

정밀기계용 Sintered RBSN 소재 개발

글 박영조, 김해두

한국기계연구원부설 재료연구소 엔지니어링세라믹연구그룹

1. 서언

“고효율·대량·저비용 생산”에 대한 요구로부터 각종 기계의 발달이 가속화되어 왔고, 그 과정에서 기계의 고성능화를 위한 설계와 이를 구현하기 위한 소재의 발전이 동시에 이루어지고 있다. 정밀기계용 구조세라믹스를 용도별로 구분하면 첫째, 기계를 구성하는 부품용으로 사용되는 것과 둘째, 기계 또는 소재를 가공하기 위한 공구재 등의 두 가지로 대별할 수 있다¹⁾. 당연한 추세로 고성능의 기계를 구현하기 위하여 부품은 점점 더 가혹한 환경에서의 운전에 견딜 수 있어야 한다. 또한, 소재의 발달에 의해 피가공재의 물성 규격이 향상되고 있기 때문에, 이의 가공을 위한 공구재의 개선도 꾸준히 요구되어지고 있다. 구조세라믹스는 상온·고온 강도, 경도, 내열충격성, 내마모성 및 내식성이 탁월하기 때문에, 상기와 같은 특성이 요구되는 각종 기계 부품 및 가공재의 소재로 활용이 기대되고 일부 실현되었다. 본고에서는 정밀기계산업용으로써 현재에도 실용화 실적이 우수하고 성능과 가격경쟁력을 고려하여 미래소재로서도 각광 받고 있는 “반응소결질화규소 세라믹스(SRBSN: Sintered Reaction-Bonded Silicon Nitride Ceramics)”에 관한 연구개발에 대해 기술하고자 한다.

2. 정밀기계용 구조세라믹스의 활용

2.1. 분류 및 현장적용의 예

정밀기계용 구조세라믹스는 파인세라믹스가 전통세라믹스와 구분되어 연구개발, 생산되기 시작한 1960년대부터 구조세라믹스의 대표적인 응용분야로 자리매김하고

있다. 이 분야는 원래 모든 기계부품을 통칭하는 의미였으나 1980년대 이후 자동차용, 에너지용, 항공우주용 등과 최근의 반도체·디스플레이용과 관련된 몇몇 세부분야가 급속히 팽창하면서 이들을 제외한 기계부품 분야를 가리키는 것으로 의미가 축소 수정되어 사용되고 있다.

전술한바와 같이 정밀기계용 구조세라믹스는 절삭공구와 기계부품으로 구분할 수 있는데, 이것은 국내외 시장에서 절삭공구가 차지하는 비중이 매우 크기 때문이다²⁻⁴⁾.

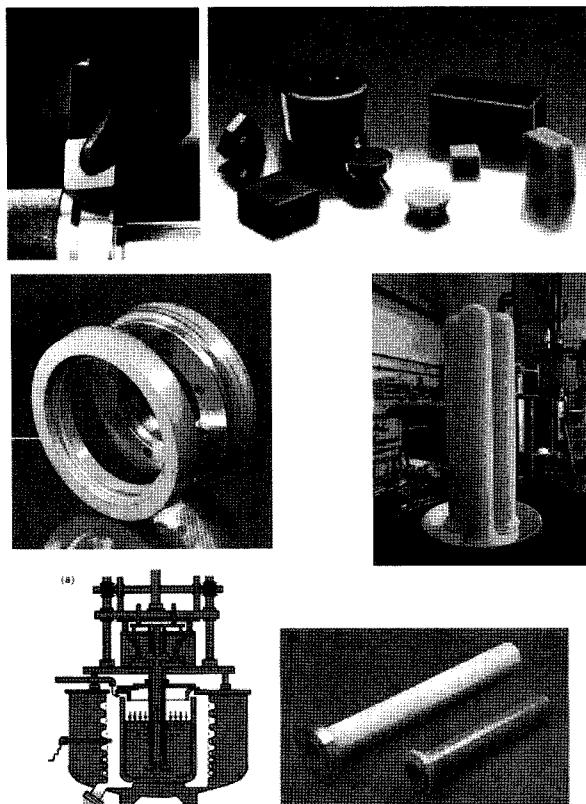


Fig. 1. 질화구소, Sialon 세라믹스의 각종 응용 예: 절삭공구, 대형 롤러, 대형 Riser Tube, Stalk Tube.

