

소결탄화규소의 완속균열성장 및 수명예측에 관한 연구

한원식 · 김영욱 · 이상호* · 장김용* · 이준근

한국과학기술원 재료공학부

* 쌍용중앙연구소

(1985년 6월 4일 접수)

A Study on the Subcritical Crack Growth and the Life Prediction for Sintered Silicon Carbide

Won-Sic Hahn, Young-Wook Kim, Sang-Ho Lee*,
Kam-Yong Jang* and June-Gunn Lee

Division of Material Science and Engineering, KAIST

*Ssangyong Research Center

(Received 4 June, 1985)

ABSTRACT

The subcritical crack growth of sintered SiC is investigated under various corrosive atmospheres such as distilled water, Murakami solution and saturated KOH solution. The K_I - V diagrams are obtained by the load relaxation method and incremental displacement rate method using the double torsion technique.

The obtained fracture mechanics parameters (n) of sintered SiC are 79 in Murakami solution and 39 in saturated KOH solution. These data indicate that the subcritical crack growth of sintered SiC is taking place in these two conditions, and the stress-corrosion cracking is suggested to be the mechanism. With these K_I - V diagrams, the life of sintered SiC in these conditions is predicted.

1. 서 론

탄화규소의 우수한 내열성, 내마모성, 내식성 및 높은 강도를 이용한 ceramic diesel engine, ceramic gas turbine 등 구조재료(構造材料, structural materials)로의 응용연구가 활발히 진행되고 있다.

그러나, 대부분 ceramic 재료와 마찬가지로 탄화규소가 완속균열성장(緩速龜裂成長, subcritical crack growth)에 의한 시간중속성 취성파괴(時間從屬性·脆性破壞, time dependent brittle fracture) 양상을 나타내는 점이 실용화의 큰 장애요인이 되고 있다. 즉, 응력이 파괴응력보다 훨씬 낮더라도 재료에 존재하는 균열 혹은 결함이 주위분위기와의 응력부식(應力腐蝕, stress

induced corrosion)이나, grain boundary sliding에 의해 서서히 성장하여 결국 어떤 임계응력(臨界應力, critical stress)에 도달한 후 급격한 파괴를 일으키게 되는 것이다. 이러한 지발성파괴(遲發性破壞, delayed fracture)는 전혀 예고없이 발생하므로 설계 응용에 앞서 이에 대한 충분한 조사가 되어야 할 것이다.

균열첨단부분에서의 응력과 응력확대계수(應力擴大係數, stress intensity factor, K_I)의 관계는 일반적으로

$$K_I = \sigma Y \sqrt{a} \dots \dots \dots (1)$$

로 나타난다¹⁾. 여기서 σ 는 균열 끝부분의 응력, Y 는 시편 및 균열의 형상과 크기에 의존하는 인자, a 는 균열길이를 각각 의미한다.

이 K_I 값의 증가에 따른 균열의 성장속도를 조사해 보면 일반적으로 Fig. 1과 같은 곡선이 나타나게 된다²⁾. 이 그림에서 보면 균열성장속도는 크게 3개 영역으로 나눌 수가 있는데, 각 영역의 균열성장 양상은 다음

* Instron Model 1127

** 1. Murakami solution: $\text{NaOH} + \text{K}_2(\text{Fe}(\text{CN})_6) + \text{H}_2\text{O}$

2. Saturated KOH solution

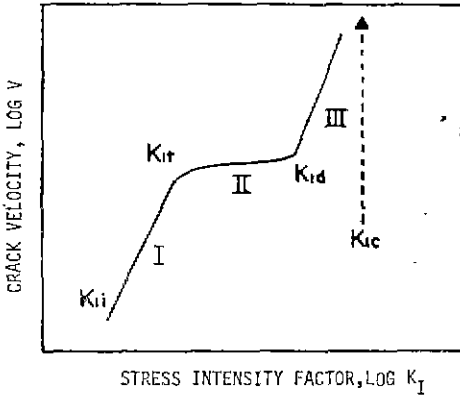


Fig. 1. Schematic representation of the relation between stress intensity factor, K_I and crack velocity, V during the crack growth⁽²⁾.

