

브레이징법에 의한 TiAl 금속간 화합물의 접합에 관한 연구*

김환태 · 권용재 · 김지순 · 권영순
재료공학과

<요 약>

본 연구에서는 Al을 삽입금속으로 사용하여 브레이징법으로 접합한 TiAl 금속간화합물의 접합특성에 대하여 조사하였다. 삽입금속인 Al과 모재인 TiAl과의 반응에 의해 접합계면에서는 반응생성층으로서 경도가 모재보다 높고 취약한 $TiAl_3$ 가 형성되었으며, 접합온도가 $600^{\circ}C$ 로 낮았거나 가열속도가 $30K/min$ 으로 너무 빠를 경우에는 반응생성층내에 void와 미소균열과 같은 접합결함이 존재하였다. 이와 같은 접합결함들은 $700^{\circ}C$ 보다 높은 온도에서 접합하거나 가열속도를 $10K/min$ 보다 낮게 하여 접합한 경우에는 나타나지 않았다. 한편 접합체의 기계적 성질의 향상을 위하여 접합 후 Ar 가스 분위기에서 열처리를 행한 결과, $1300^{\circ}C$ 에서 3시간 동안 열처리를 했을 경우 모재와의 조성의 균일화가 완전히 이루어지지 않았으며 또한 반응생성층의 형태도 변화가 없었다. 그러나 $1350^{\circ}C$ 에서 3시간 동안 열처리한 결과 조성의 균일화와 함께 반응생성층은 γ 단상으로 변화하였으며, 반응생성층의 미소경도는 총상조직인 모재의 미소경도보다 조금 낮게 나타났다.

A Study on the Joining of TiAl Intermetallic Compound by Brazing

Hwan-Tae Kim · Yong-Jai Kwon · Ji-Soon Kim · Young-Soon Kwon
Department of Materials Science and Engineering

<Abstract>

In this study, Joining properties of TiAl intermetallic compound bonded by brazing method using an insert metal of Al foil were investigated. A brittle reaction product

* 본 연구는 1995년도 한국과학재단 지정 재료계면공학연구센터의 연구비 지원으로 이루어졌음.

layer, $TiAl_3$ was formed at the joining interface and its microhardness was very higher than that of base metal. When the specimen was bonded at low temperature of $600^\circ C$ or with high heating rate of $30K/min$ respectively, joining defects like void and micro-crack were formed in the inside of reaction layer. These joining defects were disappeared when the specimen had been bonded at higher temperature than $700^\circ C$ or with lower heating rate than $10K/min$. For the purpose of improving the mechanical properties of joints, effects of the post-bond heat treatment in Ar gas atmosphere on microstructure and hardness distribution of the bonded specimen were studied. When the joint was heat-treated at $1300^\circ C$ for 3 hr, homogenization of the compositions in the joining interface region was not achieved completely and morphology of the reaction product layer was still remained without morphological change. However, when the joint was heat-treated at $1350^\circ C$ for 3 hr, homogenization of the compositions in the joining interface region was achieved and the reaction product layer changed to γ single phase. And micro-vickers hardness of reaction layer region was slightly lower than that of base metal.

1. 서 론

TiAl 금속간화합물은 비중이 작고($3.7 \sim 3.9g/cm^3$) 용점이 높으며($1460^\circ C$) 고온에서의 강도와 creep 특성, 내산화성과 같은 고온물성이 우수하여 차세대 항공기용 엔진부품과 같은 고온용재료로서 많은 주목을 받고 있는 소재이다^[1-3]. 그러나 TiAl은 기존의 Ti 합금에 비해 사용온도가 높고 고온 물성도 월등히 우수함에도 불구하고 상온에서의 매우 낮은 연성과 성형성의 결핍이란 단점을 가지고 있어 소재의 광범위한 사용에는 큰 제한을 받고 있다^[4]. 현재 사용되고 있는 TiAl의 가공방법으로는 정밀주조법, 초소성가공/확산접합법 그리고 분말야금법 등이 이용되고 있으며^[2,5], 앞으로 적용될 다양한 용도와 복잡한 형상을 가진 제품으로의 제조를 고려할 때 가공방법의 한 방법으로서 접합법의 적용을 생각할 수 있다. 금속간화합물의 접합에는 Laser beam 용접, Electron beam 용접 그리고 TIG 용접과 같이 접합시 모재의 용융을 수반하는 용융용접법과 모재의 용융이 없이 접합이 이루어지는 마찰압접이나 확산접합 등과 같은 고상접합법 그리고 삼입금속을 사용하여 접합이 이루어지는 Brazing이나 TLP Bonding과 같은 액상접합법 등을 생각할 수 있다^[6-9]. 그러나 TiAl은 기계적성질이 조성의 변화에 매우 민감하고 용접시 crack 발생이 용이하기 때문에 TiAl의 접합에는 용융용접법보다는 접합시 모재의 용융이 전혀 없거나 국부적으로 용융이 발생하여 접합이 이루어지는 고상접합법이나 액상접합법과 같은 접합공정이 유리할 것으로 생각된다.

따라서 본 연구에서는 접합방법으로서 고상접합법에 비해 장치도 간단하며 저온에서 접합할 수 있는 Brazing법을 선택하였으며, 삼입금속으로서 저용점인 Al을 사용하여 모재인 TiAl 금속간화합물을 접합하였을때의 접합조건에 따른 접합부의 조직 변화, 생성상의 동정 및 접합 후 열처리가 접합체에 미치는 영향 등에 대해 조사하고자 하였다.

