

## SHS법에 의한 15R-Sialon의 제조 및 특성

김상섭 · 이은영 · 이철규 · 전병세  
경남대학교 공과대학 무기재료공학과  
(1994년 2월 20일 접수)

### Preparation and Properties of 15R-Sialon by SHS

S. S. Kim, O. Y. Lee, C. G. Lee and B. S. Jun  
Dept. of Inorganic Materials Engineering, Kyungnam University  
(Received February 20, 1994)

#### 요 약

SHS법에 의해 성형체를 얻어 1450°C에서 1750°C 범위에서 질화시켰고 1800°C 질소 분위기에서 가압 소결하였다. 성형체의 부피비중, 기공율, 기공 크기와 분포, 상분석, 미구조 그리고 파괴인성을 측정하였다. 휘스커로 구성되어 있는 성형체는 복합재료 제조의 가능성을 보여 주었다. 성형체를 1750°C에서 질화시키고 1800°C에서 가압 소결한 결과 aspect ratio가 큰 15R-sialon이 주된 상이다.

#### ABSTRACT

Compacts were prepared using the SHS(Self-propagating High-temperature Synthesis) method and nitrated at temperatures range from 1450°C to 1750°C, and pressed at 1800°C under N<sub>2</sub> atmosphere. The samples were characterized for bulk density, porosity, pore size and distribution, phase composition, microstructure and fracture toughness. Compacts were composed of whiskers, which showed a good candidate for the composite materials. The major phases of the compacts nitrated at 1750°C and pressed at 1800°C were 15R-sialon with a large aspect ratio.

#### 1. 서 론

TiC, TiB<sub>2</sub>, TiN 등과 같은 초고온재료 합성시 재래식 방법에 의하면 과량의 산소 혼입 또는 액상의 개재가 불가피하다. 그러나 테르밋 반응을 통해 이와 같은 물질을 합성하였을 때 산소 혼입이나 액상 개재의 문제를 해결하였고, 테르밋 반응열에 의해 성형체를 얻었다고 보고되었다<sup>1)</sup>. 이 방법이 고온 연소합성법으로 일컬어지는 SHS(Self-propagating High-Temperature Synthesis)법이다. SHS 공정으로 만든 소재들에는 전자재료, 금속 초전도체, 복합재료, 고체윤활재, 내화성 물질 및 연마재 등이 있다. 이 SHS법은 최초 반응물에서부터 발생한 연소파(combustion wave)가 자발적으로 빠르게 진행되어 높은 발열반응으로 인하여 반응대(reaction zone)의 냉각이 생성물의 격자결합 농도를 크게 하므로 소결성을 향상시킬 수 있다. 또한 이 SHS법은 공정이 간결하고

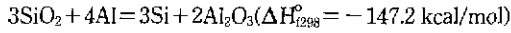
고순도의 물질을 합성할 수 있고, 외부로부터 열의 공급을 최소화할 수 있다고 하여 관심의 대상이 되었다.

SHS 공정은 이와 같은 여러 가지의 장점을 가지고 있는 반면에 반응을 임의로 제어하는 것이 무척 어렵다. 이러한 경우에 생성물의 수율(yield)이 떨어지고 가끔 밀도가 낮은 세라믹을 형성함으로써 이들의 밀도를 높이는 치밀화 과정을 거쳐야 할 필요가 있다. 이러한 치밀화 과정에는 기체 가압, 기계적 가압, 압축 가압 및 충격파 가압<sup>2,3)</sup> 등이 있으며, 가압 기술의 발달로 코일도의 관제, 선재, 봉재 및 실물과 모양이 거의 같은(near-net-shape) 세라믹스 제조에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다.

SHS 반응은 화합물을 형성할 때 생기는 강한 발열 반응이 보통 수 초에서 수 십초내에 반응물을 통해 자발적으로 전파할 수 있다는데 기초를 두고 있다. 이와 같이 SHS 반응은 순간적이고 이때 도달할 수 있는 온도가 너무 높아 온도측정이 불가능하다. 따라서 이론적인

온도를 계산하여 반응온도로 간주하는 것이 일반적이다.