과 같다.

영역 I : 주어진 응력이 비교적 낮아서 균열침탄부분에서의 화학반응이 그 율속단계(率速段階, rate controlling step)인 영역이며, 균열성장속도 V 는 다음과 같이 나타낸다.

$$V = A \cdot K_I^n \dots\dots\dots (2)$$

(A, n 은 상수)

영역 II : 부식종(腐蝕種, corrosive species)의 확산이 율속단계인 영역으로써 균열성장 속도가 다음 식과 같이 일정한 영역이다.

$$V = A' \dots\dots\dots (3)$$

(A' 는 상수)

영역 III : K_I 값이 임계응력확대계수(臨界應力擴大係數, critical stress intensity factor, K_{IC})에 가까운 영역으로써, 균열성장속도가 급격히 증가하여 곧 파괴에 도달하는 영역이다.

$$V = A' K_I^{n'} \dots\dots\dots (4)$$

(A', n' 는 상수)

이 K_I - V curve 를 적분하면 다음 식과 같이 시편의 수명이 구해지게 된다⁽²⁾⁽³⁾.

$$t_f = \frac{2K_{II}^{(2-n)}}{\sigma^2 \cdot Y_0^2 \cdot A(n-2)} \dots\dots\dots (5)$$

즉, 어떤 응력 σ 하에서의 수명은 식 (5)에서 보듯이 파괴역학매개변수 n, A 및 초기응력확대계수 K_{II} 에 의존한다.

이러한 K_I - V diagram 은 수명예측측뿐만 아니라 proof test diagram 작성에도 사용될 수 있다⁽²⁾. Proof

test란 실제지용응력(實際適用應力, service stress)보다 큰 응력을 시편에 가하여 파괴확률이 높은 시편들을 강도분포에서 미리 제거함으로써 생존시편의 파괴확률을 낮추는 방법이다. Proof test를 거친 시편에 대한 최소수명은 K_I - V diagram에서 구한 파괴역학 매개변수들 즉, n 과 $\log A$ 로부터 다음식에 의해 구할 수 있다⁽²⁾.

$$t_{min} = \frac{2 \cdot K_{IC}^{2-n} (\sigma_a / \sigma_p)^{2-n}}{\sigma^2 \cdot Y_0^2 \cdot A(n-2)} \dots\dots\dots (6)$$

본 연구에서는 소결탄화규소가 부식과 응력이 동시에 작용하는 조건하에서 어떠한 양상으로 균열성장이 발생하는가를 double torsion technique를 이용한 K_I - V diagram에서 관찰하였다. 또, 여기서 구한 파괴역학 매개변수로부터 proof test diagram을 작성하고 일정조건하에서 탄화규소구조체의 수명도 예측하였다.

2. 실험방법

2.1 시편준비

사용한 시편은 이론밀도의 95% 이상 소결되고 170 grit diamond wheel로써 연마된 탄화규소 plate ($39 \times 81 \times 2.7$ mm)이다. 균열이 시편의 증상으로 전파하는 것을 돕기 위해 Fig. 2에서 보는 바와 같이 0.3×22 mm의 notch와 $1.35 \times 1.5 \times 81$ mm의 side groove를 가공하였다.

2.2 실험방법

Double torsion 실험은 Instron*에서 시편이 본 실험에 사용된 부식성용액**에 완전히 잠긴 상태에서 행하였다. 실험장치는 Fig. 3과 같은데 하중을 가하는 2점(point)은 직경 3 mm의 chromium steel ball로 하였고, 시편의 지지를 위해 직경 4 mm의 열처리된 원형 stainless steel bar를 장치편편에 부착하였다.