2. 실험방법

실험에 사용한 모재는 Ti-48at.%Al-1.5at.%Mn 조성의 합금으로 직경 10mm 크기의 봉상의 주조재였으며, 실험을 하기전에 4mm 높이로 절단한 후 Ar 가스 분위기에서 수평관상로에서 1300℃에서 3시간 동안 균질화처리를 해준 후 접합에 사용하였다. 삽입금속은 두께가 15 μ m인 Al-foil을 사용하였다. 모재와 삽입금속에 대한 전처리로서, 모재의 피접합면은 SiC 연마지를 사용하여 #1200까지 단계적으로 연마하였으며, 접합 직전에 연마된 모재를 삽입금속인 Al-foil과 함께 아세톤 용액에 넣고 초음파세척을 한 후 실험에 사용하였다. 접합실험은 시편을 진공접합로에 장착한 후 고주파유도가열에 의해 가열하였으며, 접합조건으로서 그림 1과 같이 접합온도, 유지시간, 가열속도를 변화시키면서 접합하였다. 접합시 chamber내의 진공도는 4×10^{-5} Torr 이었다.

접합시편의 접합계면부에 대한 미세조직을 관찰하기 위하여 접합계면에 수직한 방향으로 시편을 절단하여 연마한 후 광학현미경과 주사전자현미경(SEM)을 이용하여 미세조직을 관찰하였으며, SEM/EDS를 이용한 접합계면부의 성분조사 및 X선 회절 분석(Cu target)을 통하여 접합계면의 반응층에 대한 상규명을 실시하였다. 그리고 접합부의 경도 분포를 조사하기 위하여 미소경도계를 사용하여 접합부에 형성된 반응층과 모재간의 경도 분포를 조사하였다. 미소경도 측정시 시편에는 30초 동안 100g의 하중을 가해주었다. 접합체의 접합강도에 미치는 열처리의 영향을 알아보기 위하여 수평관상로를 사용하여 Ar gas 분위기하에서 접합 후 열처리를 행하였다.

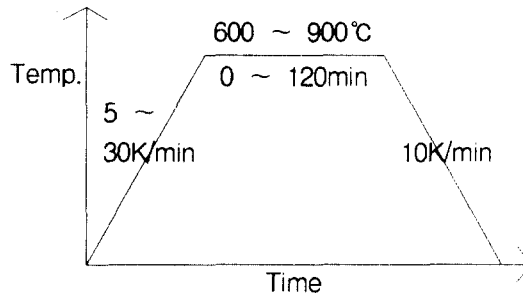


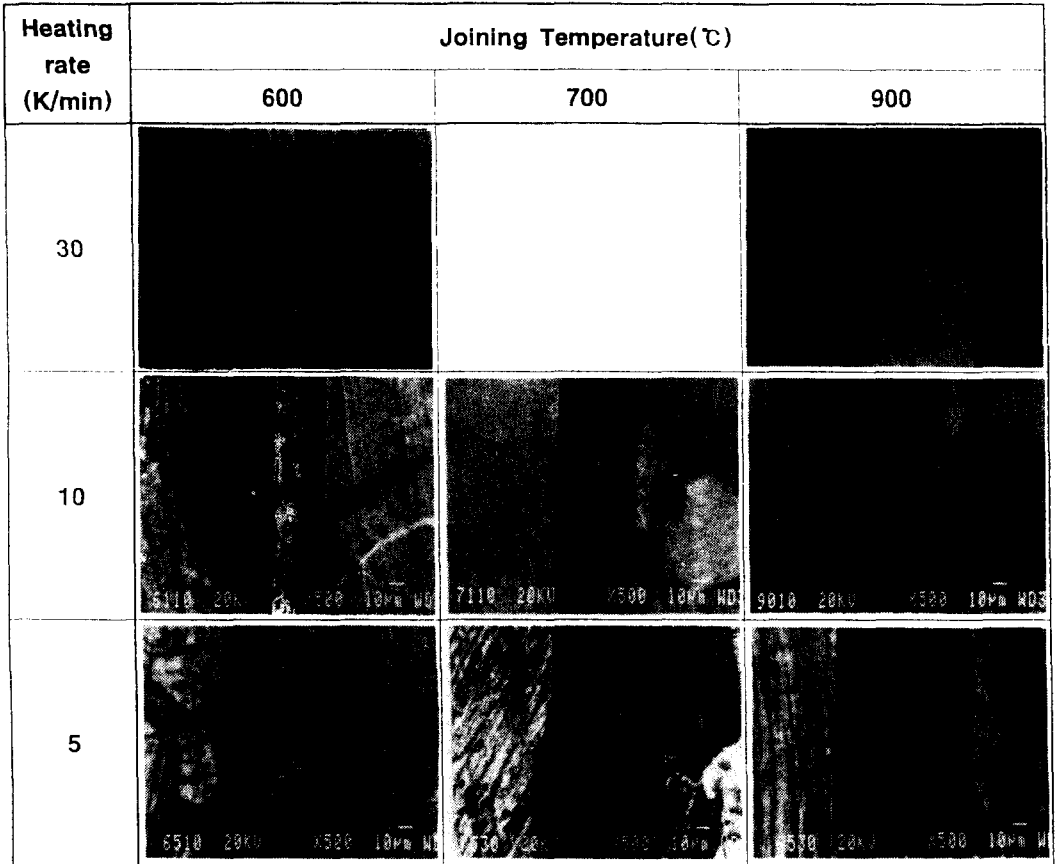
Fig. 1 Brazing temperature and time cycle for joining of TiAl

3. 실험결과 및 고찰

3-1 접합과정

그림2는 접합에 따른 접합계면에서의 반응층 형성에 미치는 접합온도와 가열속도의 영향을 알아보기 위하여 접합시 각 접합온도와 가열속도에 따른 접합부의 미세조직을 관찰한 것이다. 접합부의 미세조직은 모재와 반응생성층으로 이루어져 있으며, 접합계면에 형성된 반응층은 가열속도에 상관없이 600℃의 접합온도에서 TiAl과 Al 사이의 고상확산에

