한국동력기계공학학회지 제7권 제3호 pp.74~79 2003년 8월

Al_2O_3/Al 6061의 접합부 계면특성에 관한 연구
A study on Brazing Interfacial Properties of Al_2O_3/Al 6061

서상용 · 안병건 · 이규용
S. Y. Seo, B. G. An and K. Y. Lee

Key Words : Filler Metal(삽입금속), Vacuum Brazing(진공브레이징), Joint Strengths(접합강도), Reaction layer(반응층)

Abstract : Alumina(Al_2O_3) and Al 6061 were brazed by using Al-12wt% Si filler metal in a high vacuum environment. The interfacial microstructure and mechanical properties of the joints were investigated. The results obtained were as follows. (1) The maximum tensile strength of 54Mpa was acquired at the processing conditions of high vacuum (3×10^{-6}Torr), 620℃ and 10min, but this condition will not be used in the industrial area due to high evaporation of Al alloy composition. (2) Reaction products for holding time and brazing temperature worked as stress relieve layer and the fractures after the mechanical properties test were occurred to the ceramic side or reaction layer. (3) The glancing angle X-ray diffraction analysis for the reaction product of Al_2O_3/Al 6061 were processed. the joint strengths were low due to existed Al_2Si_5 and SiO_2.

1. 서 론

세라믹과 금속의 접합 기술에는 기계적 접합법 및 삽입금속(filler metal)을 이용하는 브레이징접합, 금속표면에서 금속기체의 공정반응에 의한 공정접합법(eutectic bond ing), 고상의 확산에 의한 확산 접합법과 같은 화학적 방법으로 분류된다.[1~3]그러나 세라믹스와 금속은 결정학적, 전자적, 기계적 및 열역학적 특성의 차이로 인하여 세라믹스에 대한 금속의 젖음성이 불량하며, 이는 특히 Al_2O_3와 같은 이온결합성이 강한 산화물계 세라믹스에서는 더욱 심한 것으로 알려져 있고,[4~6]또한 젖음성 불량 외에도 접합 후 냉각시 세라믹과 금속 모재간의 열팽창 계수차에 의해 접합부에서 발생하는 잔류응력으로 인해 세라믹/금속 접합의 응용에 한계를 가져다주는 요인이 된다.

알루미늄 6061은 경량, 고강도 재료로서 브레이징 접합하여 항공산업, 열교환기등에서 널리 쓰이고 있으나 고온강도나 절연성을 얻기 위하여 세라믹과 접합하여 사용된 예는 극히 드물다. 森鷲등[7]은 알루미나에 Mo-Mn법으로 메탈라이징 한 후 Al-Xwt %Cu (X =0,4) 삽입금속을 사용하여 Ni도금없이 접합하여, Cu의 조성 함량에 따른 젖음각의 정도와, 시간과 온도를 변수로 한강도와 그때의 계면조직을 관찰하였다. 또한 Gaudette등[8]은 Al/Al_2O_3의 액상과 고상접합시 계면의 피로에 관한 영향을 연구하여, 고상접합에서는 피로 Crack이 접합계면을 통과하기 보다는 Al측을 따라 일어나며 액상접합에서는 복합 mode cycle crack이 접합계면에서 발생함을 밝혔다.

그리고 Woltersdorf 등[9]은 초음파 용접된 Al_2O_3/Al의계면의 미소조직과, 접합양상에 대해 연구하여 Al_2O_3/Al의 접합은 Al과 O로 구성된 2~20㎚의 아몰포스층을 경유하여 영향을 받는다는 것을 밝혔으나, Al_2O_3중의 산소가 Al으로 확산될 때 이 산소가 접합중의 반응물인지, 아니면 Al에 있어서의 산화층인지에 대하여 규명하지 못했다.