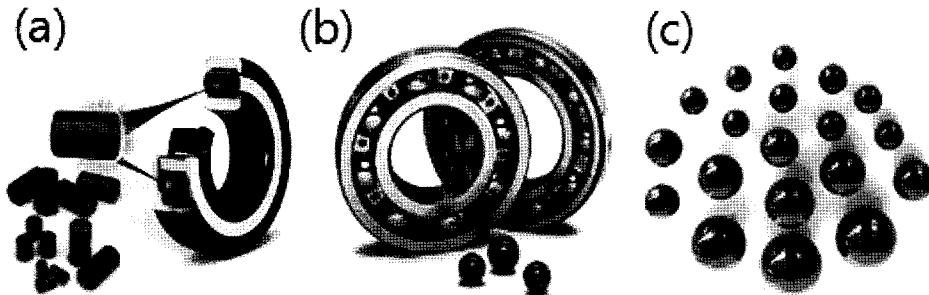


Fig. 2. Ceradyne, Inc.(Costa Mesa, California, US)에서 생산하는 질화규소 베어링 및 밸브 부품. (a) Rolling 베어링용 Roller, (b) 볼 베어링, (c) Check Valve용 볼.

절삭공구를 제외한 내마모성의 기계부품으로는 베어링 볼과 바디, 베어링 Roller 등 베어링 부품, 사도(thread guide) 등 섬유기계 부품, 씰(seal), 노즐 등 밸브/펌프 부품, 기타 벌목/제지/식품 기계용 내마모 부품 등이 있다^{2,5-7)}.

(Figs. 1, 2)는 현재 실용화되어 산업현장에 적용되고 있는 정밀기계용 질화규소 세라믹스의 예를 나타낸다.

2.2. 대표적인 정밀기계용 구조세라믹 소재 : 질화규소 세라믹스

고온/고부하 등의 극한 환경에서 안정적인 성능을 발휘하는 것이 요구되는 정밀기계용 구조세라믹스에 대한 연구는, 특히 고강도/고인성/내마모 특성의 향상에 중점을 두고 진행되어왔다. 사용 분말의 고순도화 및 미세화와 공정개발에 의해 현재는 소재특성 면에서 상당한 업그레이드가 이루어져, 물성만을 고려한 규격은 이미 달성된 소재도 다수 존재한다. 이를 소재의 활용에 의해 산업현장에서 획기적인 생산성 향상이 실증되고 있으며, 이의 가장 대표적인 소재인 질화규소 세라믹스의 실적은 눈부실 정도라고 할 수 있다(Table 1.) 그러나 요구되어

지는 소재특성을 이미 달성한 소재의 개발에도 불구하고 현실적으로는 실용화가 상당히 제한되고 있는 것은 이들 세라믹 부품의 고단가에 크게 기인한다.

3. 정밀기계용 구조세라믹스의 연구 현황

적용분야에 따라 차이는 있지만 절삭공구와 기타 내마모 부품 모두 더 높은 강도와 파괴인성을 얻는 방향으로 개발되어 왔다. 강도는 균열(Crack) 형성에 대한 저항력으로, 파괴인성은 균열 전파에 대한 저항력으로, Weibull 계수는 강도의 균일성(Uniformity)으로 유추할 수 있다. 세 가지 특성치 모두 본격적인 연구가 시작된 1960년대 이후 2~3배 정도로 향상되었는데, 이러한 발전 덕분에 현재 질화규소와 지르코니아는 적어도 주철보다는 높은 파괴인성을 지니게 되었고(Fig. 3), 보다 다양한 분야에서 활용되고 있다.