그리고, 자기 유지 연소(self-sustain combustion)의 가능성은 근본적으로 생성열( $\Delta H$ )의 크기에 달려 있다. 본 실험에서 합성하고자 하는 sialon의 원료는  $\text{SiO}_2$ 와 Al이고 SHS 반응에 의해  $\text{SiO}_2$ 가 환원되어 Si로 되며 이 Si가 질화되어야 sialon 조성으로 변할 수 있으므로 다음과 같은 기본 반응식으로부터 구한 H의 값은  $-147.2 \text{ kcal/mol}$ 이다.



A.R. Sarkisyan 등<sup>4)</sup>은 규소화합물을 합성할 때 반응물을  $200\sim 600^\circ\text{C}$ 로 예열하였으며 V.M. Shkiro 등<sup>5)</sup>은 탄화 탄탈의 생성에서 반응물을  $400^\circ\text{C}$ 로 예열하므로써 미반응물의 양이 12%에서 2%로 감소되었다고 보고하였다.

본 실험의 경우도 SHS 반응법에 의해 Al과  $\text{SiO}_2$ 를 반응시키면 급격한 발열반응이 일어나서 반응 생성물의 온도를 올려주게 되는데 이러한 반응은 상온에서는 잘 일어나지 않으므로  $790\sim 800^\circ\text{C}$ 까지 예열하여 arc방전을 일으키기 위한 활성화에너지를 공급하였다.

SHS 반응의 단열 반응 온도(adiabatic reaction temperature)는 발열반응에 의하여 방출되는 모든 열이 궁극적으로 반응 용기내의 내용물의 온도를 올리는데 사용된다는 가정하에서 계산된다. 기본 반응식의 내용물을  $800^\circ\text{C}$ 까지 예열하는 조건으로하여 반응온도를 계산해 본 결과 이 계가 도달할 수 있는 최고온도는  $2524^\circ\text{C}$ 이었다. 이에 따라 본 연구에서는 SHS법에 의해서 성형체를 직접 제조하고 질화분위기에서 온도를 변화시켜 sialon을 제조하고 물리적 특성, 상분석, 미구조 관찰을 통하여 이를 구조재료로서의 이용 가능성을 검토하고자 한다.

## 2. 실험방법

### 2.1. 시편의 제조

출발물질로  $\text{SiO}_2$ (Junsei Chemical Co., Japan)와 aluminum(D.S.P GR Reagent) 1급시약 분말을 사용하였다. 이들의 입자크기 및 분포를 입도 분석기(SA-CP3L, Shimadzu, Japan)를 이용하여 측정된 결과  $\text{SiO}_2$ 는 주로  $10\sim 15 \mu\text{m}$ 이고, aluminum은  $30\sim 60 \mu\text{m}$  범위의 값을 가지고 있다.

칭량한 분말과 아세톤을 플라스틱 용기속에서 알루미늄 나 불을 매체로 하여 24시간 동안 습식 혼합하였다. 혼합된 시료를 공기중에서  $100^\circ\text{C}$ 에서 건조시켰다. Fig. 1에

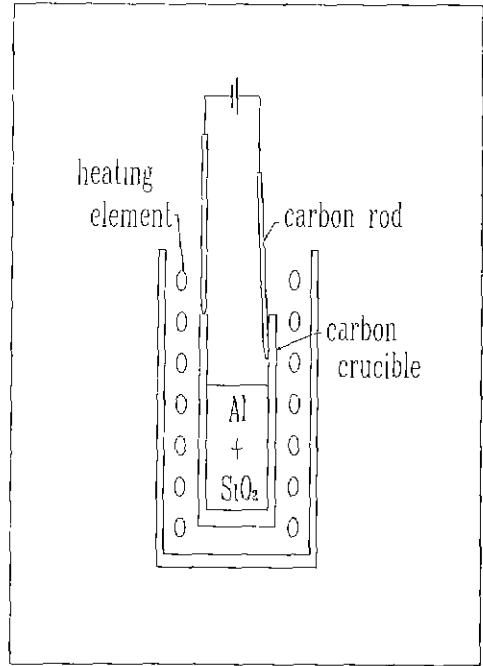


Fig. 1. Apparatus for the SHS reaction of  $\text{SiO}_2$  and Al mixture.