의해 형성되어 있음을 알 수 있다. 그리고 반응층내부에는 접합결함으로 접합계면 방향으로 형성된 미세한 균열과 함께 void들이 산재되어 있는 것을 알 수 있다. 이와 같은 접합 결함들은 가열속도가 빠를수록 그리고 접합온도가 낮을수록 크게 형성되어 있었으며, 10K/min보다 느린 가열속도를 유지하며 Al의 용점인 660°C보다 높은 온도에서 접합이 이루어진 경우에는 void들의 수가 현저하게 감소하였으며 반응층 중앙에 존재하고 있던 crack은 보이지 않았다. 즉 600°C에서 접합한 경우에는 확산계수의 차이가 큰 Ti과 Al 사이의 고상확산이 일어남으로써 Kirkendall effect에 의해 많은 void들이 형성되었던 것임을 알 수 있다.



Holding time : 30min

Fig. 2 Optical and SEM microstructures of TiAl joints bonded at various joining conditions (Joining temperature : 600-900°C, Holding time : 30min, Joining pressure : 1MPa, Heating rate : 5-30K/min)

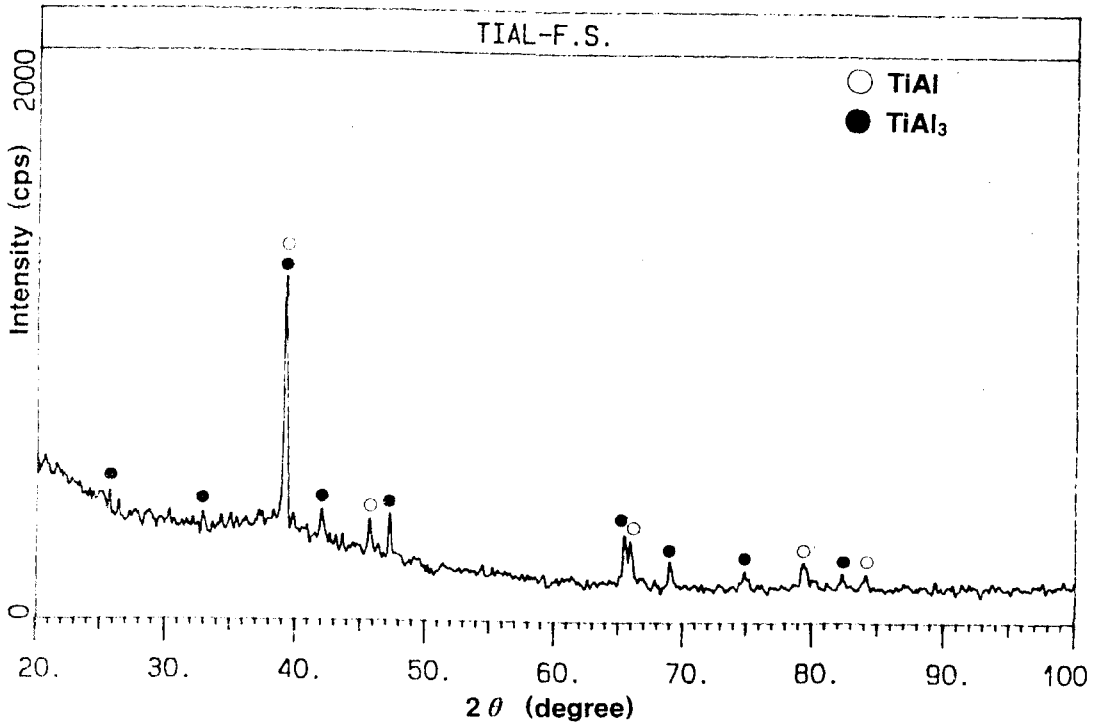


Fig. 3 Result of XRD analysis at the reaction layer

그림 3은 접합계면에 형성된 반응층의 상규명을 위하여, 접합체를 강제 파단시켜 나타난 반응생성층 표면에 대해 Cu-target을 사용하여 X선 회절분석을 행한 결과로서 접합계면에 형성된 반응층은 또다른 취약한 금속간화합물인 TiAl₃임을 알 수 있다. 한편 700°C와 900°C에서 접합한 시편을 관찰한 접합계면에서는 먼저 형성된 반응층(Reaction layer I)인 TiAl₃와 모재인 TiAl 사이에서 접합계면과 평행하게 폭이 최고 5 μ m 정도인 또다른 반응층(Reaction layer II)이 형성되어 있음을 알 수 있었다. 접합계면과 평행하게 규칙적으로 형성된 이 새로운 반응층에 대해 EDS로 선분석과 정량분석을 한 결과를 그림 4에 나타내었다. 그림 4-(a)에 나타낸 것과 같이 접합계면부와 수직방향으로 선분석을 한 결과, 그림 4-(b)와 같이 새로운 반응층인 Reaction layer II에서 나타난 Al과 Ti의 peak중 Al의 peak는 Reaction layer I인 TiAl₃에서 나타난 peak보다 낮았으나 모재인 TiAl에서 보다는 높았으며, Ti의 peak는 TiAl₃에서 검출된 것 보다는 높고 모재인 TiAl에서 보다는 낮게 나타났으며 정량분석 결과에 따른 조성을 고려할 때(그림 4-(c)) Reaction layer II는 TiAl₂임을 알 수 있었다. TiAl과 TiAl₃의 계면에 형성된 TiAl₂의 존재에 대해서는 TiAl의 표면에 Al을 Coating하여 TiAl₃ 피막을 형성시킨 후, 이 시편을 장시간 열처리한 실험에서 TiAl과 TiAl₃ 사이에서 TiAl₂가 형성됨을 밝힌 H. Mabuchi 등의 실험 결과와도

일치하였다^[10].