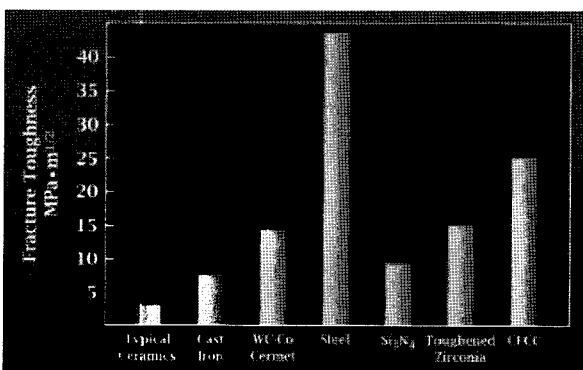


Fig. 3. 구조세라믹스의 기계적 특성치 비교¹⁴⁾



3.1. 국외 연구 현황

미국의 경우, 1994년부터 5개년에 걸쳐 반응소결 질화 규소에 대한 대형 과제를 NIST(National Institute of Standard and Technology) 지원 하에 ORNL(Oak Ridge National Lab.)과 6개의 기업이 공동으로 추진하여 상업화를 위한 토대가 되는 성과를 거두었다. 한편, 캘리포니아에 소재한 Ceradyne사는 소재특성 및 가격경쟁력을 재고하여 반응소결 질화규소 관련으로 ball, 절삭공구, metal forming tool 등의 부품을 생산 판매하고 있는 대표적인 기업이다. 반응소결체를 후소결 할 때의 수축율은 5-10% 정도로써, 일반적으로 분말 성형체를 소결할 때의 수축율인 15-30% 보다 현저히 작으므로 소결 후 가공에서 유리한 장점이 있으며, batch 생산의 양태를 따르는 비산화물의 소결 공정에서 생산성을 향상시키는 장점도 있다. 통상적인 소결법과 확연히 차이가 나는 우수한 특징으로는 첫째, 성형체와 소결체간의 치수 변화가 영에 가까운 near-net shape의 소결체를 얻을 수 있다는 것과, 둘째, 고가인 질화규소 분말을 대신하여 염가인 규소분말을 출발원료로 사용함으로써 가격경쟁력이 우수하다는 것을 지적할 수 있다. 한편, ORNL의 Dr. Paul Becher가 소속된 세라믹스 그룹은, 질화규소 관련 연구의 세계적 Core Group으로 인정받고 있는데, 주로 강도 및 인성의 향상을 위한 Bimodal 미세구조의 제어와 파괴거동 해석에 관한 연구를 수행해 오고 있다. 동 그룹에서는 최근 입자와 입계상의 계면구조를 원자 수준에서 규명하여 학회지에 발표함으로써 미세구조와 소재특성의 상관관계를 궁극적 수준에서 추구할 수 있는 가능성 을 제시한 바 있다¹⁵⁾.

일본의 경우, 질화규소 관련의 연구기관 및 기업은 전 세계적으로 가장 우수한 수준에 도달해 있는 것으로 인정되고 있다. 이를 상징적으로 예시하는 것이, 일반적인 소결법의 출발원료가 되는 고순도 질화규소 분말은 Ube 사의 제품이 세계시장을 석권하고 있는 상황이다. 전체적인 연구의 방향은, 종래에는 가스터빈 관련 연구로 대변되는 고강도/고인성화를 위한 전통적 소결법(가압소결, 가스압소결)을 위주로 하여 진행되어 왔으나, 시너지 세라믹스 프로그램에서는 기공배열에 의한 강도유지가 가

Table 2. 국외의 질화규소 세라믹스 관련 연구 현황

구분	기술명	개발단계	개발내용	개발주체
원료 분말	고순도/ 미분말화	상용화	<ul style="list-style-type: none"> 결정화율 >99.5% 입자크기 서브마이크론에서 수 마이크론 알파상 >95% 	우베 (일본)
	고열전도도	상용화	<ul style="list-style-type: none"> 열전도 70 W/mK (알루미나의 4배) 3점 강도 700 MPa 	DKK (일본)
벌크 소결	고강도/ 고인성/ 내마모	상용화	<ul style="list-style-type: none"> 가압소결 입자크기 <4μm 4점 강도 806 MPa 	생고뱅 (프랑스)
		상용화	<ul style="list-style-type: none"> 가스압소결 강도 700 MPa 인성 7 MPam^{1/2} 용융금속공정 	세라다인 (미국)
	반응소결	상용화	<ul style="list-style-type: none"> 경도 Hv 1500 3점 강도 900 MPa 인성 6.5 7 MPam^{1/2} 고온 하 고부하능 유지 	토시바 (일본)
		상용화	<ul style="list-style-type: none"> 강도 700 MPa 인성 6 MPam^{1/2} 자동차부품, 배어링 	세라다인 (미국)