실험중 발생하는 비고유이완(非固有弛緩, extraneous relaxation)을 최소화 하기 위하여 notch가 있는 시편에 notched 시편의 파괴하중 P_C 의 2배로 하중을 가한

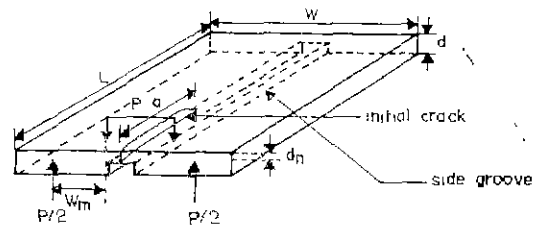


Fig. 2. Schematic representation of double torsion specimen.

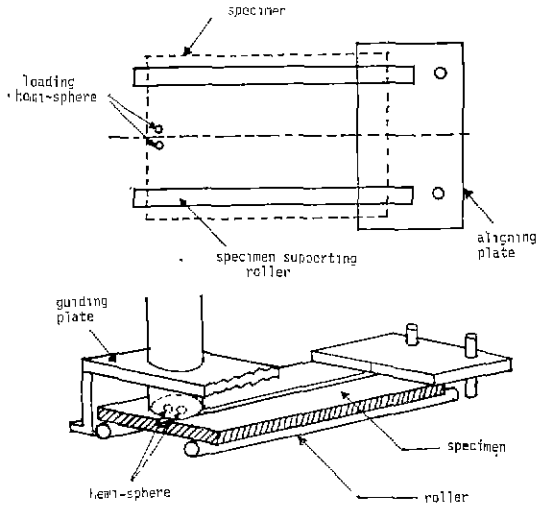


Fig. 3. Schematic representation of DT test system.

후 crosshead를 정지시켜 더 이상의 이완이 발생하지 않을때까지 유지시켰다⁴⁾.

초기균열 (precrack)은 포화 KOH 용액에서 0.0005 mm/min의 변위율로 가공하여 얻었고 이때, groove의 위치는 압축표면이었다⁵⁾.

Double torsion 실험은 하중이완법 (荷重弛緩法, load relaxation method)과 일정변위율법 (一定變位率法, constant displacement rate method)을 사용하였다¹⁾⁶⁾. 하중이완법은 precracked 시편을 0.2 mm/min의 변위율로써 0.95 P_C의 하중까지 가한 후 crosshead를 정지시켜 하중이완곡선을 얻은 후¹⁾ 다항식의귀법 (多項式回歸法, polynomial regression method)으로써 해당되는 함수를 구하였다.

일정변위율법은 각 조건하에서 변위율 0.05, 0.01, 0.005, 0.0005 mm/min로 하여 하중고원 (荷重高原, load plateau)에 형성된 후 파괴가 일어날 때까지 하중을 가하였다¹⁾. 또한, 파괴인성 (破壊靱性, fracture toughness), K_{IC} 값도 Vicker's Indentation 방법과 double torsion 방법으로 각각 비교하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 일정변위율법에 의한 K_I-V diagram

증류수에서의 일정변위율법 실험에서는 각 변위율로 가공도중 하중고원의 형성없이 급격한 파괴가 발생하였으며 각 변위율에서의 정상하중 (peak load)으로부터 구한 K_I-V diagram에서도 K_I, V 값은 전혀 경향성이 없이 분산되었다.

한편 증류수의 경우와는 달리 Murakami 용액과 KOH 포화용액에서는 각 변위율에서의 하중고원이 뚜렷하게 나타났으며, 정상하중이 변위율크기에 비례함을 보였다. 이러한 현상은 위의 두용액내에서 본 시편이 분명한 원속균열성장기에 의한 파괴가 발생하였다는 좋은 증거가 된다. 그 이유는 만일 원속균열성장이 발생하지 않았다면 시편의 파괴가 변위율에 관계없이 급격하게 일어나는 한편, 정상하중이 변위율과는 독립적으로 일정한 값을 갖게되기 때문이다.

