

폴리타이포이드 경사 방식으로 접합 된 이종 세라믹간의 적층 수의 최적화 및 잔류응력 해석에 대한 연구

류세희 · 박종하 · 이선영[†] · 이재성 · 이재철* · 안성훈* · 김대근** · 채재홍** · 류도형**

한양대학교 금속재료공학과

*서울대학교 기계항공공학부

**요업기술원(세라믹 기술원)

Optimization of Crack-Free Polytypoidally Joined Dissimilar Ceramics of Functionally Graded Material (FGM) Using 3-Dimensional Modeling

Sae-hee Ryu, Jong-ha Park, Caroline Sunyong Lee[†], Jae-sung Lee, Jae-chul Lee*, Sung-hoon Ahn*, Dae-keun Kim**, Jae-hong Chae** and Do-hyung Riu**

Division of Materials and Chemical Engineering, Hanyang University, Kyunggi-do, 426-791, Korea

*School of Mechanical and Aerospace Engineering and Institute of Advanced Machinery and Design, Seoul National University, Seoul, 151-742, Korea

**Korea Institute of Ceramic Eng. and Tech. Seoul, 153-801, Korea

(2008년 8월26일 접수 : 2008년 10월 9일 최종수정 : 2008년 10월 10일 채택)

Abstract Crack-free joining of Si_3N_4 and Al_2O_3 using 15 layers has been achieved by a unique approach introducing Sialon polytypoids as a functionally graded materials (FGMs) bonding layer. In the past, hot press sintering of multilayered FGMs with 20 layers of thickness 500 μm each has been fabricated successfully. In this study, the number of layers for FGM was reduced to 15 layers from 20 layers for optimization. For fabrication, model was hot pressed at 38 MPa while heating up to 1700°C, and it was cooled at 2°C/min to minimize residual stress during sintering. Initially, FGM with 15 layers had cracks near 90 wt.% 12H / 10 wt.% Al_2O_3 and 90 wt.% 12H/10 wt.% Si_3N_4 layers. To solve this problem, FEM (finite element method) program based on the maximum tensile stress theory was applied to design optimized FGM layers of crack free joint. The sample is 3-dimensional cylindrical shape where this has been transformed to 2-dimensional axisymmetric mode. Based on the simulation, crack-free FGM sample was obtained by designing axial, hoop and radial stresses less than tensile strength values across all the layers of FGM. Therefore, we were able to predict and prevent the damage by calculating its thermal stress using its elastic modulus and coefficient of thermal expansion. Such analyses are especially useful for FGM samples where the residual stresses are very difficult to measure experimentally.

Key words Si_3N_4 - Al_2O_3 joining, functionally graded material, polytypoid, finite element method.

1. 서 론

기능경사재료(functionally graded material; FGM)는 항공 재료의 고온과 극 저온의 온도차이를 극복할 수 있는 열 저항성을 필요로 하게 되면서 일본에서 제안되었다. 기능경사재료란, 서로 다른 두 재료의 사이에 조성의 구배를 부여한 접합의 한 방법이다. 경사재료의 기능은 여러 가지지만, 그 중에서도 특히 높은 응력을 발생시킬 수 있는 접합 내의 열팽창계수 차이에 경사를 만들어 준다는

것이 중요한 역할이다.¹⁻²⁾

Lee *et. al*은 Si_3N_4 - Al_2O_3 간의 기능경사재료 접합에 Sialon polytypoid를 적용하여 20층 적층에 성공한 바 있다.³⁾ Si_3N_4 -polytypoid- Al_2O_3 의 3층을 바로 접합했을 때는 잔류응력에 의해서 크랙이 발생하였다. 그러나 10 wt.% 씩 차이를 두어 20층으로 접합 했을 경우엔 잔류응력이 효과적으로 최소화 되었다는 사실을 알 수 있었다. Fig. 1은 3층과 20층의 기능경사재료에 분포하는 축 응력 계산 값을 비교한 것으로, 20층으로 늘렸을 때 그 응력이 확연히 줄었음을 볼 수 있다.⁴⁾

