의 접합부 단면조직이고 Photo 4의 b)는 균열이 발생한 접합시험편의 단면조직이다. 두 접합시험편의 미세조직을 비교하면 균열이 발생하지 않은 접합시험편(1323K×1.8ks)은 알루미늄과 떠상의 반응생성물층 사이에 적은 양의 Zr 산화물입자가 포함된 Cu 기지층이 존재하고 있음을 볼 수 있으며 균열이 발생한 접합시험편(1373K×1.8ks)의 경우 Cu 기지내에 Zr 산화물양이 증가하여 소량의 Cu기지만이 존재함을 볼 수 있다. 이로부터 알루미늄과 떠상의 반응생성물층 사이에 존재하며 소량의 Zr 산화물입자들을 포함하는 Cu 기지층은 냉각시 발생하는 응력집중현상을 소성변형을 통해 효과적으로 완화시켜 균열생성을 억제하는 역할을 하고 알루미늄과 비슷한 열팽창 계수를 가

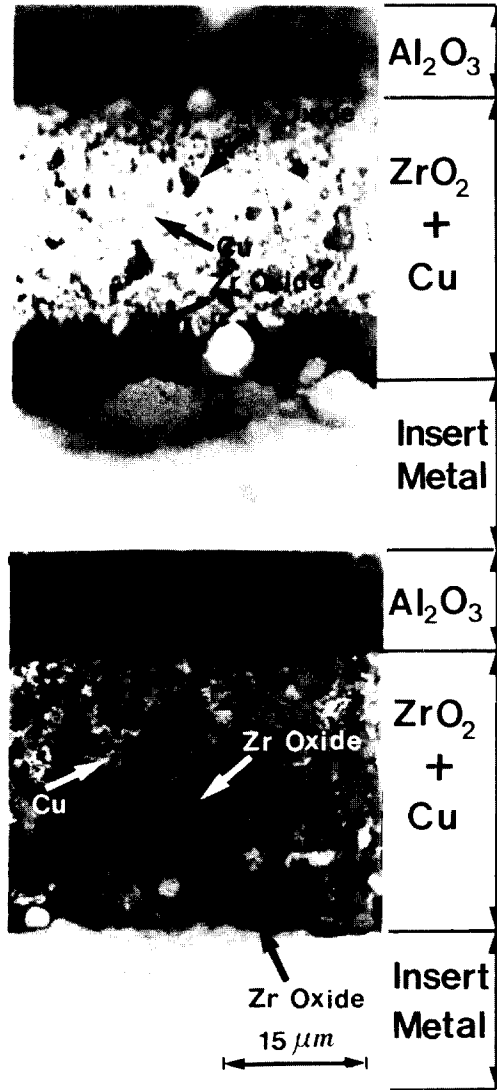


Photo. 4. a) Microstructure of the reaction layer with little Zr oxide in Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu-7.5wt% Zr/STS304 joint brazed at 1232K for 1.8ks

b) Microstructure of the reaction layer with much Zr oxide in Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu-7.5wt% Zr/STS304 joint brazed at 1373K for 1.8ks

지는 떠상의 ZrO<sub>2</sub>층은 응력완화층(Buffer layer)으로 작용하고 있음을 알 수 있다. Fig. 4는 이러한 점들을 고려하여 접합후 냉각시 탄성계수와 열팽창계수 차에 의해 두 접합체의 계면에서 발생하는 변형을 나타내는 모식도이다.