위의 두용액에서의 K_I-V diagram을 Fig. 4에 도시하였다. 여기서 나타났듯이 KOH 용액에서는 K_I-V 곡선이 비교적 낮은 값의 K_I 영역에 위치하였고, Murakami 용액의 경우엔 K_I 값이 거의 인체값, K_{IC}에 가까운 영역에 K_I-V 곡선이 나타났다. 이는 KOH 용액에서의 균열성장기가 Murakami 용액에서의 것보다 상대적으로 낮은 K_I 값에서부터 시작되었음을 의미한다. 이러한 사실은 각 K_I-V diagram에서 영역 I의 기울기, n 값을 비교해 볼때 더욱 명백하여 진다. 즉, Murakami 용액에서의 n은 79에 비해 KOH 용액에서는 38을 나타내었는데 이는 KOH 용액의 경우 더 낮은 K_I 값에서 균열성장이 시작된 후 완만한 속도로 진행되고, 이어서 파괴가 일어났음을 잘 보여주고 있다.

3.2 하중이완법에 의한 K_I-V diagram

증류수 및 Murakami 용액내에서의 경우 초기균열이

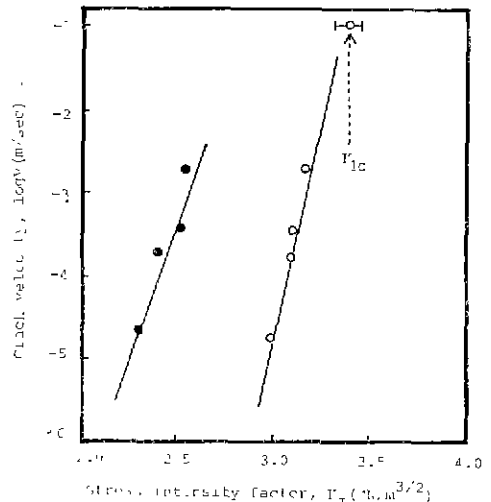


Fig. 4. K_I-V diagram for sintered SiC by incremental method in Murakami solution (○) and in saturated KOH solution (●). (The specific values are presented in Table 2.)

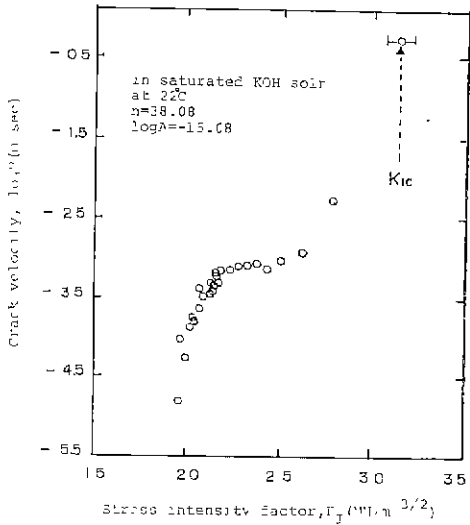


Fig. 5. K_I - V diagram for sintered SiC by load relaxation method in saturated KOH solution.

형성된 시편의 대부분이 편위를 0.2 mm/min의 비교적 빠른 속도로 하중을 가하는 도중에 급격한 파괴가 발생하였다. 탄화규소의 이러한 현상은 McHenry 등에 의해 보고된 바 있다⁷⁾.

KOH 용액에서는 성공적인 하중폭전을 얻을 수 있었는데 이로부터 구한 K_I - V diagram을 Fig. 5에 도시하였다. 여기서 나타났듯이 영역 I의 범위 및 기울기, n 값은 전술된 일정편위율법에 의한 결과와 거의 일치하고 있으며, 영역 II의 존재를 잘 보여주고 있다.