위와 같이, 이종 세라믹간의 접합에는 두 세라믹간의 열팽창 계수 차이로 인한 응력과 파괴를 막기 위해 기능

[†]Corresponding author

E-Mail : sunyonglee@hanyang.ac.kr (S. Y. Lee)

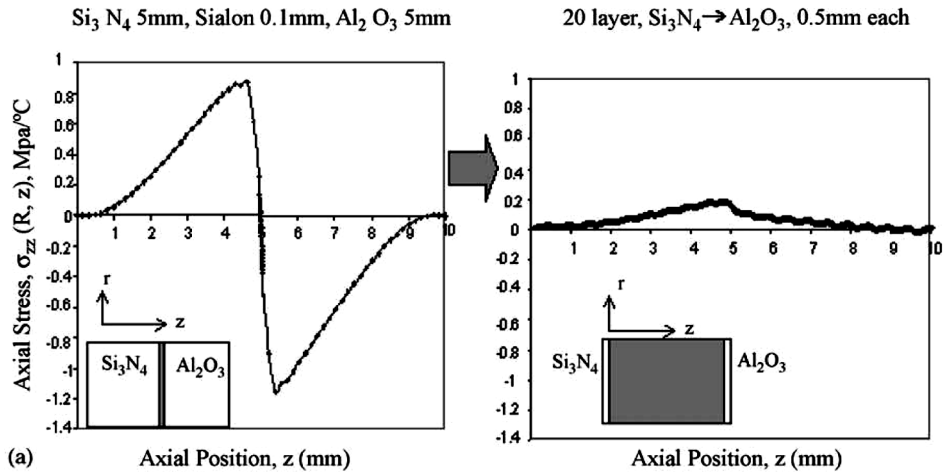


Fig. 1. Comparison of the stresses for a 3-layer sample vs. a 20-layer FGM cylindrical sample with a 19mm diameter: axial stresses, σ_{zz} at $r=R$ as a function of z .⁴⁾

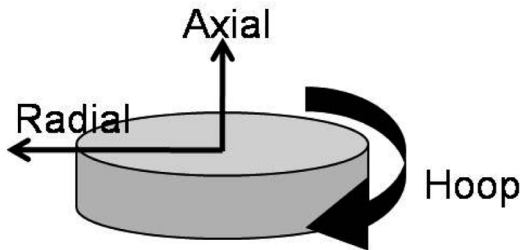


Fig. 2. Radial, axial, hoop stress system of a cylindrical sample.⁸⁾

경사재료를 주로 사용한다.

$Si_3N_4-Al_2O_3$ 간의 접합에 있어 sialon polytypoid를 적용하면 여러 가지 장점이 있다. Si-Al-O-N system의 polytypoid의 열팽창 계수(coefficient of thermal expansion; CTE)는 Si_3N_4 와 Al_2O_3 의 사이 값이기 때문에 Si_3N_4 와 Al_2O_3 를 접합의 중간층으로 적합하다.

또한 polytypoid는 M_mX_{m+1} 의 조성을 갖기 때문에, 과잉된 비금속이 격자 내에 규칙적으로 존재하게 된다.⁵⁾ 그래서 양이온/음이온 비율에 따라 결합 주기를 가지기 때문에 그 원자 구조를 다르게 정렬하게 된다.⁶⁾ 그러므로 polytypoid는, 원자개념에서 스트레스를 해소할 수 있기 때문에 접합의 중간층으로 적합하다. 또한 유리질이 없는 계면을 가지기 때문에 고온 강도가 좋다.⁷⁾

본 연구에서는, Lee *et. al*⁴⁾에서 성공한 20층 $Si_3N_4-Al_2O_3$ 간의 접합을 15층으로 줄이는 실험을 진행하였다. 20개의 층은 열 충격에 대해 크랙이 발생하지 않아 기능경사재료로 활용이 가능하다. 그러나 20개의 층은 최적화에 의해 결정된 수가 아니다. 이 실험을 통해 기존 20층의 기능경사재료보다 얇은 층으로 열 응력은 더 적게 받는 기능경사재료를 설계할 수 있었으며, 이는 제작 공정 단축 및 공정 비용을 줄이는 장점을 가질 수 있었다.