Fig.4의 a)와 같이 Cu-10wt% Ti 삽입금속

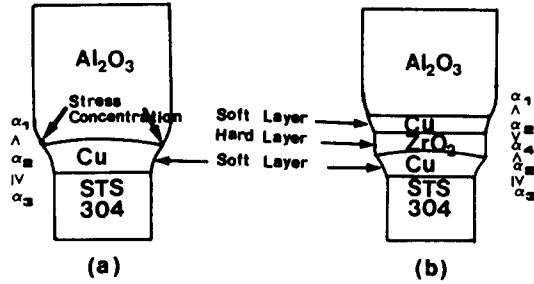


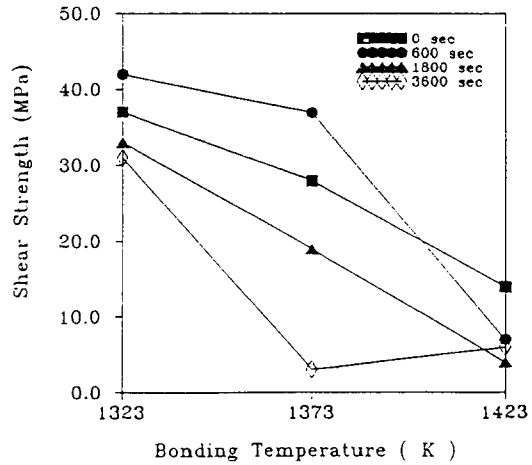
Fig. 4. a) Deformation of  $Al_2O_3/Cu-10wt\% Ti/STS304$  joint by thermal stresses ( $\alpha_1$ =Coefficient of Thermal Stress of  $Al_2O_3$ ,  $\alpha_2$ =C.T.S. of Cu  $\alpha_3$ =C.T.S. of STS304)

b) Deformation of  $Al_2O_3/Cu-7.5wt\% Zr/STS304$  joint by thermal stresses ( $\alpha_4$ =Coefficient of Thermal Stress of Zr Oxide)

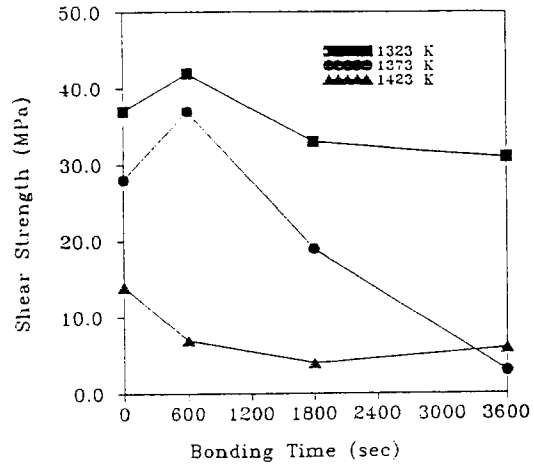
을 사용해 접합한 접합체의 경우 접합면에 형성된 단일구조의 반응생성물층( $Ti_2O_3$ )은 알루미늄 표면에 접하여 있으므로 냉각시 발생하는 열응력은 접합체면의 가장자리 부근에 집중된다. 또한 알루미늄과 삽입금속의 접합부계면에는 다양한 생성상들이 존재하고 있으며 그 중에서도 조대한 생성상인  $Fe_2Ti$ (Photo 2(a)의 B상)의 영향이 가장 클 것으로 판단되므로 Micro Vickers 경도기를 이용하여 이들의 경도값을 조사한 후 삽입금속의 기지인 Cu와 비교하여 본 결과 약 8배에 달하는 높은 경도값을 가지고 있음을 확인할 수 있었다.(Cu의  $H_v$ : 110,  $Fe_2Ti$ 의  $H_v$ : 812) 이로부터 이들의 형성은 연질금속인 Cu의 응력완화작용을 저해시킬 것으로 사료되며 접합강도의 저하 및 균열의 발생원인으로 작용할 것이 예상된다. 그러나 Fig.4의 b)와 같이 Cu-7.5wt% Zr 삽입금속을 사용한 접합체의 반응생성물층은 Cu,  $ZrO_2$  혼합층과 순수한  $ZrO_2$  층의 이중구조(Photo 4(a))를 가지고 있다. 이러한 접합체면의 생성구조는 Mo나 W과 같이 열팽창계수가 알루미늄보다 적은 금속을 삽입금속중에 추가로 삽입하여 열응력 완화대책을 강구하지 않고도 효과적으로 소성변형층과 응력완화층을 형성할 수 있다고 판단된다.