그림 5는 반응생성층 내에 접합결합이 거의 없는 양호한 접합부를 보여주는 미세조직 사진으로, 접합시 가열속도가 10K/min이었을 때는 900℃의 접합온도에서 30분 이상 유지될 때 접합결합이 없는 반응층이 형성되었다. 한편 가열속도를 더욱 느리게 하여 5K/min로 유지하였을 때는 700℃의 접합온도에서 30분 이상 유지할 경우 반응층 내의 접합결합들은 거의 사라지게 되었다.

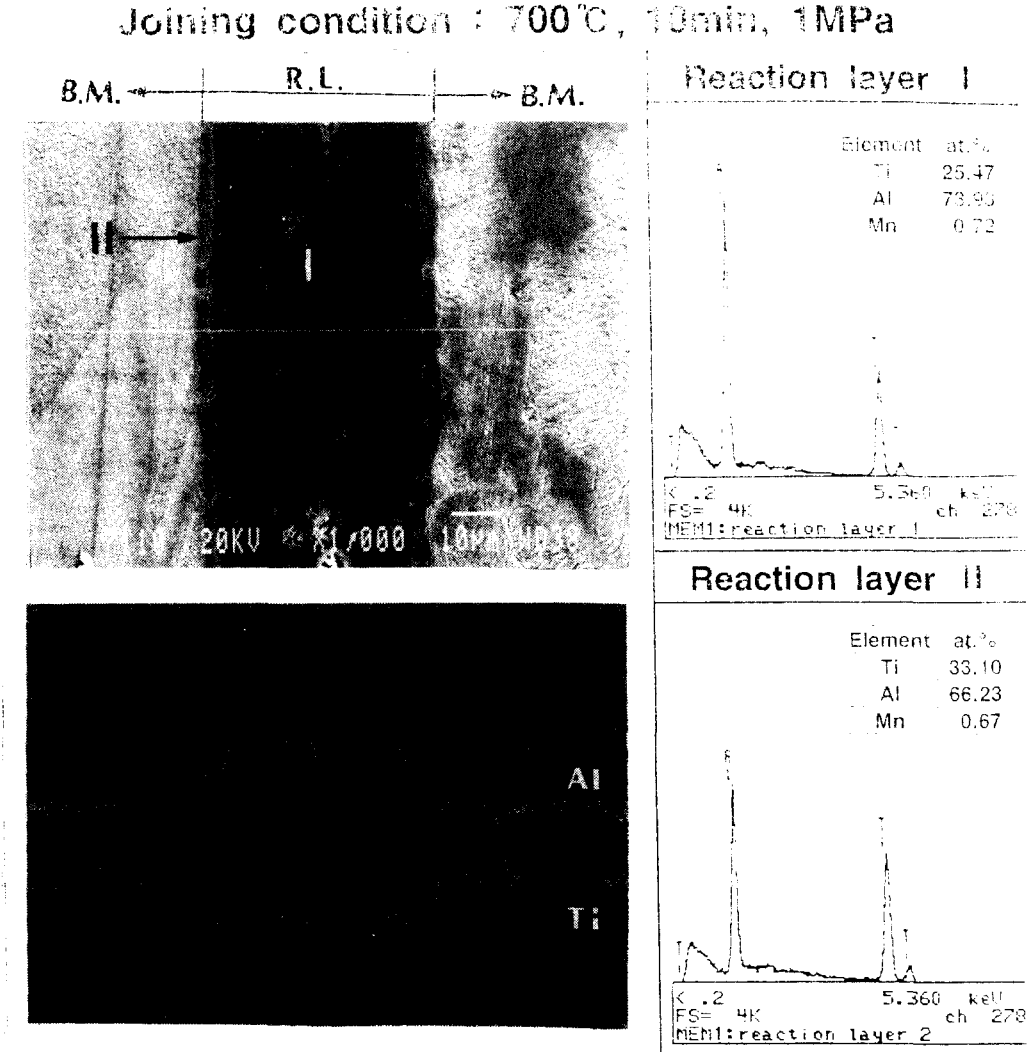


Fig. 4 SEM/EDS analysis on the TiAl joint bonded at 700℃ for 10min with 10K/min
 (a) Microstructure of the reaction layer (b) Line profiles of Al and Ti
 (c) EDS spectra and quantitative analysis of the reaction layer I and II