나타낸 바와 같이 카본 도가니안에 시료를 넣고,  $800^\circ\text{C}$ 까지 예열한 후 전원에 연결된 카본 봉을 이용하여 전기 방전시켜 시편의 한쪽 끝에서부터 반응이 일어나도록 하였다. 일단 반응이 시작되면 강열한 발열 반응이 시작되고 수초 이내에 연소파의 연소영역이 확장되면서 반대쪽 표면까지 자발적으로 전파되어 연소파가 지나간다. SHS 반응에 의해 생긴 성형체를  $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}$  (L×W×H)의 크기로 절단하여 시편으로 하였다. 한편, 다공질 시편을 사용하여 복합재료의 제조 가능성을 검토하기 위하여 증류수(40 wt.%)에  $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ (60 wt.%)를 가하고 Ammonium polyacrylate를 첨가하여 해교시킨 후, 이 용액에 시편을 침적시켜  $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ 를 함침하였다. 이때 사용한  $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ (LC-12, H.C. Stark, Germany)의 평균 입径은  $0.7 \mu\text{m}$ 이다.

시편을 질소 분위기(1 atm)하에서 소성하였는데 소성온도는  $1450^\circ\text{C}$  및  $1500^\circ\text{C}$ 이며 Fig. 2와 같은 장치에서 행하였다. 이들 시편들을 자체 제작한 카본 보트에 없어서 알루미늄질 반응관에 넣어 전기로의 중앙에 위치하였다. 전기로는 MoSi<sub>2</sub> 발열체로 한 관상 전기로를 사용하고 Pt·Rh 40%-Pt·Rh 20% 열전대를 사용하여 온도를 측정하였다. 질화반응시 질소기체의 유량은  $5 \text{ cc/sec}$ 로 고정하였고  $250^\circ\text{C/hr}$ 의 승온 속도로 조절하였으며

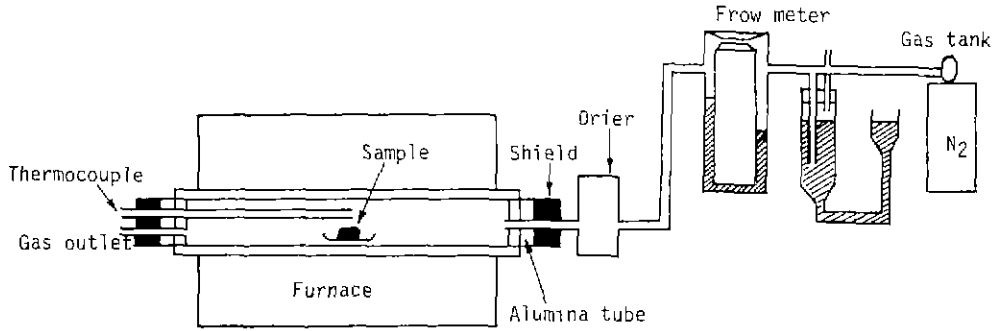


Fig. 2. Schematic view of the experimental apparatus for heat treatment (1450~1500°C).

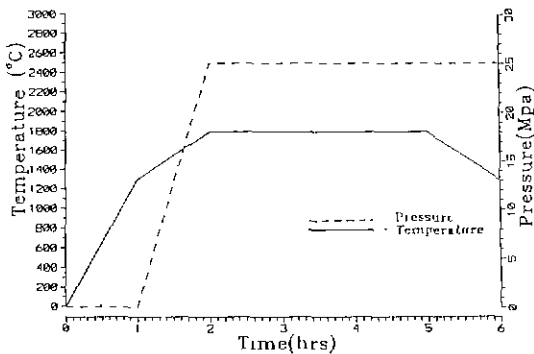


Fig. 3. Temperature and pressure schedules for hot pressing.