일반적으로 열 잔류응력의 수치해석에는 유한요소법이 주로 사용된다. 따라서 본 연구에서는 상용 유한요소프로그램으로 신뢰를 받고 있는 ANSYS를 사용하여 열 잔류응력을 계산하였다. 본 연구에서는 새로운 조건의 수치해석을 통해 파손이 발생하지 않는 경사기능재료를 설계하였다. 이를 이용하여 최종적으로 파손이 없는 15층의 $Si_3N_4-Al_2O_3$ 기능경사재료를 제작할 수 있었다.

2. 이 론

2.1 파손 기준 (Failure Criteria)

일반적으로 금속과 같이 소성 변형이 있는 연성 재료일 경우에는 등가(Von-Mises) 응력을 기준으로 하는 최대변형에너지설(Maximum distortion energy theory)로 파손 여부를 결정한다. 그러나 본 연구에 사용된 세라믹은 항복점 이하에서 소성 변형 없이 파괴되는 취성 재료이다. 따라서 취성 재료의 파손 예측에 사용되는 최대 인장 응력 이론(Maximum tensile stress theory)을 적용하였다.

2.1.1 최대 인장 응력 이론(Maximum tensile stress theory)

취성재료는 일반적으로 인장 항복 강도가 압축 항복 강도보다 약하기 때문에, 시편의 파손 예측에 최대 인장 응력 이론을 사용한다.

$$\sigma_x \geq \sigma_{yt} \text{ or } \sigma_y \geq \sigma_{yt} \text{ or } \sigma_z \geq \sigma_{yt} \tag{1}$$

여기서 $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ 는 직교좌표계(Cartesian coordinate)의 x축, y축, z축의 응력을 나타내지만 본 연구에 사용된 원통좌표계(Cylindrical coordinate)에서는 각각 축(axial), 후프(hoop), 방사(radial) 응력을 나타내며 이러한 응력을 Figure 2에 도식적으로 표현하였다. 그리고, σ_{yt}

는 인장 항복 강도로 등방성 재료일 경우에는 모든 방향에서 동일한 값을 가진다. 본 연구에서의 경사기능재료 시편은 전체적으로는 축방향의 물성이 후프와 방사 방향과는 다른 이방성을 가지나 각 층에서는 등방성을 가지므로 위의 파손 예측식을 각 층별로 사용할 수 있다.

3. 실험 방법

3.1 시편 제작

선형 혼합 법칙은 기능경사재료의 모델링에 널리 이용되고 있다. 기능경사재료 제작을 위해 선형 혼합 법칙을 이용하여 각 재료의 함량을 구하였다.

기능경사재료 시편은 다음의 순서대로 제작하였다. 먼저 Si_3N_4 분말의 크기는 $0.3 \mu m$ 에서 $0.5 \mu m$ 으로, Grand C & M에서 구입하였고, Al_2O_3 분말의 크기는 $0.16 \mu m$ 에서 $0.3 \mu m$ 으로, Taimicron industries에서 구입하였다. 12H sialon polytypoid 분말은 Novel Technologies에서 구입하였다. 3 wt.% Y_2O_3 분말을 polytypoid 분말의 소결 첨가제로 사용하였다. 구입한 각 조성의 분말을 이소프로

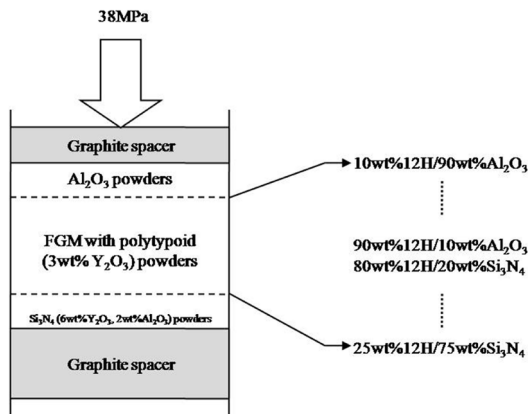


Fig. 3. Experimental setup used for the fabrication of the Si_3N_4 - Al_2O_3 joints using polytypoid functional gradient (Schematic of FGM with total of 15 layers).