본 연구에서는 알루미늄 합금의 브레이징에 융점, 접합부의 내식성, 접합부의 기계적인 강도 및 브레이징의 작업성 때문에 주로 사용되는 Al-Si계 삽입 금속을 사용하여 알루미늄합금(Al6061)과 산화물계 세라믹인 Al_2O_3를 브레이징 접합하여 접합변수에 따른 접합강도의 변화를 계면조직과 비교함으로써 브레이징 접합의 Mechanism을 이해하고 젖음성의 향상과 열팽창 계수에 따른 잔류응력의 영향을 완화시키기 위해 산화물계 세라믹인 Al_2O_3에 활성금속 Ti를 코팅하여 알루미늄합금 Al6061과 브레이징 접합하여 그

접수일 : 2003년 9월 1일
서상용 : 부경대학교 대학원
안병건 : 대구기능대학
이규용(책임저자) : 부경대학교 기계공학부
E-mail : kylee@pknu.ac.kr Tel. 051-620-1603

Table 1 Chemical Compositions of Al6061, Al_2O_3 and filler metal(wt%)

Composition	Mg	Si	Zn	Mn	Cu	SiO_2	MgO	Al_2O_3	Al	Si
Al6061	7.95	7.9	0.064	0.86	1.4					
Al_2O_3						3.44	2.1	Bal		
Filler matal									bal	12

접합 특성에 영향을 미치는 접합계면에 대하여 연구하고자 하였다.

2. 실험방법 및 시험편

Al_2O_3와 IBAD에 의해 Ti의 활성 금속을 증착한 Al_2O_3를 Al 6061과 브레이징 접합을 위하여 자체 제작한 Photo. 1과 같은 고진공용 진공로를 사용하였다. 본 진공로 장치는 150ℓ/min용량의 유회전식 rotary pump와 4인치 diffusion pump를 사용하여 chamber 내부를 10^{-4}~10^{-6} torr까지 진공시키는 진공부와 시험편에 온도를 가하기 위한 텅스텐 heater에 최대 100A까지 전원을 공급 할 수 있는 power supply부 및 Al_2O_3와 Al6061 시험편에 브레이징 온도를 가하는 heater부로 구성되어 있다.

실험에 사용된 세라믹은 순도 96% Al_2O_3을 소결한 외경 φ20 내경 φ11, 두께 8mm인 상용제품을 사용하였으며 접합대상금속인 Al6061은 φ16으로 절삭가공하여 사용하였다. 브레이징 삽입금속은 Al-12wt% Si 공정조성의 것을 사용하였다. 세라믹의 표면에 잔재하는 오염물을 제거하기 위하여 아세톤으로 세척한 후 오븐에 넣어 150℃에서 10시간 건조시켰다. 또한 알루미늄 6061은 #600 sand paper로 연마후 NaOH 용액으로 전처리하고 HNO_3로서 중화시켰다. 그리고 알루미늄과 알루미나의 열팽창계수 차이로 인한 냉각

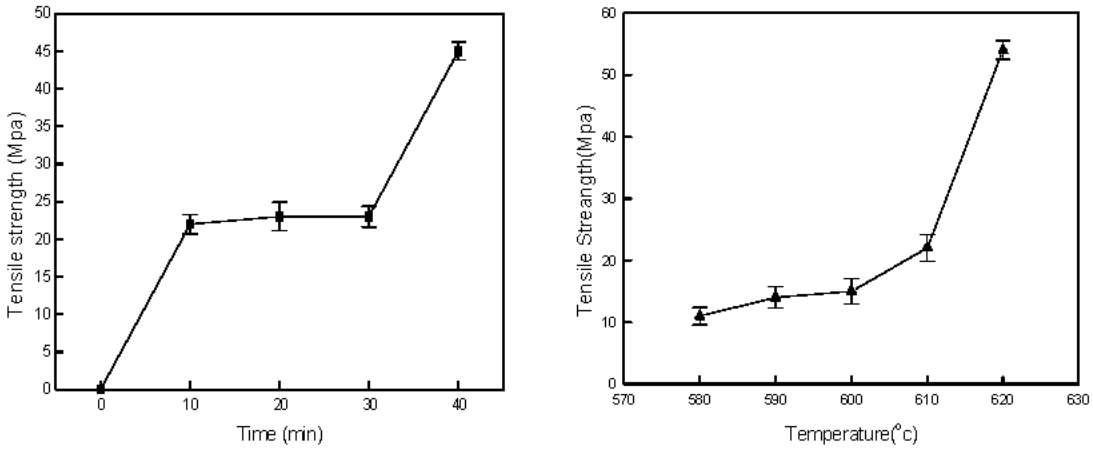


Fig. 1 Brazing tensile strengths test of Al_2O_3／Al 6061 on
(a) 600℃, (b) 10min at the high vacuum