### 3.3 접합강도에 미치는 접합온도 및 시간의 영향

접합강도시험은 모든 접합조건에서 crack이



(a)



(b)

Fig. 5. a) Dependence of brazing temperature on shear strength of  $Al_2O_3/Cu-7.5wt\% Zr/STS304$  joints brazed for 0sec, 0.6ks, 1.8ks and 3.6ks

b) Dependence of brazing time on shear strength of  $Al_2O_3/Cu-7.5wt\% Zr/STS304$  joints brazed at 1323K, 1373K and 1423K

관찰되었던 Cu-10wt% Ti 삽입금속을 이용한 접합체는 제외시키고 Cu-7.5wt% Zr 삽입금속을 이용한 접합체에 대해서만 행하였으며 이때 접합강도값은 최대 전단강도값으로 구해졌다. Fig.5의 a)는 Cu-7.5wt% Zr 삽입금속을 사용해 1323K, 1373K, 1423K의 세 접합온도에서 각각 0sec, 0.6ks, 1.8ks, 3.6ks 동안 접합시킨 접합체의 파괴전단강도값을 나타낸 그래프이다. 여기서 0sec란 소정의 접합온도

까지 가열한 후 일정시간 유지하지 않고 곧바로 냉각시켰음을 의미한다. 본 실험에서 선택한 접합온도 구간중 1323K의 저온에서 가장 높은 접합강도를 나타냈으며 접합온도가 증가함에 따라 점차 그 값이 선형적으로 감소하는 것을 볼 수 있다. 한편 Fig.5의 b)는 각각의 접합온도에서 시간변화에 따른 접합부의 파괴전단 강도값을 나타낸 그래프로서, 접합시간을 0.6ks 이상 유지시킬 때 접합체의 파괴전단강도값은 감소하는 경향을 보인다. 이는 접합온도가 증가하고 접합시간이 길어짐에 따라 계면반응 생성물량의 증가와 그에 따른 계면구조의 차이에 기인한 것이라 생각된다.

즉 접합온도가 낮을수록 계면화학반응은 느리게 진행되어 반응생성물의 양도 서서히 증가하게 되므로 알루미늄과 반응생성물층 사이에는 Cu 소성변형층이 존재할 수 있으나 (Photo 4(a)) 접합온도가 증가할수록 계면화학반응이 촉진되어 반응생성물의 양은 급격히 증가하게 되어 Cu 소성변형층은 점차 소멸되고 (Photo 4(b)) 냉각시 접합계면에 열응력이 집중되어 접합강도를 악화시킨다고 볼 수 있다.

### 3.4 계면반응 생성물층의 두께와 접합강도와의 상관성

접합부 계면에 형성된 반응생성물 층의 두께는 반응정도를 나타내므로 고온일수록 그리

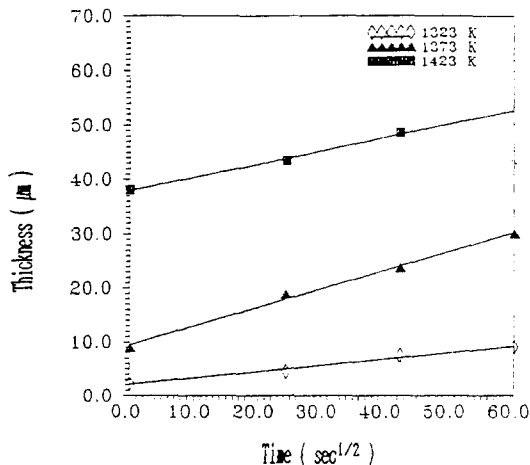


Fig. 6. Variation of Thickness of Zr oxide Layer as a Fuction of brazing conditions

고 접합시간이 길어질수록 계면화학반응이 촉진되어 반응생성물의 양이 증가한다고 믿어진다. 따라서 접합온도와 시간에 따른 계면반응 생성물층(Photo 2. (b)에서 C)의 두께변화를 측정하여 그 결과를 Fig.6에 나타내었다. 접합온도가 증가함에 따라 그리고 접합시간이 길어짐에 따라 계면반응 생성물층의 두께는 증가하고 있는 것을 알 수 있다. 이와 같은 반응 생성물층의 두께 증가는 접합강도와 밀접한 관계가 있을 것이라 여겨지므로 Fig.7에 반응 생성물층의 두께와 접합강도와의 관계를 도시하였다. 과도한 반응생성물(ZrO<sub>2</sub>)의 형성