Table. 1. The Ranges of Specific Values.

| Testing medium | range of V (m/sec) | range of K_I ($MN/m^{3/2}$) | test method |
|------------------------|--|---------------------------------|--------------------|
| Saturated KOH Solution | 1.79×10^{-2} -1.63×10^{-5} | 2.796-1.971 | load relaxation |
| | 2.083×10^{-3} -2.45×10^{-5} | 2.555-2.306 | incremental method |
| Murakami solution | 2.07×10^{-3} -1.82×10^{-5} | 3.17 -2.989 | incremental method |

3.3 각 조건에서의 K_I - V diagram에 대한 종합적 고찰

각 실험조건하에서 구한 균열전파속도 및 응력확대계수의 범위를 Table 1에 나타내었다. 일간가압탄화규소의 경우 McHenry는 $10^{-2} \sim 10^{-6}$ m/sec의 범위내에서 균열속도의 측정이 가능하다고 보고했다⁸⁾. 본 실험의 경우 McHenry의 보고보다 다소 높은 값을 나타내고 있

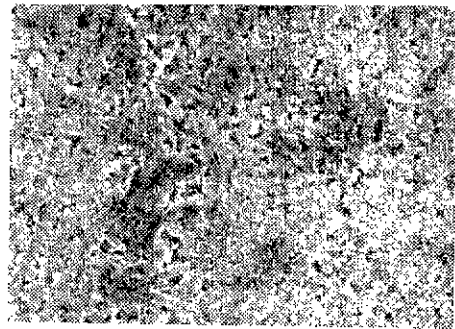


Fig. 6. Microstructure of the sintered SiC (Etched after polishing with 0.25 μ m diamond paste, 2000X)

Table. 2. Comparison of Fracture Mechanics Parameters.

| authors | material | atmosphere | n | log A | test method |
|--------------------------|----------------|----------------------------|-------|---------------|--------------------|
| McHenry ⁽⁸⁾ | hotpressed SiC | toluen, 27 °C | 187 | -1230 | incremental method |
| | | air, 27 °C | 231 | -1528 | |
| | | water, 27 °C | 118 | -781 | |
| Trantina ⁽¹²⁾ | Sintered SiC | air, 1550 °C | 50 | not specified | not specified |
| Present work | Sintered SiC | Murakami Solution, RT | 78.69 | -42.207 | incremental method |
| | | Saturated KOH solution, RT | 38.1 | -15.68 | load relaxation |
| | | Saturated KOH solution, RT | 38.57 | -18.544 | incremental method |

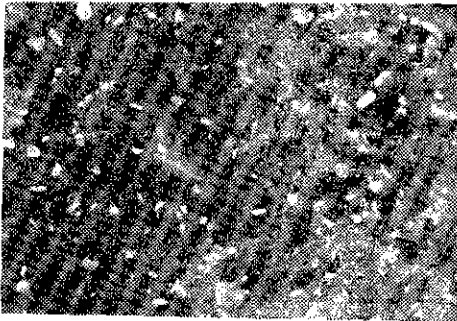


Fig. 7. Scanning electron micrograph of fracture surface observed in DT specimen (2,000 X)

다. 이는 Fig. 6와 같이 본 시편은 결정상(結晶相)의 $\beta \rightarrow \alpha$ 변태로 인하여 불균일 미세구조가 형성되고, 따라서 균열의 진행이 상당한 방해를 받았기 때문으로 생각된다.

각 조건에서 구한 파괴역학개변수, n 과 $\log A$ 값을 Table 2에서 비교하였다. 여기서 보듯 다른 주위조건에 비하여 본 실험조건중 KOH 포화용액에서 상당히 뚜렷한 완속균열성장이 발생하였음을 알 수 있다. 이때의 double torsion 시편의 파면(破面)을 주사전자현미경(SEM)으로 관찰한 것은 Fig. 7과 같은데, 파괴양상은 대부분 입내파괴(transgranular fracture) 형태를 나타내었다. 이것은 입계면에 계 2상이 존재하지 않는 본 시편의 경우, 포화 KOH 용액의 화학적 침해가 입계에 대한 뚜렷한 선호도(preference)가 없이 심한 응력부식현상에 의해 완속균열 성장이 일어났음을 알 수가 있다.