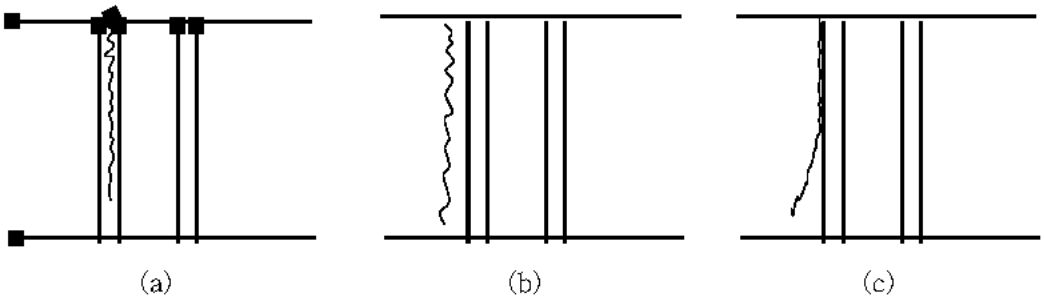
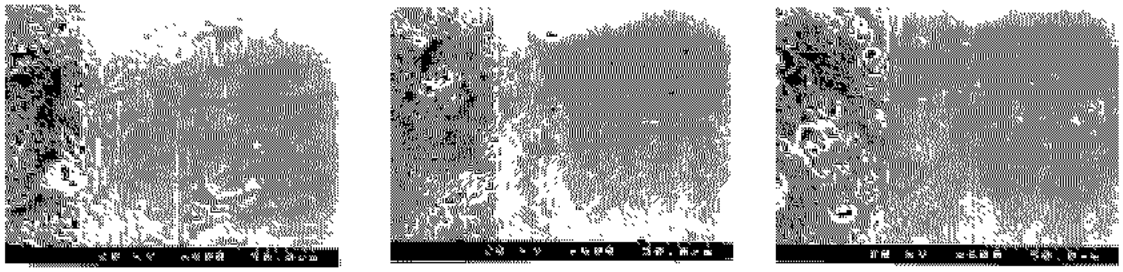
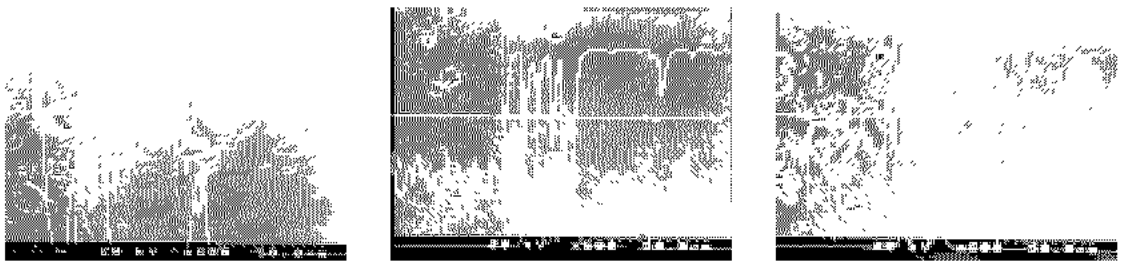


Fig. 2 Schematic diagram illustrating three kinds fracture of a ceramic metal joint



(a) (b) (c)

Photo 1 SEM potographs on the Al6061/Al_2O_3 interface (a) 580, (b) 600, (c) 620℃ at 10min



(a) (b) (c)

Photo 2 EDX Line profile photographs for Al6061/Al_2O_3 interface with temperature at (a) 580, (b) 600, (c) 620℃ at 10min

시에 잔류응력 발생을 최소화 하고자 가열온 접합온도까지 15℃/min으로 일정하게 하고 냉각시는 400, 300, 200℃로 단계별로 노냉시켰다.