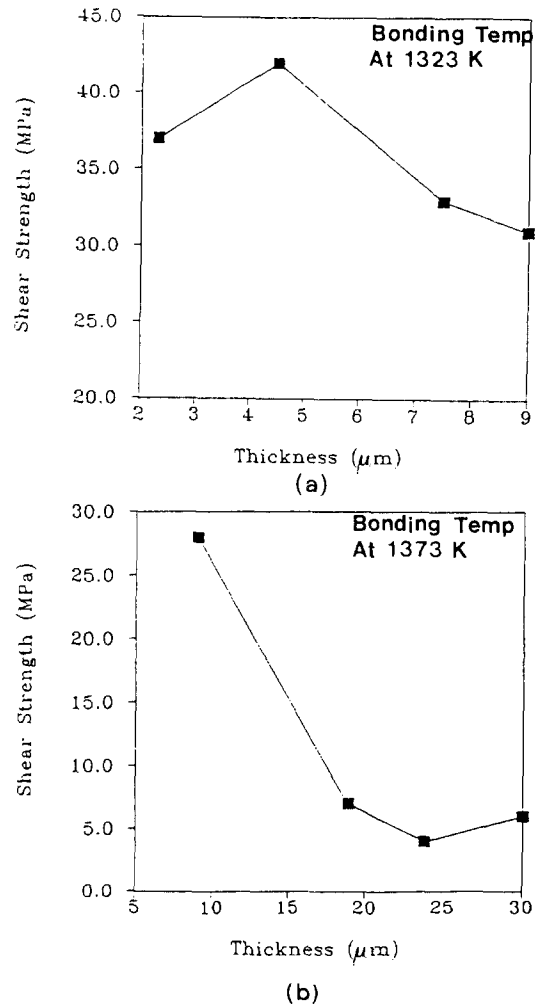


Fig. 7. Dependence of Thickness of Zr oxide Layer on Shear Strength of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu-7.5wt% Zr/STS304 joints brazed at 1323K

b) At 1373K



은 알루미늄이나 계면에 존재하는 Cu 기지층을 소멸시켜 소성변형층의 역할을 기대할 수 없게 만들 뿐만 아니라 냉각시 1000°C 부근에서 Tetragonal ZrO<sub>2</sub>는 Monoclinic ZrO<sub>2</sub>로 변화하므로써 이때 상당한 부피변화를 초래하게 되므로 -Monoclinic ZrO<sub>2</sub>의 밀도는 5.68g/cm<sup>3</sup>이고 Tetragonal ZrO<sub>2</sub>의 밀도는 6.10g/cm<sup>3</sup>이다.- 그 결과 열충격에 취약하게 되는 원인이 된다.<sup>22)</sup> 따라서 과도한 계면반응생성물의 형성은 접합강도를 악화시키며 또한 Fig.7의 a)에서 보듯이 반응생성물층이 어느정도 성장해야 높은 접합강도를 가질 수 있다고 믿어진다.

본 실험영역에서는 1323K에서 0.6ks 동안 유지한 접합시험편의 경우 가장 높은 전단강도값인 86MPa를 나타냈으며 이때 생성된 반응생성물층의 두께는 약 4.5μm이었다.

#### 4. 결 론

Cu-10wt% Ti 삽입금속과 Cu-7.5wt% Zr 삽입금속을 사용하여 알루미늄과 STS304 스테인레스강을 진공브레이징하여 접합한 후 접합부 미세조직을 비교 관찰하고 접합강도를 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1) Cu-10wt% Ti 삽입금속을 사용하여 접합한 경우 접합을 유도하는 반응생성물층은 알루미늄표면과 평행하게 적층된 얇은 띠형태의 생성구조를 이루고 있었으나 Cu-7.5wt% Zr 삽입금속을 사용한 경우에는 알루미늄과 계면을 이루는 반응생성물층이 비교적 그 폭(두께)이 넓으며 뚜렷이 두 개의 서로 다른 층으로 구별될 수 있었다.

2) Cu-10wt% Ti 삽입금속을 사용해 접합한 시편의 경우 접합부 생성구조가 냉각시 발생하는 응력집중을 완화하지 못해 본 실험에서 행한 모든 조건에서 모서리균열(Edge crack)이 관찰되었으나 Cu-7.5wt% Zr의 경우 1323K와 같은 저온에서 접합한 경우 반응생성물층의 이중구조는 소성변형층과 응력완화층의 효과를 가지므로써 균열이 발생하지 않았다.