능한 경량화 소재 연구와 가격경쟁력을 재고하기 위한 반응소결법의 집중 연구가 수행되어졌다. 이와 관련하여 AIST의 Dr. Hirao를 주축으로 하는 고열전도도 소재 개발과 Yokohama 국립대학의 Prof. Komeya, Prof. Tatami 연구실의 고강도/고인성화 소재 개발이 활발하게 이루어지고 있다.

이상에서 열거한 국외의 질화규소 관련 연구 현황을 Table 2에 정리하였다.

3.2. 국내 연구 현황

일반적인 산화물계 세라믹스와 비교하여 난소결성인 질화규소 세라믹스는 고온에서의 소결이 불가피하여 이에 필요한 장치설비의 대형화/고가화도 수반되어 경제성 면에서 심각한 제약을 받고 있다. 한국기계연구원부설 재료연구소(KIMS)의 엔지니어링세라믹연구그룹에서는, 국가지정연구실(NRL) 사업을 통해 질화규소 소결체 내 입자들의 방향성을 제어함으로써 성능 고도화를 기하는 연구를 수행하여 탁월한 성과를 보고하였다. 즉, 당 연구 그룹에서는 상용의 질화규소 휘스커(길이: 10.5μm, 직경: 0.6μm)를 seed로 사용하고, tape casting 공정을 적절히 변화시킴으로써 seed의 배향성을 향상시킬 수 있다는 것

에 좌안하여 국내와 미국에 공정특허를 출원, 1998년과 1999년 각각 특허 등록되었다. 반응소결 질화규소에 대한 기초연구는 소수의 대학과 정부출연 연구기관에서 수행되었으나, 주로 규소의 질화반응에 초점이 맞추어져 있었다. 반응소결체의 후소결 공정에 의해 치밀화가 가능한 것이 알려진 후, 반응소결 세라믹스의 중요성을 인식한 당 연구그룹은 1993-1994년에는 연구원 기본연구를 수행하였으며, 1994-1998년에는 G7과제의 선도기술 개발사업 중 에너지 절약형 구조용 소재개발로써 “열기관용 반응소결 세라믹스 제조기술 개발”을 수행하였다. 상기의 과제들을 수행하면서

- 1) 반응소결 공정 변수 확립
- 2) 규소의 가압 주입성형 공정 및 gelcasting 공정 연구
- 3) 반응 소결체의 복합재료 개발
- 4) 반응 소결체 후소결 기술 개발
- 5) TCR(Turbo Charger Rotor) 시제품 제작

등에 대하여 연구를 진행하였고, 이와 관련하여 축적된 지식과 노하우는 당 연구그룹을 질화규소 연구의 세계적인 Core Group으로 인정받게 하였다.

현재 국내 질화규소 시장의 경우, 절삭공구와 내마모 부품 등의 시장이 주를 이루고 있으며 매연여과장치용 필터, 베어링, Rocker Arm Tip, Cam Roller 등 부품이 상용화되면 시장이 급속히 확대될 것으로 예상된다. 국내의 세라믹스 산업은 현재 자본력이 약한 중소기업에 의해 상당 부분 유지되고 있으나, 다행히 중소기업의 일

부에서 과거의 저급 소재의 세라믹스 제품 생산을 탈피하고 고부가가치의 고급소재, 즉 질화규소를 위시한 비산화물계 세라믹스 제품의 생산을 시도하고 있다. Table 3에 정리한 데이터는 국내의 구조세라믹 관련 제품개발 현황을 나타낸다.