유지시간은 5~20시간이다. 그리고 1600°C, 1700°C 및 1750°C 에서 소성한 시편은 흑연 저항로인 Astro Furnace (Astro, Industries, U.S.A)에서 행했으며 최고온도에서 1시간 유지시킨 후 냉각하였다. 또한 섬형체를 가압소결을 행하였다. 가압소결용 흑연 몰드를 boron nitride로 분사 코팅한 후 흑연 발열체로 된 가압로에서 1800°C 에서 3시간 동안 25 MPa의 가압상태로 소결을 행하였다. 이때 승온속도 및 가압과정을 Fig. 3에 나타내었다.

### 2.2. 반응 생성물의 상 확인 및 미세구조 관찰

반응 생성물에 대한 상을 확인하기 위하여 X선 회절 분석장치(Rigaku, Japan)을 이용하여 회절분석을 행하였으며, 이때의 분석 조건은 Ni filtered Cu K $\alpha$ 선을 이용하였다. 2 $\theta$ =20~50° 구간에서 주사속도는 8°/mm로 하였으며, 반응물의 미세구조 형상과 크기 및 표면 상태를 관찰하기 위하여 주사 전자 현미경(Topcon, ABT 32, Japan)을 사용하였다.

### 2.3. 물리적 성질과 기공 분포 측정

생성물의 기공율, 흡수율 그리고 부피비중은 KSL 3114 에 의거 측정하였다. 또한 생성물의 기공 크기와 분포를 조사할 목적으로 porosimeter(9310, Micrometrics Co., USA)를 이용하였다.

### 2.4. 파괴인성

재료의 파괴인성( $K_{Ic}$ )은 균열을 radial crack으로 가정한 Evans와 Charles식에 따라 구하였다. 시편은 10  $\mu$ m-다이아몬드 분말, 1  $\mu$ m-다이아몬드 분말을 사용하여 순서대로 연마하였으며, 최종적으로 0.5  $\mu$ m- $Al_2O_3$  분말 그리고 0.03  $\mu$ m- $Al_2O_3$  분말로 연마하였다. 비커스 경도 측정기(SIMADZU Co., Ltd., Japan)을 이용하여 압자 압입법(Indentation Method)으로 측정하였고 파괴인성 측정의 경우 압입하중은 10 Kg, 압입 유지시간은 10초로 하였으며 다음식으로 계산하였다.

$$K_{Ic} \Phi/Ha^{1/2} = 0.15 K(c/a)^{3/2}$$

여기서,  $K_{Ic}$ 는 파괴인성, H는 경도 값을 나타낸다.  $\Phi$ 는 구속인자(constraint factor)로 3의 값을 지니며 c는 압입후의 균열의 길이를 나타내고 a는 압입후의 대각선 길이의 반을 나타낸다. K는 입자의 모양에 의존하는 상수로 aspect ratio( $\beta'$ 상의 입자에서 길이와 너비의 비)가 큰  $Si_3N_4$ 계에서는 3으로 주어진다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1. 물리적 성질과 기공 분포

실험에서 사용했던  $SiO_2$ 를 전량 환원시키는데 필요한 Al양은  $SiO_2$ 와 Al의 무게비로 62.5 : 37.5이다. 따라서  $SiO_2$ 와 Al의 무게비가 60 : 40일 때가 이론조성에 가장