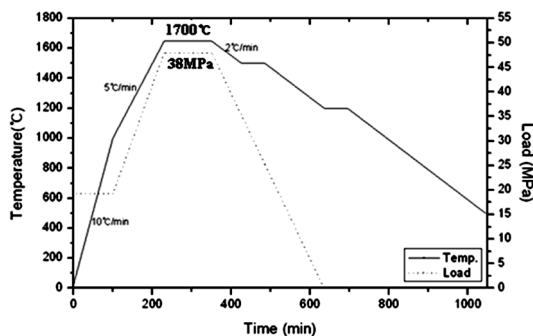


Fig. 4. Temperature and loading profile of hot press during sintering.

판용 용매에 넣어 혼합하였다. 초음파 분산기를 이용하여 분말이 응집되지 않도록 고루 분산시킨 후에 분말들을 건조시키고 체질하여, 차례대로 한 층씩 쌓았다. 성형체(Green body)는 상온 프레스를 이용하여 원통형으로 성형되었다. 이렇게 준비된 성형체를 Figure 3과 같이 탄소 호일로 보호하여 탄소 몰드에 넣었다. Si_3N_4 의 분해를 막기 위해 질소 가스로 소결 분위기를 조성하고, Figure 4의 온도 곡선대로 hot press 소결을 진행하였다. 최고 하중은 38 MPa, 최고 온도는 $1700^\circ C$ 이고, 냉각 시 잔류 응력을 최소화 하기 위해 $2^\circ C/min$ 의 속도로 노냉하였다. 시편의 단면에서 파손 위치를 파악하기 위해 절단 및 연마를 하고 광학 현미경으로 단면 표면을 관찰 하였다.

3.2 열 잔류 응력 계산

열 잔류응력은 상용 유한요소 프로그램인 ANSYS version 11를 이용하여 계산하였다. 해석에 사용된 각 재료의 순수 물성은 Table 1과 같으며, Table 2은 실험에 이용된 경사기능재료의 각 층 조성과 분말 무게를 나타내고 있다

Table 1. Physical Constants for the materials used for numerical analysis

	Si_3N_4	Polytypoid	Al_2O_3
Elastic Modulus E [MPa]	3.30E+5	2.90E+5	3.90E+5
C. of Thermal Expansion α [$10^{-6} / ^\circ C$]	3.9	5.6	8.08
Poisson's Ratio ν	0.22	0.22	0.22
Tensile Strength [MPa]	800*	366**	300**

* ref. ⁹⁾, ** ref.¹⁰⁾, *** ref.¹¹⁾

Table 2. Weight of each layer used design new composition profile of crack free joint in the numerical analysis

Layer No.	Composition	Weight of each layer (g)
1	Si_3N_4 100%	2.0
2	Si_3N_4 75% / polytypoid 25%	2.0
3	Si_3N_4 50% / polytypoid 50%	2.0
4	Si_3N_4 25% / polytypoid 75%	2.0
5	Si_3N_4 20% / polytypoid 80%	2.0
6	Al_2O_3 10% / polytypoid 90%	1.0
7	Al_2O_3 20% / polytypoid 80%	1.0
8	Al_2O_3 30% / polytypoid 70%	1.0
9	Al_2O_3 40% / polytypoid 60%	1.0
10	Al_2O_3 50% / polytypoid 50%	1.0
11	Al_2O_3 60% / polytypoid 40%	1.0
12	Al_2O_3 70% / polytypoid 30%	1.0
13	Al_2O_3 80% / polytypoid 20%	1.0
14	Al_2O_3 90% / polytypoid 10%	1.0
15	Al_2O_3 100%	1.0