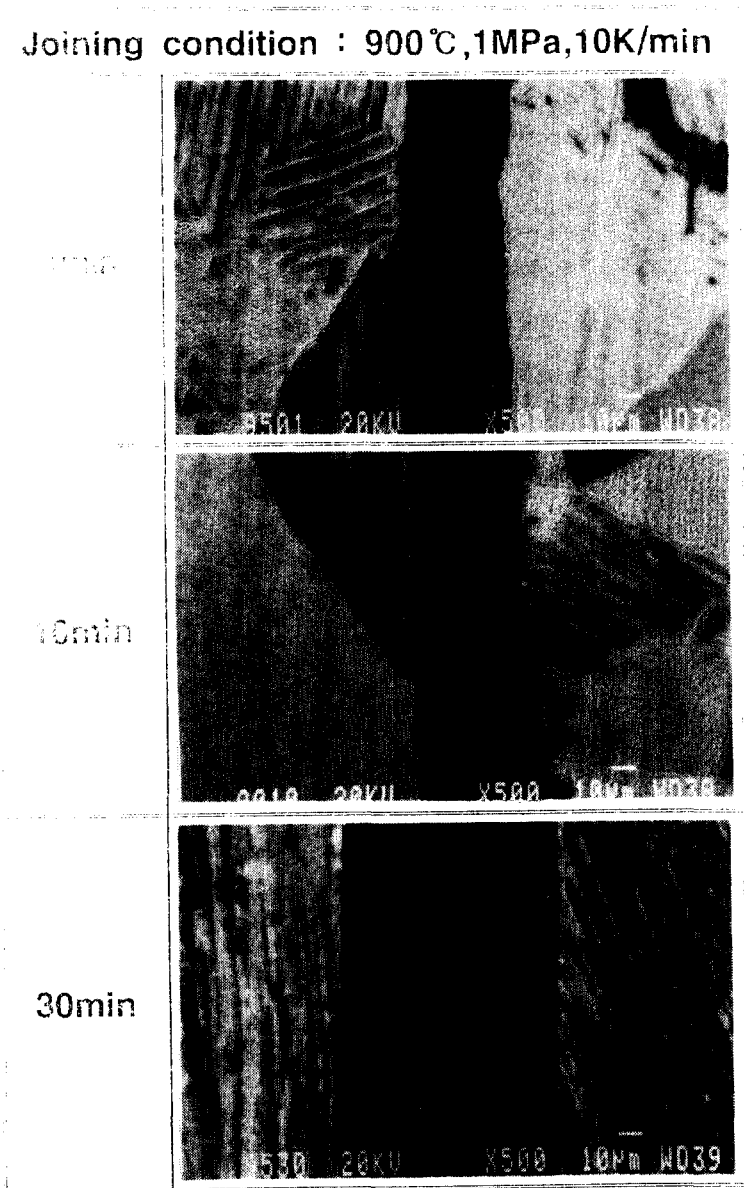


Fig. 5 Microstructure of joint bonded at 900°C, 30min, 1MPa and 10K/min

3-2 접합부의 미세조직에 미치는 열처리의 영향

Al을 삽입금속으로 사용한 TiAl의 접합실험에서 접합결함이 없는 양호한 접합부를 얻을 수 있었으나 접합부에서는 취약한 금속간화합물인 $TiAl_3$ 가 형성됨으로써 접합체의 접합강도는 좋지 못하였다. 그리하여 반응생성층인 $TiAl_3$ 를 분해시켜 모재와의 조성의 균일화와 함께 접합강도를 향상시킬 목적으로 그림 2에서 비교적 양호한 결과를 보인 접합조건(가열속도 10K/min, 접합온도 900°C, 유지시간 60분, 접합압력 1MPa)의 시편에 대해 수평관상로를 이용하여 Ar gas 분위기에서 1300°C와 1350°C에서 각각 3시간 동안 가열한 후 노냉을 하였다.

그림 6은 접합후 Ar gas 분위기의 수평관상로를 이용하여 1300°C에서 3시간동안 열처리한 시편의 미세조직으로 접합부에 존재하는 반응층의 형상은 변함이 없었으나, 반응층 영역에서의 조성의 분포는 접합부를 선분석한 결과(그림 6-(b)) 열처리하는 동안 Ti과 Al의 확산이 이루어지면서 조성의 균일화가 진행되고 있음을 알 수 있다. 그리고 이 반응층 영역은 EDS로 정량분석을 행한 결과 Ti-56at.%Al-0.7at.%Mn의 조성으로된 Al rich γ 상이었다.

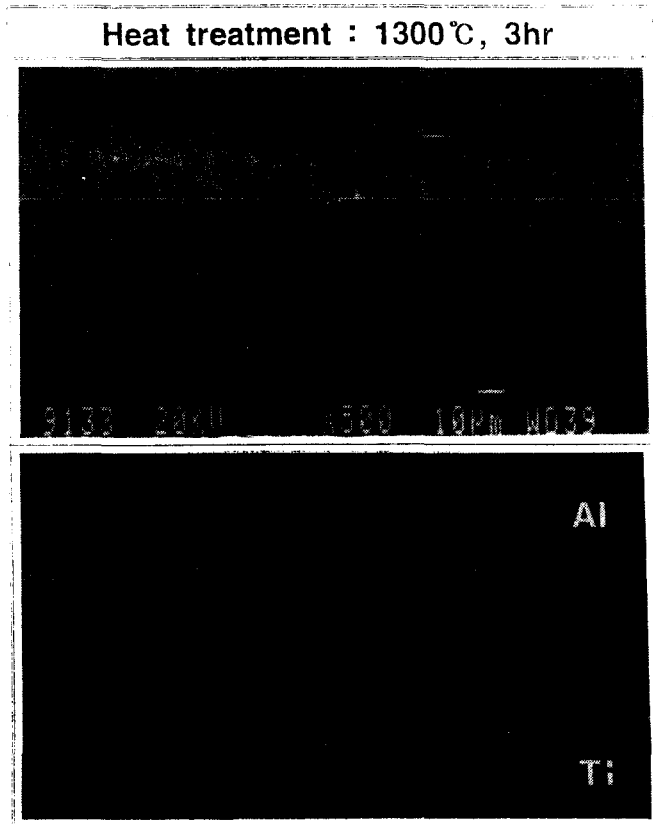


Fig. 6 Microstructure and line profiles of Al and Ti of heat-treated joint at 1300°C for 3hr