4. 소재 원천기술 개발사업의 본 연구과제 소개

4.1. 독자적 원천기술의 개발 방향

질화규소 세라믹스의 경우, 강도/인성/내마모 등 요구되는 소재특성의 달성에도 불구하고 금속계의 부품을 대체하는 응용이 제한되고 있는 것은, 앞에서 지적한대로 경쟁 소재와 비교하여 고단가인 것에 기인하는 측면이 크다. 이것은 출발원료인 고순도 질화규소 분말이 일반적으로 고가인 것과, 원하는 소재특성을 구현하기 위한 소결법이 고온/장시간을 요구하는 고에너지 소모공정이기 때문이다. 따라서 이 분야의 선진국에서는 광범위한 실용화를 위하여, 동등 이상의 소재특성을 발휘하는 질화규소 세라믹스를 저온 소결, 단시간 소결, in-situ 방법 등의 저비용 공정으로 개발하기 위하여 연구역량을 집중하고 있다. 본 과제에서는 이의 일환으로 반응소결법을 채택하여 치밀체는 물론 다공성의 질화규소 세라믹스를 연구하고 있다. 또한 입계상(IGP : Interfacial Grain Boundary Phase)의 분율을 줄임으로써 고온 강도 및 내산화성이 향상되는 것으로 알려져 있는 사이알론 세라믹스의 연구개발도 병행하여 수행하고 있다. 이 때, 기계적·열적 특성의 향상에 초점을 맞춘 종래의 연구는 물론 자성 특성을 보유하는 사이알론과 같이 기능이 부여된 신소재의 개발도 수행하고 있다. 한편, 일반적으로 연구의 중점은, 입자의 형상 및 크기 분포 제어에 의한 마이크로 레벨의 미세구조 제어 기술을 기반으로 소재특성을 극대화하는 방향으로 집중되어져 왔으나, 극히 최근에 이르러 분석장비의 발달에 힘입어 STEM(Scanning Transmission Electron Microscopy) 등의 해석방법을 통해 계면에서의 현상을 원자결합 수준에서 규명하는 것이 가능한 것으로 밝혀졌다¹⁵⁾(Fig. 4). 즉, 소결조제로 사용되는 산화물의 종류에 따라 계면의 원자구조가 상이하고,

Table 3. 국내의 구조세라믹 제품개발 현황

구분	기술명	개발단계	개발 내용	개발주체
고강도/ 고인성 고인성 기기 기술	Mechanical Seal 기술	상용화	RBSC, sintered SiC 개발 (100 억원 수출)	한국 셀마스터
	Cutting tool tip 기술	상용화	고인성화 및 DLC Coating 기술	쌍용, 대구텍
다공성 기술	Hot Gas Filter 소재	기술검토	porous한 대형 SiC 개발	
	DPF 소재 기술	상용화	Porous SiC	LG 화학
내마모 기술	ZrO ₂ 내마모 소재	상용화	입성장 억제, 치밀화 기술, 복합형상 성형 기술	BIEMT
	내마모 소재기술	기술검토	표면에 carbon이 있는 SiC 개발	
	베어링기술	상용화	세라믹스 베어링 및 세라믹스 볼, 로봇 베어링	SBB사, 코페코, FAG