Table 1에 Al6061과 Al_2O_3, 삽입금속의 화학적 조성을 나타내었다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 접합변수에 따른 강도변화

Fig. 1에 접합온도와 유지시간의 변화에 따른 인장강도 변화값이다. 고진공 브레이징의 경우 접합온도 및 시간이 길어질수록 강도값이 높아지는 것을 볼 수 있다. (a)는 600℃에서 시간의 변화에 따른 강도변화를 나타낸 것으로 600℃ 0min에서는 브레이징 온도가 삽입금속의 용융온도보다 높지만, 유지시간이 없기 때문에 삽입금속의 용융이 불충분하여 접합이 되지 않았고, 10~30min은 강도값이 일정하였으며 40min의 경우에는 브레이징 접합온도에서 장시간 유지로 인하여 알루미늄이 많이 휘발되었다. 또한 (b)은 시간을 10min으로 일정하게 하고 온도변화에 따른 강도변화를 나타낸 것이다. 580~610℃까지는 강도값이 일정하나 620℃, 10min에서는 강도값의 급격한 상승이 일어났다.

최대강도값은 620℃, 10min에서 54Mpa을 나타내었다. 그러나 620℃, 10min과 600℃, 40min의 경우는 고진공에서의 진공압보다 알루미늄의 증기압이 높아 강한 휘발로 인해 산업현장에서의 적용은 어려웠다. 이러한 강도변화는 접합부 계면조직과 중간층의 두께 변화에 의한 것으로 사료된다. Fig. 2은 접합강도에 따른 파단양상을 크게 3가지로 구분한 계략도이다. (a)는 Al_2O_3/Al6061의 접합계면에서의 파단인데 최대강도값을 보인 620℃, 10min에서 브레이징 접합한 경우로 세라믹에서 파괴가 될 것으로 생각되었으나 접합계면에서 파단이 일어났다. (b)는 접합계면과는 무관하게 세라믹측에서 발생한 파괴이다. 이 접합조건은 580~610℃, 10min으로 접합한 경우에서 얻어졌으며, 접합강도는 최대 610℃에서 22Mpa이 얻어졌다. Suganuma[10]와 박[11]은 Si_3N_4와 Ni -Cr강의 접합에 있어 접합계면과 자유표면에서 잔류응력이 크게 나타나면 접합체에서 나타나는 가장 큰 잔류인장응력은 접합계면 및 자유표면에 가까운 세라믹스에서 접합계면에 수직한 방향으로 나타나며, 세라믹은 일반적으로 압축응력에는 강도가 크지만 인장응력에는 강도가 약하기 때문에 접합계면 또는 자유표면에서 나타나는 잔류인장응력이 커지게 되면 접합체의 강도는 현저히

낮아지며 접합체의 신뢰도도 낮게 나타난다. 이런 이유 때문에 crack이 세라믹을 따라 돔형태의 파괴를 보인다고 하였다. 그러므로 본 실험에서 사용한 알루미나는 외경 20㎜, 내경 11㎜인 중공형의 disc이므로 잔류응력이 내경과 외경의 모서리 부분 및 접합계면에 집중이 될것으로 생각된다.

c)는 파괴가 Al_2O_3/Al의 계면에서 시작해서 세라믹내부로 진전되는 경우로 본 연구에서는 이 와 같은 양상을 관찰하지 못하였다. 외부응력 작용시 응력집중이 자유표면의 계면에서 심하게 발생하고 이로 인해 세라믹 내부에서 결함이 생성되어 균열이 세라믹 내부로 진행되었기 때문에 나타나는 것으로 판단된다. Al-Pingxian[12]등은 Sialon과 40Cr steel 접합에서 crack이 계면에서 발생하여 세라믹내부로 들어가고 가파른 응력분포 때문에 계면근처의 세라믹의 강도를 약화시키고 이러한 계면근처의 응력의 고른 분산을 위해서 바람직한 중간층의 선정 및 설계가 필요하다고 하였다.

3.2 접합계면분석

Photo. 1과 2는 접합온도에 따른 접합부 SEM 사진이다. Photo. 2의 (a), (b), (c)는 계면부근을 line profile한 것으로 접합계면에는 Al과 Si만이 존재함을 알았다. Photo. 1은 고온으로 갈수록 접합계면에 존재하는 Si가 존재하지 않았다. 낮은 브레이징 온도인 580℃에서 Si이 확산되지 않고 알루미나와 Al-Si 삽입금속 계면에 밀집해 있다. 그러나 온도가 올라갈수록 620℃에서는 Al이 휘발되고 Si이 외부로 빠져나가 희박해졌거나 일부는 Al쪽으로 확산된 것으로 나타났다.