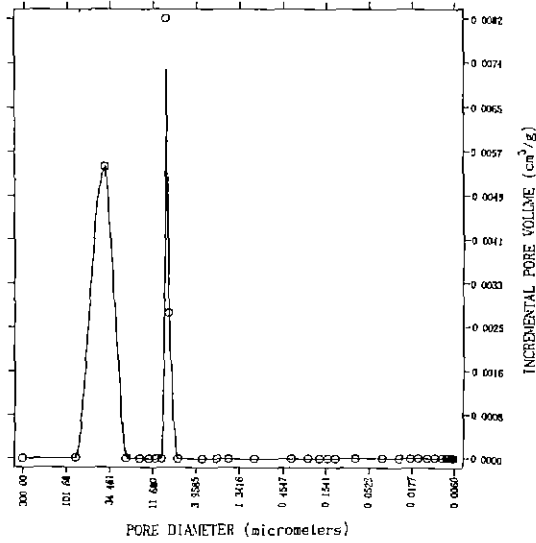


Fig. 4. Pore size and distribution of the SHS product

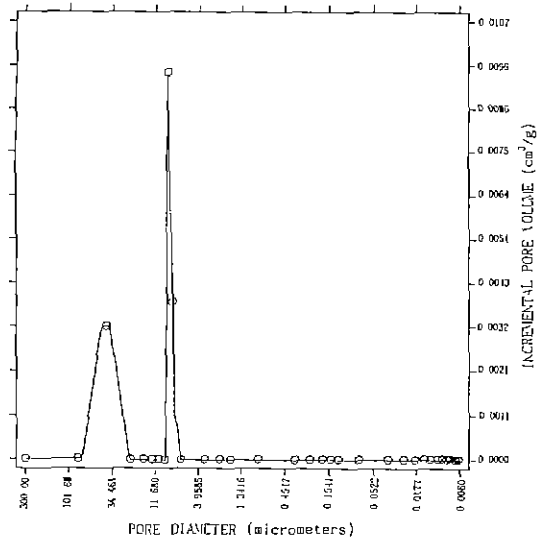


Fig. 5. Pore size and distribution of the SHS product nitrated at 1750°C for 1 hr.

Table 1. Physical Properties of the SHS Products

Sample	Porosity (%)	Absorption (%)	Bulk density (g/cm <sup>3</sup> )
a	47.6	36.9	1.29
b	54.5	45.2	1.21
c	42.2	29.3	1.44
d	54	43.3	1.25
e	44.7	33.2	1.43
ave.	48.6	37.6	1.31

가까우므로 이를 기본조성으로 정하였다. 이 조성을 전후하여 Al의 무게비를 10%씩 증가 또는 감소시켜 SHS 반응을 시킨 결과 Al 무게비가 70%인 조합(Al 70 wt.% batch)에서 다공성 성형체를 얻었다. 이와 같이 성형체가 다공성인 이유는 테르밋(thermite) 반응이 폭발적으로 진행되는 동안 고열로 인해 Al, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Si 및 SiO<sub>2</sub> 등과 같은 가스 방출 요인에 의해서 생성된다고 보고되었다<sup>6)</sup>. 또한 예열하는 동안 용융 Al이 SiO<sub>2</sub> 입자 표면에 젖음성(wettability)이 좋지 않아 SiO<sub>2</sub>와 접촉하고 있는 Al의 일부가 유리되어 테르밋 반응에 참여하지 못하고 냉각 중에 유리된 상태로 응집되어 다공성을 유발시킨다고 보고되었다<sup>7)</sup>. 이들 시편의 기공크기 그리고 분포를 측정된 결과를 Fig. 4에 나타내었으며 이들의 기공크기 분포는 10 μm 그리고 30~100 μm 범위의 미세한 기공들이다. 이 시편에 대한 물리적 성질은 Table 1에 나타내

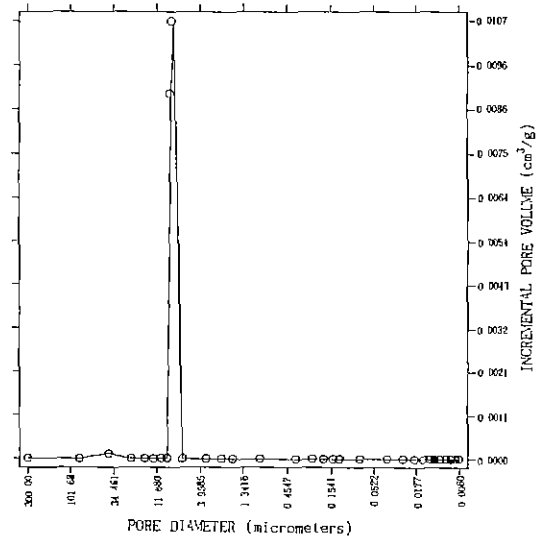


Fig. 6. Pore size and distribution of the SHS product penetrated with  $\alpha$ -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> and nitrated at 1750°C for 1 hr.