. 수치해석에 사용된 기능경사(구배)된 층의 탄성계수와 열팽창 계수는 선형 혼합 법칙인 식 (2)와 식 (3)에 의해 계산되었다.

$$E_c = V_1E_1 + V_2E_2 \tag{2}$$

$$\alpha_c = V_1\alpha_1 + V_2\alpha_2 \tag{3}$$

여기서, E_c 와 α_c 는 각각 혼합물의 탄성 계수와 열팽창 계수를 나타낸다. 그리고, V_1 와 V_2 는 각각 상 1과 상 2의 부피 비를 나타내며, $V_1+V_2=1$ 이라는 조건을 만족시킨다.

잔류 응력은 소결 온도 1700°C에서 25°C까지 냉각되는 동안 생성되는 것으로 가정하였다. 즉, 1675°C만큼의 온도 차이가 열 잔류응력 계산에 열 하중으로 적용된 것이다.

기계적 하중을 받지 않는 등방성 재료로 열팽창 계수가 α 이고 온도가 Δt 만큼 균일하게 상승할 경우에 대한 열응력은 다음과 같은 식으로 표현된다.

$$\sigma = \underline{D} \underline{\epsilon}_T = [D]\{\alpha\Delta T\} \tag{4}$$

$$\{\epsilon_T\} = \begin{Bmatrix} \epsilon_{xT} \\ \epsilon_{yT} \\ \epsilon_{zT} \\ \gamma_{xyT} \\ \gamma_{yzT} \\ \gamma_{zxT} \end{Bmatrix} = \{\alpha\Delta T\} = \begin{Bmatrix} \alpha\Delta T \\ \alpha\Delta T \\ \alpha\Delta T \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{Bmatrix} \tag{5}$$

$$[D] = \frac{E}{(1+\nu)(1-2\nu)} \begin{bmatrix} 1-\nu & \nu & \nu & 0 & 0 & 0 \\ \nu & 1-\nu & \nu & 0 & 0 & 0 \\ \nu & \nu & 1-\nu & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1-2\nu}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1-2\nu}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1-2\nu}{2} \end{bmatrix} \tag{6}$$

여기서 $\underline{\epsilon}_T$ 는 열 변형률 행렬로 3차원에서는 식 (5)와 같이 표현된다. 그리고 \underline{D} 는 응력-변형률 관계 또는 재료 구성행렬로 불리며 3차원 등방성 재료에서는 식 (6)과 같이 표현된다. 여기서 ν 는 프와송 비를 의미한다. 해석은 탄성영역에서 정적 해석으로 수행되었다.

4. 결과 및 고찰

실험을 토대로 제작된 $Si_3N_4-Al_2O_3$ 기능경사재료 접합의 현미경 사진을 Figure 5에 나타내었다. Figure 5에서 보이는 바와 같이, 크랙은 90% 12H/10% Al_2O_3 층에서부터 90% 12H/10% Si_3N_4 층 사이에 존재한다. 접합 단면에 각 층의 조성이 명시되어 있다. 이를 통해 90% 12H/10% Al_2O_3 층과 90% 12H/10% Si_3N_4 층 사이에서 효과적으로 응력을 해소하지 못하고 크랙이 발생된 것을 알 수 있었다.

이 지점에서 발생하는 잔류 응력을 최소화하기 위해 유한요소법을 통해 임계강도를 넘지않는 응력을 가지도록 설계하였다. Table 2는 최적화 설계된 15층의 조성을 나타낸다. 최대 인장 응력 이론에 근거하여 ANSYS 로 계산된 Table 2의 조성을 가지는 기능경사재료의 축, 후프, 방사 응력과 임계 인장 강도를 비교하여 Fig. 6의 그래프로 나타내었다. 분석 결과, 모든 층에서 계산된 응력이 임계 강도의 값에 미치지 못한 것을 알 수 있다. 특히 Fig. 5의 시편에서 크랙이 발생되었던 10% Al_2O_3 /90% 12H 층 부근의 축 응력 값이 Table 2의 조성을 가질 때에는 인장 강도보다 작은 325 MPa을 가짐으로써, 잔류응력을 성공적으로 줄일 수 있다는 것을 알 수 있다. 이러한 잔류 응력 계산이 실험적으로 제작된 기능경사재료 시편과 일치하는 것으로 보아 수치 계산으로 기능경사재료의 파괴를 예측하여 크랙 없는 15층의 기능경사재료 시편을 제작할 수 있다는 것을 보여준다. Fig. 7은 수치계산을 이용하여 설계된 Table 2의 조성으로 이루어진 15층