3.4 Proof test diagram.

KOH 포화용액과 Murakami 용액에서의 K_{IC} -V diagram 으로부터 구한 파괴역학개변수, n 및 $\log A$ 값을 토대로, proof test를 거친 시편의 최소수명, t_{min} 과 $\log(\sigma_p/\sigma_a)$ 의 관계를 Fig. 8, 9에 도식하였다. 이때 식 (6)에서의 Y_0 값은 $\sqrt{\pi}^{(3)}$, K_{IC} 값은 각 미세체내에서 double torsion 실험에 의해 구해진 값을 각각 대입하였다. 이 proof test diagram을 이용한 수명예측의 한 예를 살펴보면, 소결탄화규소 구조체가 본 실험과 같은 부식분위기에서 10^3 MN/m^2 의 응력을 지속적으로 받고서도 1년이상 파괴되지 않은 채 남아 있으려면 Murakami 용액의 경우엔 $\sigma_p/\sigma_a=1.5$, KOH 포화용액에서는 $\sigma_p/\sigma_a=2.5$ 이상으로 proof test를 한 이후에 실제 응용에 이용해야 한다.

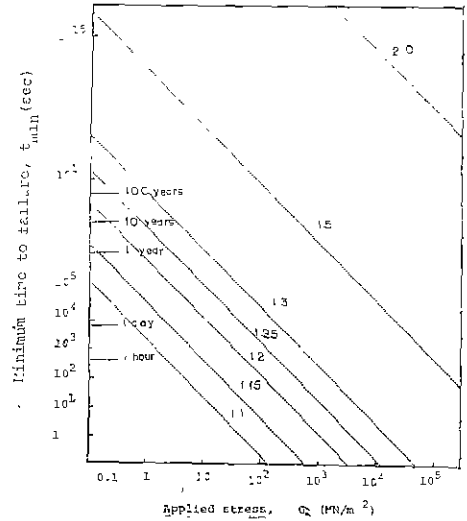


Fig. 8. Proof test diagram for sintered SiC in Murakami solution. The numbers below each line refer to proof test stress/applied stress ratio (σ_p/σ_a) corresponding to that line.

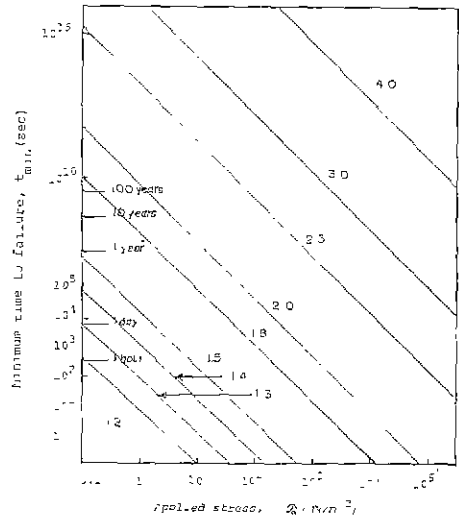


Fig. 9. Proof test diagram for sintered SiC in saturated KOH solution.

3.5 파괴인성, K_{IC}

Double torsion³⁾을 이용한 K_{IC} 값과 Vicker's Indentation method를 이용한 K_C 값을 Table 3에서 비교하였다. Vicker's Indentation method를 이용한 K_{IC} 값의 측정에는 일반적으로 많이 사용되는 Lawn 식¹⁰⁾과, in-

Table 3. Comparison of fracture toughnesses calculated from Lawn eq., Marshall eq., and DT test

| specimen No. | by Lawn eq. (MN/m ^{3/2}) | by Marshall eq. (MN/m ^{3/2}) | by DT test (MN/m ^{3/2}) | | |
|--------------|---------------------------------------|---|-----------------------------------|--------------|-------------------|
| | | | in air | in KOH soln. | in Murakami soln. |
| A1 | 2.9784 | 3.3580 | 3.3941 | — | — |
| A2 | 2.8662 | 3.0377 | 3.2783 | — | — |
| K1 | 2.8150 | 2.9860 | — | 3.1765 | — |
| K2 | 2.8014 | 2.9033 | — | 3.0382 | — |
| M1 | 2.8188 | 3.0855 | — | — | 3.3021 |
| M2 | 2.8302 | 3.1004 | — | — | 3.2546 |

dentation 주위의 잔여응력의 영향을 고려하여 Lawn 식을 보완한 Marshall 식¹¹⁾을 이용하여 각각 구하였는데, 후자만이 double torsion 실험치에 접근함을 보여주고 있다.