었다.

시편을 1450°C 에서 20시간 질화분위기에서 소성한 후 기공크기 및 분포 그리고 물리적 성질(기공율, 흡수율, 부피비중)을 측정된 결과 SHS 반응에 의한 성형체와 거의 동일한 값을 나타내었다. 반응 전후 구성물질이 다른데도 불구하고 이와 같이 물리적 성질이 거의 동

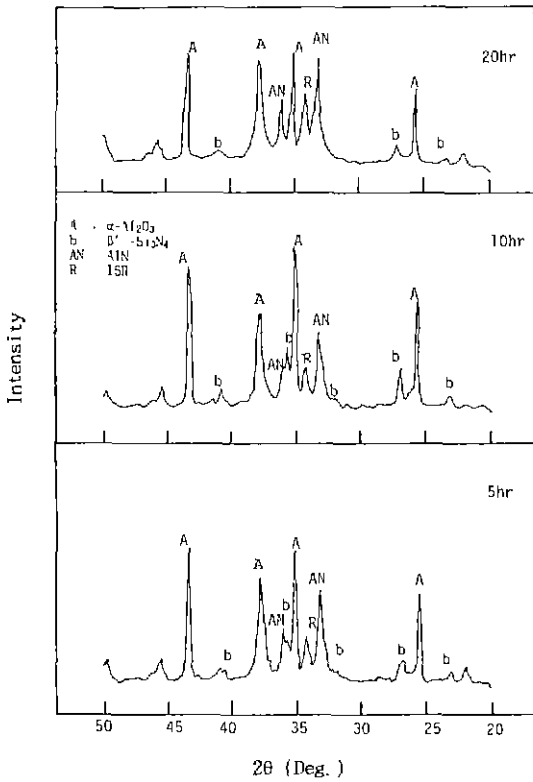


Fig. 7. XRD patterns of the SHS products nitrided at 1450°C for 5 to 20 hrs.

일하게 나타난 것은 측정값의 차이가 오차 한계 범위내에 존재하기 때문인 것으로 사료된다. 이같은 결론은 이 온도에서 소성과정 중 단지 질화반응만 진전될 뿐 치밀화는 일어나지 않는 것으로 사료된다. 시편을 1750°C에서 1시간 질화분위기에서 소성한 경우 Fig. 5에서 보는 바와 같이 30~100 μm 크기의 기공 피크가 상대적으로 낮아졌고 기공율은 평균 19.5%이다. 또한 α-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>를 함침했을 경우 작은 α-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 입자들이 큰 기공을 메우고 소성시 소지와 반응을 하여 Fig. 6에서와 같이 30~100 μm 크기의 기공 피크가 더욱 낮아졌으며 기공율은 평균 10.3%이다.

### 3.2. 상분석

Al 70 wt.% 조합의 SHS 반응 생성물을 1450°C에서 유지시간을 변화시켜 X-선 회절분석을 행한 결과 Fig. 7과 같다. 유지시간이 증가할수록 β-sialon과 α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 반응하여 15R-sialon 생성을 돕고 AlN은 반응에 참여하지 않고 있다. AlN은 질화분위기에서 SiO<sub>2</sub>에는 쉽게 고