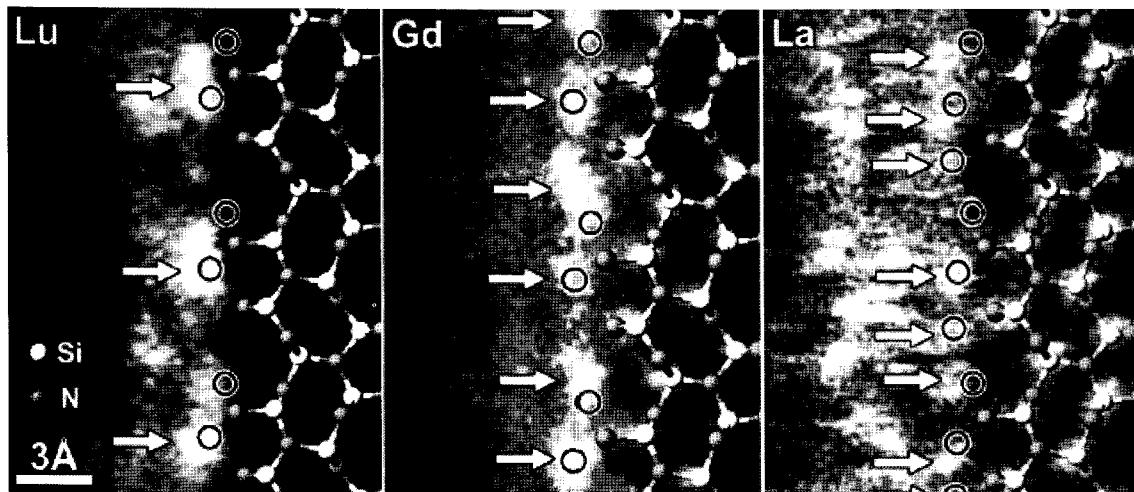


Fig. 4. 질화규소 세라믹스 계면의 원자 레벨 구조 해석.

이에 의해 입계상의 조성과 두께, 입자의 형상 및 크기가 영향받는 것이다. 이러한 발견을 반응소결질화규소에서도 구현시켜 보다 실용화에 접근한 성과를 얻기 위해, $\text{Lu}_2\text{O}_3(\text{La}_2\text{O}_3)$ - MgO , $\text{Lu}_2\text{O}_3(\text{La}_2\text{O}_3)$ - SiO_2 등의 소결조제 시스템에 대한 연구를 진행하고 있다.

상기 분야의 연구는 현재 세계적으로는 소수의 연구집단에 의해서만 수행되어지고 있는 첨단의 영역이라고 할 수 있고, 따라서 관련된 분야의 선점을 위하여 더 이상 지체될 수 없는 시급성을 요구한다. 체계적인 연구수행으로 비교우위의 소재특성을 구현한 원천소재를 개발하고, 나아가서 실용화 기술을 선점하여 관련 소재의 국산화 및 수출에 성공함으로써, 선진국과 중진국 사이에서 협공당하는 샌드위치 상태의 국가기술 위기를 타개하는 돌파구를 제공할 수 있다고 기대된다.

4.2. 주요 연구 내용

• 강화 Sintered RBSN

새로운 소결조제 시스템($\text{Lu}-\text{Mg}$ 계, $\text{Lu}-\text{Si}$ 계)을 사용하여 질화조건, 후소결 조건 및 Seed 입자크기별 미세구조 평가를 수행한다. 이 경우, 침상형 입자와 기지상 간의 계면구조를 HRTEM을 통해 평가하여 새로운 소결조제 원소가 계면 내에 어떠한 상태로 결합되어 있는지 분석하여 기계적 특성과 연계하여 분석한다.

• α/β -SiAlON 소재개발

α -sialon은 경도가 높은 장점이 있으며 β -sialon은 인성이 높은 장점이 있는바, α/β -sialon 복합체의 상비, 치밀화 등을 제어하여 고강도/고인성 세라믹 소재를 제조하고자 한다. 이 경우 입자와 액상 간의 계면 제어가 치밀화의 핵심변수이며, 액상의 양 및 종류 등에 따른 치밀화 거동을 제어하는 것은 계면을 제어하는 기술과 동일하다.

Sialon 세라믹의 경도를 증진하기 위한 SiC 복합화, 파괴인성을 증진하기 위해 입자종횡비 제어 등에 관한 실험을 수행 중에 있다.

• 자성 보유 SiAlON 소재개발

희토류 이온 등이 침입형으로 고정된 α -sialon은 자성을 보유하는 것으로 알려져 있는데, 철(Fe) 성분을 추가로 첨가하여 철규화물을 생성시킴으로 사이알론의 자성 특성을 향상시킬 수 있다.

• 다공성 세라믹스

질화규소 또는 사이알론의 입자크기 제어는 기공크기와 직결되므로 포집율이 우수하면서 배압이 낮은 필터 소재를 개발하는데 필수적이다. 입자성장과 수축을 제어는 상호 trade-off 경향을 나타내므로 이의 최적화가 필요하다. 한편, 천연원료인 섬토를 주원료로 사용하여 열탄화/질화반응(CRN : Carbothermal Reduction and

Nitridation)을 통해 수축율이 제로에 가까운 실형상 다공체를 제조하고자 한다. Kyanite는 열분해에 의해 상변태가 발생하며 이 과정에서 부피팽창이 수반되기 때문에, 소결 시 발생하는 수축율과 상쇄되어 소결체는 성형체 상태의 외형을 유지한다.