이것은 접합강도와도 밀접한 연관이 있는 것으로 생각된다. 즉 580℃에서는 취성의 Si이 많이 존재함으로 인해 접합계면에서의 응력집중과 함께 접합강도를 낮추는 것으로 나타났다. 620℃에서는 Si이 거의 존재하지 않아 연성인 Al이 최대응력이 작용하는 접합계면의 응력을 분산하였기 때문에 접합강도가 상승한 것으로 생각된다.

Fig. 3은 접합계면의 생성상을 알아보기 위해 600℃에서 10min간 접합한 것을 윗쪽부분인 알루미늄 쪽에서 밑 부분인 알루미나로 가면서 부식과 sand paper 작업으로 연마하면서 XRD분석을 행하였다. 연마와 부식을 하지 않았을 경우 알루미늄과 알루미나만이 검출되었으나 접합계면층으로 갈수록 알루미나, SiO_2 그리고 Al_2Si_5[13]가 검출이 되었다. 알루미나쪽 계면으로 갈수록 취성인 Si이 알루미늄과 알루미나의 산소와 반응을 하여 SiO_2가 존재 하였으며 그 Peak도 커졌다. 그러므로 Si의 존재유무에 따라 SiO_2가 반응층에 존재하여 접합계면층 뿐만 아니라 모서리인 자유표면에서도 잔류응력이 작용해서 돔형태의 파괴가 되었고, 620℃, 10min에서는 Al이 연성층으로 존재하여 자유표면보다 접합계면에서 인장응력 이 크게 작용하여 계면파괴가 된 것으로 생각된다.

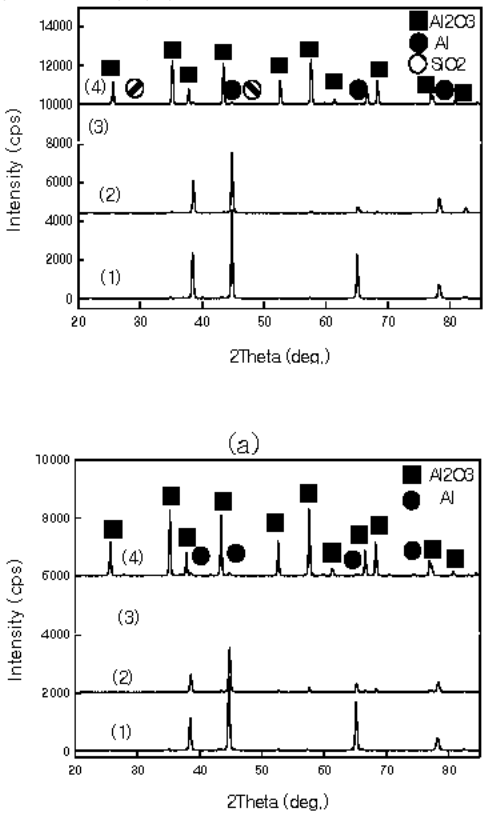
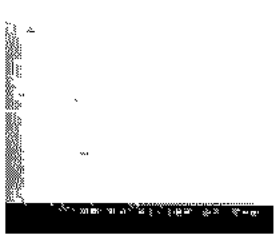


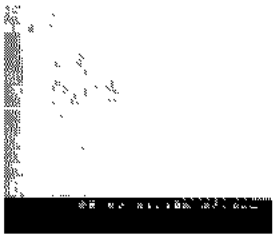
Fig. 3 X-ray diffraction patterns for (1) aluminum, (2), (3) reaction layer, (4) alumina at (a) 580℃, (1) aluminum, (2), (3) reaction, layer, (4) alumina, at (b) 620℃

Photo. 4, 5, 6은 1.5㎛의 Ti를 coating한 알루미나를 580℃, 590℃. 610℃에서 브레이징 시간 10min을 유지시켜 접합시킨 접합부의 계면 사진과 성분 분포 상태를 보여주고 있다. 접합 계면에서의 선분석과 면분석 결과 Ti와 Al 및 Si가 계면에서 존재함을 알 수 있었다. 580℃에서 610℃로 온도가 증가함에 따라 접합 계면에 존재하는 Si의 양이 감소하고 있는 것을 알 수 있다. 이는 580℃에서는 충분히 반응 할 수 있는 에너지가 낮아 계면 반응을 촉진시키지 못했기 때문에 접합 계면에서의 Al-Si의 삽입 금속 성분인 Si의 확산이 활발히 일어나지 않았으나, 610℃에서는 충분한 에너지로 인하여 접합부에서 알루미늄 쪽으로