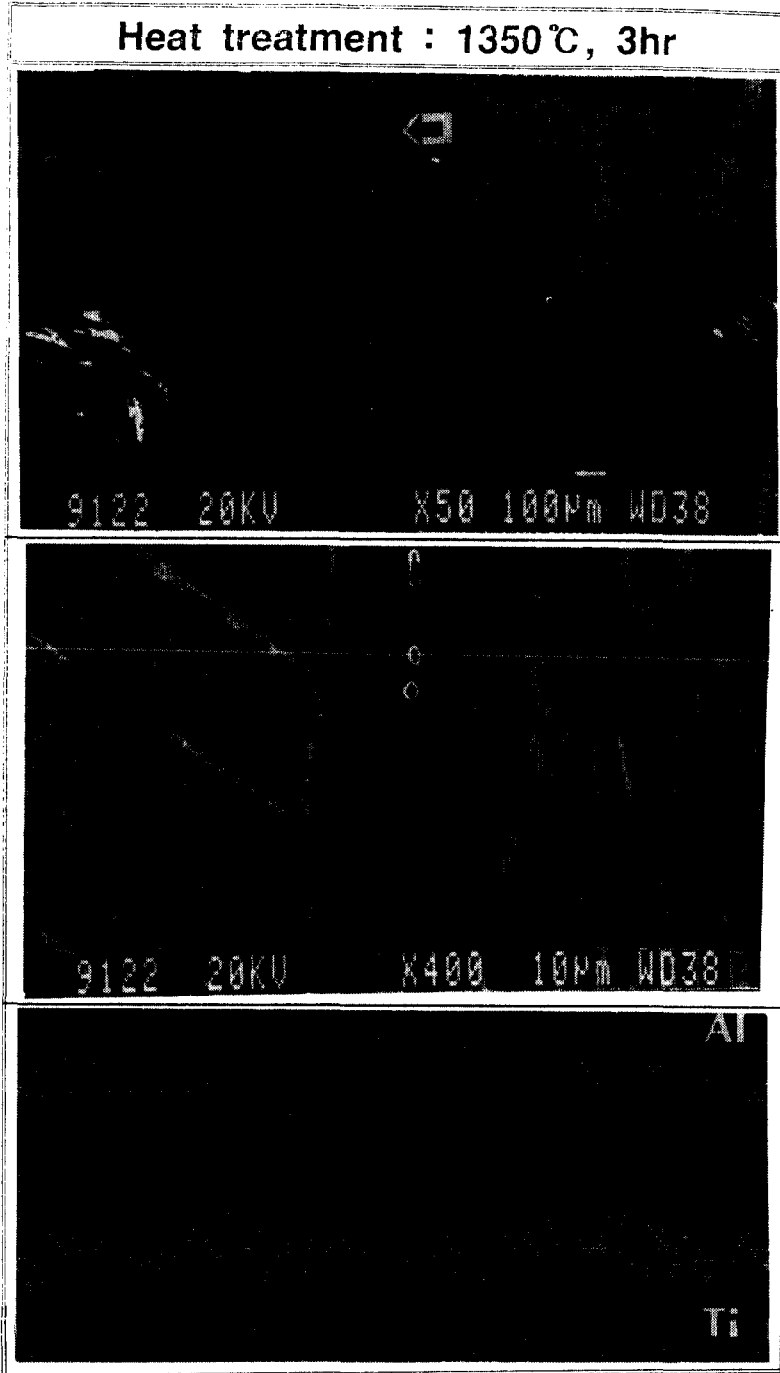


Fig. 7 Microstructure and line profiles of Al and Ti of heat-treated joint at 1350°C for 3hr