5. 결언

우리나라에서 자동차, 정밀기계, 반도체 및 디스플레이, 항공우주 관련의 산업은 향후 지속적인 성장이 예상되므로, 이들 산업의 장치설비와 소재 가공에 필요불가결한 고강도/고인성/내마모 특성의 정밀기계용 구조세라믹 소재의 시장 규모 또한 이에 상응하는 확대가 예상된다. 여러 특성이 고루 우수한 질화규소 세라믹스의 광범위한 응용을 위해서는 저렴한 가격으로 질화규소 세라믹스를 제조할 수 있어야 하며, 따라서 저가의 실리콘 분말로 출발하여 반응소결법으로 제조한 Sintered Reaction-Bonded Silicon Nitride 혹은 Sintered Reaction Bonded Sialon 제조 공정 개발이 매우 중요하다고 할 수 있다.

감사의 글

본 기술 보고서는 지식경제부 소재원천기술개발사업의 지원으로 이루어졌으며 이에 감사드립니다.

참고문헌

1. 김해두 외, “목포 세라믹 센터 기획보고서”, 엔지니어링세라믹부회 (2009).
2. 김기일, 조경식, 박영서, “구조세라믹스”, 기술산업정보분석, KISTI 심층정보분석보고서 (2003).
3. 장재훈, “내마모 세라믹 소재 세라믹 절삭 공구”, 포항산업과학연구원 보고서 (2006).
4. 월간 메탈넷코리아 (<http://www.metalnet.co.kr>), “국내 공구산업의 현황과 전망”, 2007년 2월호, “국내 공작기계산업의 현황과 전망”, 2007년 7월호.
5. 한병동, 박동수, “세라믹스의 마모, 마찰 및 응용”, 기계와 재료 10권 2호 (1998).

6. “Engineering Ceramics Market Outlook”, Ceramic Bulletin, p. 16-17, Nov. 2003.
7. A. Okada, “Automotive and industrial applications of structural ceramics in Japan”, J. Eur. Ceram. Soc., v. 28, p. 1097-104 (2008).
8. Ceramic Source '89
9. M. Savitz, Am. Ceram. Soc. Bull., 78(3), 52 (1999).
10. Ceramic Guide Roller Brochure, Shinagawa Refractories Co., Ltd.
11. Guide Ceram Brochure, NGK Co., Ltd.
12. M. Ota, T. Itaya, M. Mori, 機械と工具, 70 (1988)
13. N. Akio, “切削工具・治工具への應用,” New Ceramics, 2[4], 63 (1989)
14. D. W. Richerson, D. W. Freitag, Chapter 2 in “Ceramic Industry in Opportunities for Advanced Ceramics to Meet the Needs of the Industries of the Future”, U.S. Advanced Ceramics Association and Oak Ridge National Laboratory (DOE) (1998).
15. P. F. Becher, G. S. Painter, N. Shibata, R. L. Satet, M. J. Hoffmann and S. J. Pennycook, Mater. Sci. Eng. A, 422[1-2] 85 (2006)

●● 박영조



- 1994년 서울대학교 무기재료공학과 학사 졸업
- 1996년 서울대학교 무기재료공학과 석사 졸업
- 2000년 동경대학교 재료학과 박사 졸업
- 2001년-2003년 Oak Ridge National Lab. (USA), Post-doc
- 2003년-현재 한국기계연구원부설 재료연구소 선임연구원

●● 김해두



- 1979년 연세대학교 요업공학과 학사 졸업
- 1980년 영국 Sheffield 대학 요업공학과 석사 졸업
- 1983년 연세대학교 요업공학과 박사과정 이수
- 1987년 독일 Aachen 공대 박사 졸업
- 1997년-1998년 미국 ORNL, 객원연구원
- 1988년-현재 한국기계연구원부설 재료연구소 책임연구원