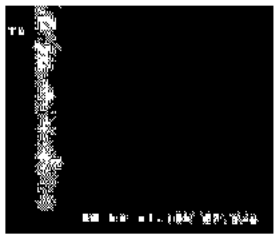
Si의 확산이 활발히 일어나 접합부에서의 Si량이 감소한 것으로 사료된다.



(a) line profile of Ti brazed at 580℃



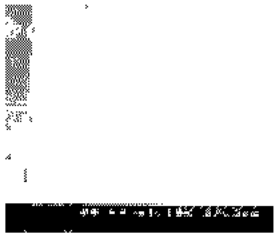
(b) line profile of Si brazed at 580℃



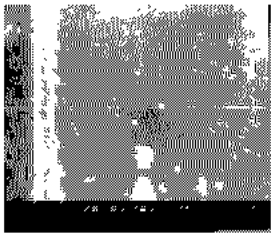
(c) mapping of Ti brazed at 580℃

(d) mapping of Si brazed at 580℃

Photo 4 SEM images, line profiles, and elements mapping in interfaces of 1.5㎛ Ti-coated Al_2O_3 and Al6061 brazed with Al-12Si wt% filler metal

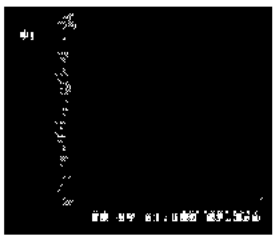


(a) line profile of Ti brazed at 590℃



(b) line profile of Si brazed at 590℃

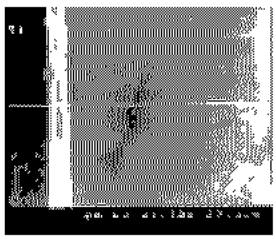
(c) mapping of Ti brazed at 590℃



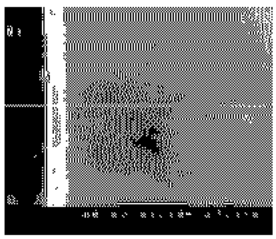
(d) mapping of Si brazed at 590℃

Photo 5 SEM images, line profiles, and elements mapping in interfaces of 1.5㎛ Ti-coated Al_2O_3 and Al6061 brazed with Al-12Si wt% filler metal

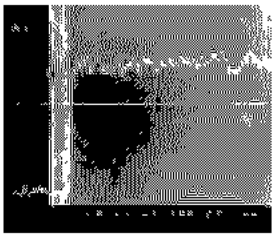
Photo. 4의 (b)와 (d)에서 580℃의 브레이징 온도에서는 Si이 그다지 확산되지 않고 알루미나와 Al-Si 삽입 금속 계면에 밀집해 있다. 그러나 Photo. 6의 610℃에서는 Al이 휘발되고 Si가 외부로 빠져나가 접합부에서 Si의 양은 희박해졌고 또한 일부는 Al쪽으로 확산되었다.[14] 이를 통하여 580℃에서는 취성의 Si가 많이 존재하여 접합 계면에서의 응력 집중 현상이 일어나 접합 강도에 영향을 주어 접합 강도가 낮게 나타난다고 사료된다.



(a) lineprofile of Ti brazed at 610℃



(b) lineprofile of Si brazed at 610℃



(c) lineprofile of Al brazed at 610℃

(d) mapping of Si brazed at 610℃

Photo 6 SEM images, line profiles, and elements mapping in interfaces of 1.5㎛ Ti-coated Al_2O_3 and Al6061 brazed with Al-12Si wt% filler metal