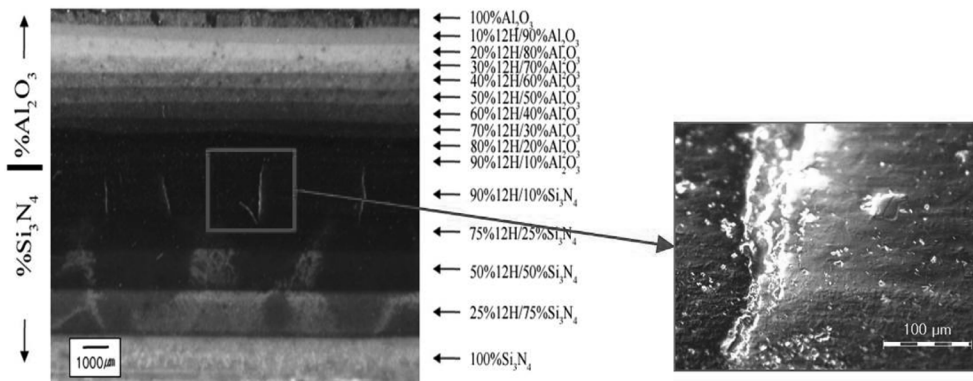


Fig. 5. Cross section of 15-layer $Si_3N_4-Al_2O_3$ FGM using optical micrograph. Right picture shows magnified view of cracks at higher magnification.¹²⁾

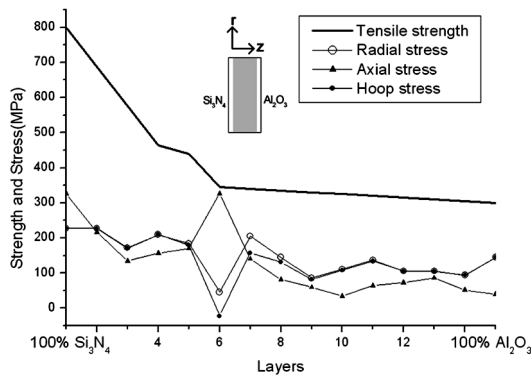


Fig. 6. Comparison of the computed axial, hoop and radial stresses with critical failure strength for new composition profile calculated by the numerical analysis method (Maximum tensile stress theory).

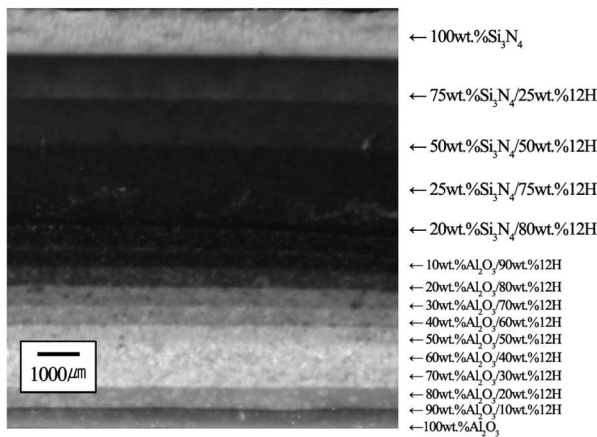


Fig. 7. Final FGM joint between Al_2O_3 and Si_3N_4 with 15 gradient layers.

의 크랙이 없는 $Si_3N_4-Al_2O_3$ 기능경사재료 시편을 보여 준다. 그러므로 수치계산을 통한 기능 경사재료의 파괴 예측과 예방이 가능하다는 것을 실험적으로 증명하였다.