3) 접합온도가 증가함에 따라 알루미늄과 삽입금속계면의 반응생성물층의 두께는 증가하였고 그 접합강도는 상대적으로 감소하였다. 이는 접합온도가 증가할수록 반응생성물

의 양이 급격히 증가하여 Cu 소성변형층을 소멸시켜 냉각시 접합계면에 열응력이 집중됨으로써 기인한다고 사료된다.

4) 최대접합강도는 Cu-7.5wt% Zr를 사용해서 1323K×0.6ks 조건으로 접합한 경우 얻어졌으며 이때 반응층의 두께는 약 4.5μm 전후였고 접합강도는 전단강도 값으로 약 86MPa를 얻었다.

#### 참 고 문 헌

1. N. Ichinose, K. Komeya, N. Ogino, A. Tsuge and Y. Yokomizo; Introduction to Fine Ceramics, N. Ichinose(Ed.), John Wiley & Sons Ltd., (1987)
2. R. M. Crispin and M. G. Michoals; Brazing and Soldering, **6**, p37 (1984)
3. M. Nak, K. Asami and I. Okamoto; Trans, JWRI, **15**, P81 (1986)
4. F. Hatakeyama, K. Suganuma and T. Okamoto; J. Mater, Sci., **21**, P2455 (1986)
5. C. Peytour, F. Barbier and A. revcolevschi; J. Mater. Res., **5**, P127 (1990)
6. M. Naka, K. Sampath, I. Okamoto and Y. Arata; Joining of Metals, Apr., 15-18, P168 (1984)
7. J. T. Klomp : "Bonding of Metals to Ceramics and Glasses", Am. Ceram. Soc. Bull., Vol. **51**, No. 9 P68. (1972)
8. 奈賀, 岡本 : "銅ろうによるアルミナと炭素鋼の接合", 銲接學會論文集, 第3卷, 第4號, P702 (1985)
9. 廣野, 岡本 : "Al-Cu合金ろうによるアルミナ同士の接合およびアルミナ/アルミウム接合への適用", 銲接學會論文集, 第5卷, 第3號, P379 (1987)
10. 暮石, 植田, 圓城, 池内 : "アルミナセラミックスの炭素鋼との擴散銲接", 銲接學會論文集, 第3卷, 第3號, P483 (1985)
11. J. Lottgers : "Investigations into the Direct Brazing of Ceramics to Metal Joints in an Oxidizing Atmosphere or under Inert Shielding Gas", Welding Reserch Abroad, Vol. **28**, P19 (1982)

12. R. M. Crispin and M. G. Nicholas : "Ceramic-Metal Diffusion Bonding Using Insert Layers of Copper and Silver", *Fuegen Keram. Glas Met.*, P212 (1985)
13. S. Morozumi, M. Kikuchi and Nishino : "Bonding mechanism between Alumina and Niobium", *J. Mater. Sci.* **16**, P2137 (1981)
14. F. Hatakeyama, K. Sukanuma and T. Okamoto : "Solid state bonding of Alumina to Austenitic Stainless Steel", *J. Mater. Sci.* **21**, P2455 (1986)
15. 深谷, 平井, 廣江 : "Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>と鋼の溶接", 溶接冶金研究委員會資料, WM-1180-87 (1987)
16. 土佐, 吉原 : 炭火チタンの素面析出現象を利用したアルミナとSUS321ステンレス鋼の固相接合", 表面科學, 第8卷 第4號 P254 (1987)
17. 田中陸, 森本裕, 本間弘 : "金屬セラミックスの接合技術", 製鐵研究 第327號, P39 (1987)
18. K. H. Johnson and S. Pepper : *J. Appl. Phys.*, **53**, P6634 (1982)
19. C. W. Fox, G. M. Slaughter, "Brazing of Ceramics", *Welding J.*, **7**, P591 (1964)
20. T. Suga and G. Elssner; "Characterization of Strength of Ceramic-to-Metal Joints", *Proceeding of the MRS International Meeting on Advanced Materials*, Vol. **8**, P99
21. 才田 : 窒化硅素セラミックスと金屬の接合に関する研究, 大板大學博士論文
22. M. J. Ramsey, M. H. Lewis : "Interfacial Reaction Mechanisms in Syalon Ceramic Bonding", *Materials Science and Engineering*, **71**, P113 (1985)