(a) Microstructure of joint (b) (a) magnified (c) Line profiles of Al and Ti

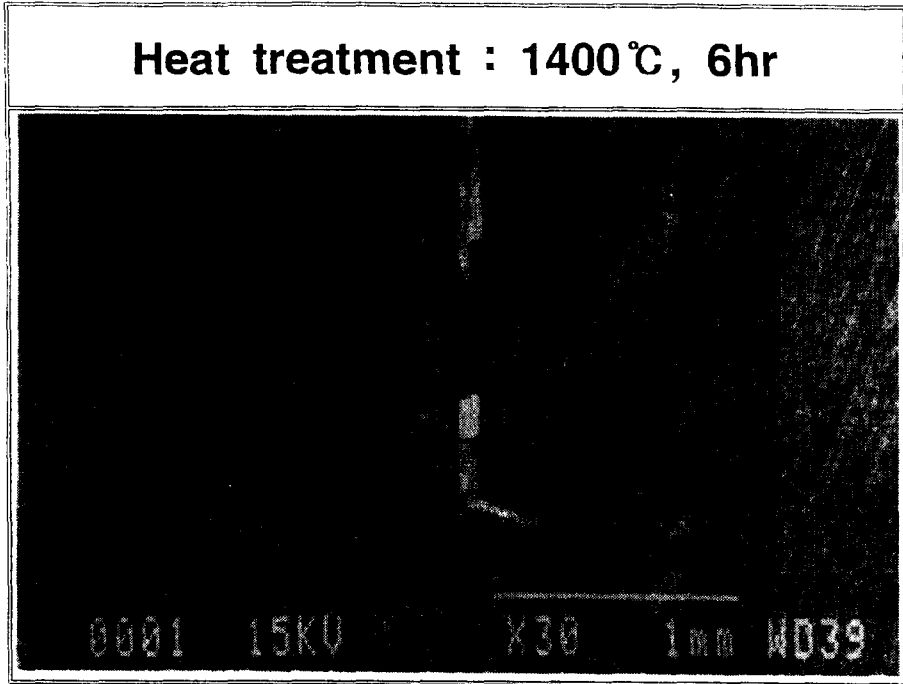


Fig. 8 Microstructure of heat-treated joint at 1400°C for 6hr

그림 7은 1350°C에서 3시간 동안 열처리한 접합시편의 접합부의 미세조직을 관찰한 사진이다. 그림 7-(a)는 접합계면부를 저배율로 관찰한 것으로 대부분의 반응층 영역은 그대로 존재하고 있었으나 화살표로 나타낸 부분과 같이 일부 접합계면부에서는 반응층이 사라지고 모재 조직이 서로 맞닿아 결정입계가 접합계면에 평행하게 이루어져 있는 부분이 관찰되었다. 그리고 반응층내에 소수의 void들이 분산되어 존재하고 있었던 시편의 경우에는 열처리된 후에는 반응층의 중앙에서 소수의 void들이 접합계면과 평행하게 직선상으로 집적되어 있는 것이 일부 관찰되었다. 따라서 이와 같은 void들은 인장강도와 같은 기계적 특성에 나쁜 영향을 미칠 것으로 생각되므로 접합시편의 제조시 접합결함이 하나도 없는 접합부의 형성이 무엇보다도 중요하다. 그림 7-(b)는 그림 7-(a)의 화살표 영역을 확대한 것으로서 반응층 영역에 대한 상분석 결과는 그림 7-(c)와 같이 조성의 균일화가 이루어졌음을 알 수 있으며 EDS를 이용한 정량분석 결과 조성이 Ti-53at.%Al-0.6at.%Mn인 γ 단상임을 알 수 있다. 열처리에 의해 형성된 γ 단상은 반응층 영역에서 접합계면과 평행한 방향으로 길쭉하게 형성되어 있었으며 duflex 구조(층상 + γ 단상 구조)의 모재조직과 결정립 크기는 열처리 전과 비교해 변함이 없었다.

한편 TiAl과 Al과의 반응에 의해 형성된 $TiAl_3$ 는 $TiAl_3$ 의 용점 바로 위인 1350°C 온도에서 행한 열처리에 의해서 γ 단상으로 완전히 분해되었지만 모재와 열처리 전의 $TiAl_3$ 와의 결정입계는 그대로 존재하였다. 그리하여 이 결정입계의 소멸, 즉 반응층의 모재화 정도를 도모하기 위하여 1400°C에서 6시간 열처리를 해보았지만 그 결과는 그림 8과 같이 열처리에 의해 γ 단상으로 변한 반응층 영역과 모재와의 결정입계는 그대로 존재한 채 오히려

duflex 구조의 모재 조직만 전부 조대한 층상조직으로 변하여 1400℃는 접합시편의 열처리로는 부적당한 것으로 판단되었다. 따라서 접합시편의 열처리로는 취약한 반응생성층인 TiAl₃의 γ 상에로의 분해가 이루어지고 또한 모재조직의 조대화가 일어나지 않는 1350℃에서의 열처리가 적합한 것으로 사료된다.

3-3 열처리에 따른 반응층의 미소경도변화

모재와 삽입금속인 Al과의 반응에 의해 TiAl₃가 형성된 접합부의 경도분포를 알아보기 위하여 접합부에 대한 미소경도를 조사한 결과를 그림 9에 나타내었다. 그림에서 보면 반응층인 TiAl₃에서의 미소경도는 모재인 TiAl에서의 미소경도보다 월등히 높은 값을 나타내고 있으며, 그림 9에서 모재와 반응층 영역의 경계에 나타낸 미소경도, 즉 모재와 주반응층인 TiAl₃의 계면에서 형성된 또다른 반응층인 TiAl₂의 미소경도는 모재인 TiAl보다는 높고 주반응층인 TiAl₃보다는 낮게 나타났다.

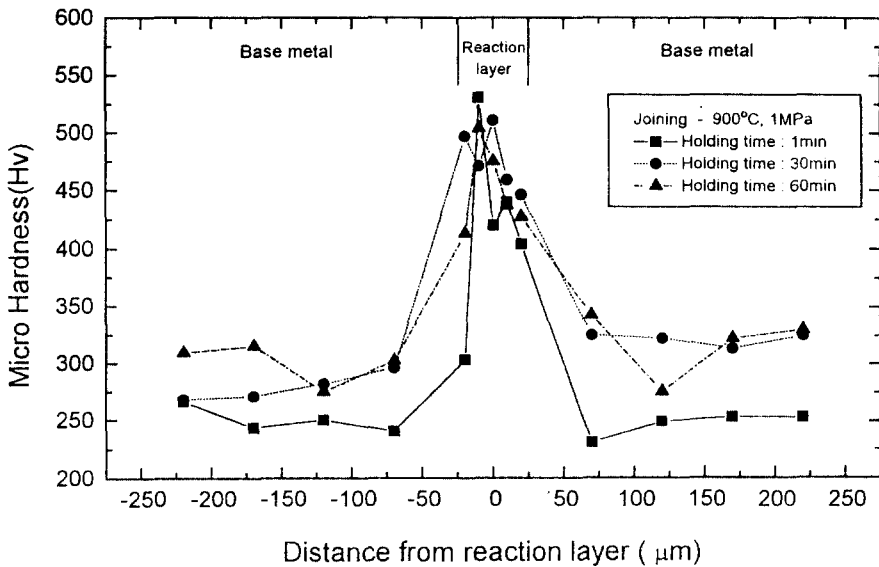


Fig. 9 Microhardness distributions of joint specimen

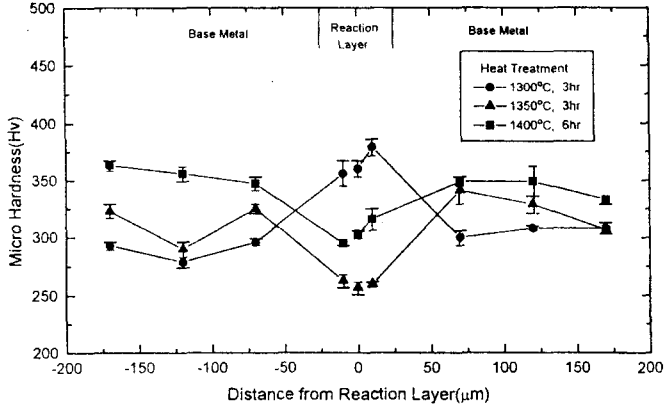


Fig. 10 Microhardness distributions of heat-treated specimen at 1300°C, 1350°C and 1400°C respectively