5. 결 론

폴리타이포이드 기능경사 방식을 이용한 $Si_3N_4-Al_2O_3$ 기능경사재료의 적층 수를 서로 다른 두께를 가진 15층으로 접합하였다. 기능경사재료에서 경감되지 못한 잔류응력을 가지는 90% 12H / 10% Al_2O_3 층에서 90% 12H / 10% Si_3N_4 층까지 크랙이 발생하였다.

15층을 가지는 기능경사재료 시편의 잔류 응력을 계산하여 시편내의 응력 분포를 예상하기 위해 유한요소법을 통해 잔류응력을 계산함으로써 크랙이 없는 15층의 경사재료 접합을 설계하였다. 특히 크랙이 생긴 부분의 잔

류 응력값을 최소화하여 인장 강도보다 적은 값을 갖도록 설계하였다. 그 결과, sialon polytypoid를 기능경사재료의 접합 층으로 이용한 Si_3N_4 와 Al_2O_3 의 접합을 15개 층으로 크랙없이 성공하였다. 열 응력 해석을 통해 시편의 크랙을 예측하고 예방 할 수 있다는 것을 실험적으로 증명하였다. 이러한 분석은 잔류 응력에 대한 측정 실험이 매우 까다로운 기능경사재료 시편에 특히 유용하다.

향후 연구과제로, 크랙 없이 접합을 성공한 기능경사재료의 계면 특성 평가를 위해 Vickers indentation 분석이 예정되어 있다. 또한 기능경사재료의 상온 및 고온 기계강도 테스트와 기능경사재료를 이용한 금속과 Si_3N_4 의 접합을 진행 할 것이다.

감사의 글

본 연구는 한국학술진흥재단의 기초 과학 연구 사업 (KRF-2007-311-D00516)과 한양대학교의 Brain Korea 21의 지원으로 수행되었습니다. 또한 고온 압축 소결로를 지원해주신 한양대학교 심성보교수님과 조철구 박사님께 감사 드립니다.

참 고 문 헌

1. M. Koizumi and M. Niino, Mater. Res. Bull., **20**, 19 (1995).
2. R. W. Messler, Jr. M. Jou and T. T. Orling, Welding Journal, **74**, 160 (1995).
3. C. S. Lee, X. Zhang and G. Thomas, Acta Mater., **49**, 3775 (2001).
4. C. S. Lee, S. H. Ahn, L. C. De Jonghe and G. Thomas, Mat. Sci. Eng. A., **434**, 160 (2006).
5. K. H. Jack, Mater. Res. Bull., **13**, 1327 (1978).
6. K. M. Krishnan, R. S. Rai, G. Thomas, N. D. Corbin and J. W. Mc Cauley, Mater. Res. Soc. Symp. Proc., **60**, 211 (1986).
7. Van Tendeloo, G., Faber, K. T. and Thomas, G., J. Mater. Sci., **18**, 525 (1983).
8. S. H. Ryu, J. H. Park, C. S. Lee, J. C. Lee, S. H. Ahn, J. H. Chae, D. H. Riu, in Proceedings of International Conference on Multifunctional Materials and Structures (Hong Kong, July 2008). Ed. Alan K. T. Lau, J. Lu, Vijay K. Varadan, F. K. Chang, J. P. Tu, P. M. Lam (Advanced Materials Research, Switzerland, UK, USA, 2008) p. 494.
9. B. J. Choi, Y. H. Koh and H.E. Kim, J. Am. Ceram. Soc., **81**, 2725 (1998).
10. P. L. Wang, W. Y. Sun and D. S. Yan, Mat. Sci. Eng. A., **272**, 351 (1999).
11. MatWeb Home Page, Retrieved November 1, 2007 from <http://www.matweb.com>.
12. J. C. Lee, J. H. Park, S. H. Ryu, H. J. Hong, D. H. Riu, S. H. Ahn and C. S. Lee, Mat. Trans., **49**, 829 (2008).