Lawn equation

$$K_{IC} = \frac{1}{\pi^{3/2} \cdot \tan \phi} \cdot \frac{P}{C^{3/2}} = 0.0726 (P/C^{3/2}) \dots \dots \dots (7)$$

$\phi = 68^\circ$ for Vickers Indentor

Marshall equation

$$K_{IC} = \frac{P(\xi_r^R (\cot \phi)^{2/3} (E/II)^{1/2}}{C_R^{3/2}} \dots \dots \dots (8)$$

여기서

P: load

C: half of crack length

C_R: radial crack (surface trace)

ξ_r^R: constant, ~0.032 ± 0.002

4. 결 론

1. 소결탄화규소를 증류수, KOH 포화용액 및 Murakami 용액하에서 double torsion 실험을 할 결과 Murakami 용액과 KOH 포화용액에서 원속균열성장미 발생하였음을 확인하였다.

2. 이때의 파괴역학매개변수, n 을 [Murakami 용액의 경우엔 ~79, KOH 용액에서는 ~38로 나타나, 소결탄화규소는 KOH 용액하에서 응력부식에 의한 균열 성장이 더욱 심하게 일어났음을 알았다.

3. Double torsion 실험에서 구한 n 및 logA 값을 토대로 proof test diagram 을 구하여, 이를 이용한 소결탄화규소의 수명예측을 하였다.

4. 소결탄화규소에 있어서 double torsion 실험에 의한 K_{IC} 값은 3.0~3.4MN/m^{3/2}, Vickers Indentation 에 의한 값은 2.9~3.4MN/m^{3/2}를 나타내었다.

참 고 문 헌

1. G. R. Irwin, Fracture in encyclopedia of physics vol VI Springer Heidelberg, 551, 1958.
2. A. G. Evans and S. M. Wiederhorn, "Proof testing of ceramic materials an analytical basis for failure prediction," *Int. J. Fract.*, 10 (3), 379-393 (1974)
3. A. G. Evans, "A method for evaluating the time dependent failure characteristics of brittle materials and its application to polycrystalline alumina," *J. Mat. Sci.* 7 (10), 1137-1146 (1972)
4. B. J. Pletka and E. R. Fuller, "An evaluation of double torsion testing experiment", ASTM STP 678, 19 (1978)
5. W. S. Hahn, "A study on the subcritical crack growth and the life time prediction for sintered silicon carbide", M.S. Thesis. KAIST, 1985
6. A. G. Evans and S. M. Wiederhorn, "Crack propagation and failure prediction in silicon nitride at elevated temperature", *J. Mat. Sci.* 9 (2), 270 (1974)
7. K. D. McHenry and R. E. Tressler, "Subcritical crack growth in SiC," *J. Mat. Sci.* 12 (6), 1272-1278 (1977)
8. K. D. McHenry and T. Yonushonis, "Low-temperature subcritical crack growth in SiC and Si₃N₄," *J. Am. Ceram. Soc.* 59 (5-6), 262-263 (1976)
9. A. G. Evans and F. F. Lange, "Crack propagation and fracture in silicon carbide," *J. Mat. Sci.* 10 (10), 1659-1664 (1975)
10. B. R. Lawn and M. V. Swain, "Microfracture

- beneath point indentations in brittle solids," *J. Mat. Sci.* **10** (1), 113-122 (1975)
11. B.R. Lawn, A.G. Evans and D.B. Marshall, "Elastic/Plastic indentation damage in ceramics: The Median/Radial crack system," *J. Am. Ceram. Soc.* **63** (8-10), 574-581 (1980)
12. G.G. Trantina and C.A. Johnson, "Subcritical crack growth in boron-doped SiC," *J. Am. Ceram. Soc.* **58** (7-8), 344-345 (1975)