접합계면의 반응생성층이 접합 후 열처리에 의해 γ 단상으로 변화하는 것을 앞의 3-2절에서 관찰한 바에 따라 접합후 열처리에 따른 접합부의 미소경도 변화를 조사한 것은 다음과 같았다. 그림 10은 900°C에서 60분 동안 접합한 시편을 1300°C, 1350°C, 1400°C에서 열처리를 한 후 접합부의 미소경도를 조사한 것이다. 1300°C에서의 열처리에 의해 조성의 균일화가 완전히 이루어지지 않은 반응층 영역의 미소경도는 $TiAl_3$ 의 미소경도보다는 매우 작아졌으나 모재의 미소경도보다는 조금 높게 나타났다. 그러나 반응층의 조성이 모재와 균일화를 이룬 1350°C와 1400°C에서 열처리를 행한 시편의 경우에는, 반응층인 $TiAl_3$ 가 열처리에 의해 완전히 γ 상으로 변한 반응층 영역의 미소경도가 모재부분의 미소경도와 같지 않고 조금 낮게 나타났는데 이는 미소경도를 측정할 반응층 영역 이웃의 모재조직이 γ 상과 α_2 상으로 이루어진 층상 조직이었기 때문이었다.

이와 같은 접합부의 미소경도 조사 결과에서 반응생성층인 $TiAl_3$ 의 경도가 가장 높았으며 열처리에 의해 형성된 Al-rich γ 상과 γ 상 순으로 미소경도가 낮게 나타남을 알 수 있었다.

4. 결 론

TiAl 금속간화합물을 Al을 삽입금속으로 사용하여 접합온도인 600°C~900°C까지의 가열속도를 변화시키면서 접합한 후, 접합시편에 대해 열처리를 행하여 접합부의 미세조직 변화와 경도분포를 조사한 결과는 다음과 같았다.

- 1) 접합시 모재인 TiAl과 삽입금속인 Al 사이의 반응은 600°C의 접합온도에서도 매우 빨리 일어났으며, 이때 형성된 반응층은 경도가 모재에 비해 매우 크고 취약한 $TiAl_3$ 였다.
- 2) 700°C와 900°C에서 접합한 경우에는 접합부의 반응생성층인 $TiAl_3$ 와 모재인 TiAl 사이에 새로운 계면반응층인 폭 1~5 μ m 정도의 $TiAl_2$ 가 관찰되었다.

- 3) 가열속도를 30K/min로 하여 접합한 시편은 반응생성층 내부에 void와 균열과 같은 접합결함들이 형성되어 접합이 이루어지지 않았으나, 가열속도를 10K/min로 낮추어 접합을 하였을때는 접합온도가 900℃일때 30분 이상에서, 가열속도가 5K/min일때는 접합온도가 700℃에서 30분 이상 접합하였을때 접합결함이 없는 양호한 접합체를 얻을 수 있었다.
- 4) 접합시편의 접합강도를 향상시키기 위하여 접합 후 각각 1300℃와 1350℃ 그리고 1400℃에서 열처리를 행한 결과는 다음과 같았다.
 - ① 1300℃에서 3시간 동안 열처리한 경우에는 접합계면에서의 조성의 균질화는 완전히 이루어지지 않았으며 접합계면부의 미소경도도 모재보다 약간 높게 나타났다.
 - ② 1300℃보다 높은 온도에서 열처리한 경우에는 접합계면에서의 조성의 균질화와 함께 반응생성층이 γ 단상으로 변화였으며, 반응층 영역의 미소경도는 총상인 모재조직에서보다도 조금 낮게 나타났다.

참 고 문 헌

- [1] Y.-W. Kim, Intermetallic alloys based on gamma titanium aluminide, JOM, Vol. 41, No. 7(1989), p24
- [2] F.H. Froes, C. Suryanarayana and D. Eliezer, Synthesis, properties and applications of titanium aluminide, J. Mater. Sci., Vol. 27, (1992), p5113
- [3] T. Tsujimoto, R & D of structural intermetallic compound TiAl, NRIM SR-93-01 (NRIM, Tokyo, 1993)
- [4] H.A. Lipsitt, D. Shechtman and R.E. Schafrik, The deformation and fracture of TiAl at elevated temperature, Metall. Trans., Vol. 6A, (1975), p1991
- [5] K. Taguchi and M. Ayada, Near-net shape processing of TiAl intermetallic compounds via pseudo HIP-SHS route, Intermetallics, Vol. 3, (1995), p91
- [6] R.A. Patterson, P.L. Martin, B.K. Damkroger and L. Chrostodoulou, Titanium aluminide : Electron beam weldability, Welding Research Supplement, Vol. 13, No. 1(1990), p39_s
- [7] S.A. David, J.A. Horton, G.M. Goodwin, D.H. Phillips and R.W. Reed, Weldability and microstructure of Titanium aluminide, Welding Research Supplement, Vol. 13, No. 4(1990), p133_s
- [8] C. Chen and G.H. Chen, The effect of grain size on the weldability of Nickel aluminide, Scripta Metal., Vol. 22, (1988), pp1857
- [9] P. Yan and E.R. Wallach, Intermetallics, Diffusion-bonding of TiAl, Intermetallics, Vol. 1, (1993), p83
- [10] H. Mabuchi, T. Asai and Y. Nakayama, Aluminide coatings on TiAl compound, Scripta Metal., Vol. 23, (1989), pp685