4. 결 론

알루미늄과 알루미나의 브레이징 접합에 있어서 Al-12Si wt% 삽입 금속을 사용하여 Al6061과 Al_2O_3, 그리고 알루미나 표면에 활성 금속 Ti를 0.5㎛, 1㎛, 1.5㎛, 2㎛ coating한 Al_2O_3와 Al 6061을 브레이징 접합하였으며, 이러한 접합체의 브레이징 Mechanism을 이해하고자 SEM, X-선 회절분석(XRD), 접합 강도 시험을 통하여 접합 변수에 따른 접합 강도의 변화를 계면 조직과 비교하였으며, 이로부터 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. Al 6061/Al_2O_3의 접합에서 최대 강도값은 고진공

620℃, 10min의 조건에서 54Mpa을 얻었으나, 이 접합 조건에서는 알루미늄의 성분 중 마그네슘이 대량으로 휘발하기 때문에 산업 현장에서는 적용하기가 어려울 것으로 판단된다.

2. Al 6061/Al_2O_3계면에서 반응생성물에 대한 저입사각 XRD 분석을 통하여, 가장 낮은 강도를 보이는 580℃, 10min의 접합조건에서 SiO_2가 많이 생성되었다.
3. Al 6061/Ti coated Al_2O_3의 접합부 계면을 선분석과 면분석을 통하여 분석한 결과 접합 온도가 580℃에서 620℃로 증가함에 따라 Si의 양이 감소하였다. 580℃와 610℃ 두 종류의 접합부를 XRD분석한 결과 SiO_2는 접합 온도의 증가에 의해 감소하였다.
4. Al 6061/Ti coated Al_2O_3의 접합체에서 활성 금속 Ti의 두께가 증가할수록 접합 강도는 증가하였고 2.0㎛, 610℃에서 최대 파괴 인장 강도는 59.9MPa를 나타내었다.

후 기

본 연구는 1999년 부경대학교학술진흥재단 학술연구비지원으로 수행되었음.

참고 문헌

1. O. M. Akselsen 1992, "Advances in Brazing of Cermics", Journal of Material Science, Vol. 27, pp. 1989~2000.
2. D. D. Berger 1981, "Joining Tantalum to Alumina by Brazing", Welding Journal, Vol. 60(10), pp. 25~28.
3. T. Yamada, M. Horino, K. Yokoi, M. Satoh and A. Kohno 1991, "Hermetic Seal of Metals Joints by an Al-Si Interlayer", Journal of Materials Science Letter, Vol. 10, pp. 807~809.
4. H. Mizuhara and K. Okamoto, M. KShimada 1985, "Effect of Thickness on Direct Bonding of Silicon Nitride to Steel", Welding Journal, Vol. 64, No. 10, pp. 523~529.
5. H. Mizuhara and E. Huebel 1986 "Joining Ceramic to Metal with Ductile Active Filler Metal", Welding Journal, Vol. 65, No. 10, pp. 43~51.
6. O. Kimura 1987 "Analysis of Thermal Stresses in a Ceramic-Metal Joint(Ⅱ)", Journal of Japan Society. Powder and Powder Met, Vol. 34, No. 9, pp. 518~521.
7. 奈鴛正明, 廣野豊, 岡本有β男, 1987 溶接學會論文集 Vol, 5, number3, pp. 379~384.
8. F. Gaudette, S. Suresh, A. G. Evans, 1999, Metallurgical and Materials Transactions A, Vol. 30A, 3, pp. 763~769.
9. J. Woltersdorf , E.Pippel ,E. Roeder, G. Wagner 1995, J. phys. stat. sol. (a) 150. 307.
10. Katsuaki Suganuma, Taira Okamoto, Mitsue Koizumi, and Masahiko Shima da, 1984, J. Am. Ceram. Soc, 68 [12] C256~C257.
11. 박상환, 1992, 대한금속학회회보, Vol, 5, No. 2, pp. 154~163.
12. Al-pingxian, Zhong-yao 1992, si, J, of Mater, Sci, 27, pp. 1560~1566.
13. 이우천, 강춘식 1992, "Si_3N_4-304 스테인리스강 接合체의 界面 조직과 接合강도에 대한 Ag-Cu기 brazing 합금 내 첨가원소의 影響(Ⅱ)(Al 및 Sn첨가 影響)", 대한금속학회지, Vol. 30(6), pp. 664~671.
14. 이규용. 외 1999 "Al_2O_3/Al6061의 접합후 계면 특성에 관한 연구", 한국동력기계공학회 '99 추계학술대회 논문집, pp. 114~117.