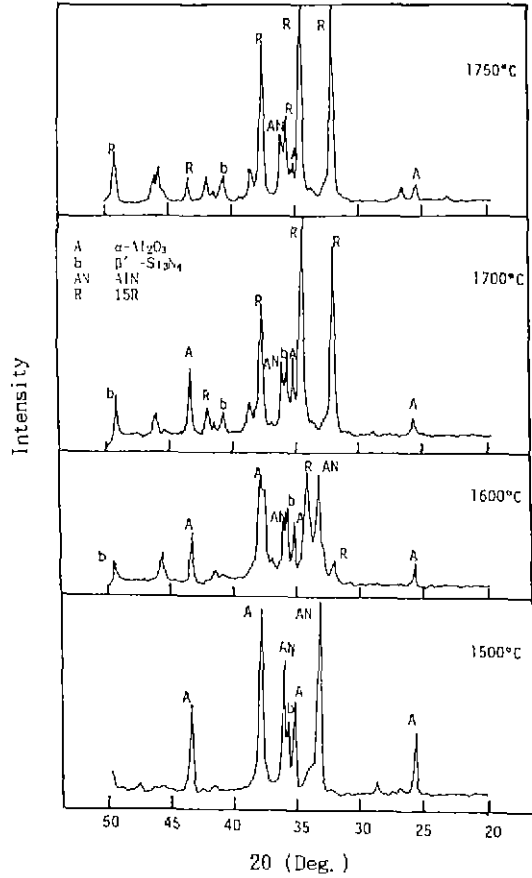


Fig. 8. XRD patterns of the SHS products nitrided at the range of 1500 and 1750°C for 1 hr.

용되어 1500~1600°C 온도범위에서 β-sialon을 생성하나 β-sialon과의 고용은 이 온도범위에서 어려운 것으로 보고되어 있다<sup>8)</sup>.

1500°C에서는 Fig. 8에 나타낸 바와 같이 과량의 Al에 의해 생성된 AlN이 주된 상이다. 1600°C에서의 경우 미반응의 Si이 질화되고 α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>와 AlN 그리고 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>의 반응이 이 온도에서 상당히 진전되어 15R-sialon 피크가 커졌다. 1700°C의 경우는 이와같은 고용반응이 더욱 활발하여 α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>와 AlN 피크가 현저히 낮아지고 15R-sialon이 주 피크임을 알 수 있다. 1750°C까지 승온하면 대부분 15R-sialon으로 변화되어 이 계에서의 고온영역 안정상이 된다.

α-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>를 함침한 시편의 경우 Fig. 9에서 보는 바와 같이 1500°C에서 15R-sialon이 생성되었으며 온도 증가에 따라서 15R-sialon 피크는 점점 커진다. 특히 1750

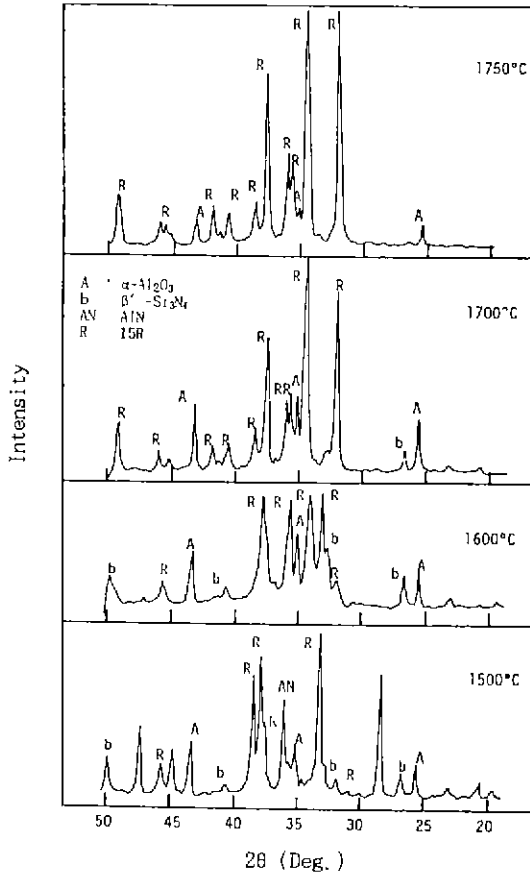


Fig. 9. XRD patterns of the SHS products penetrated with  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  and nitrided at the range of 1500 and 1750°C for 1 hr.

°C에서는 15R-sialon이 주 피크이다. 함침하지 않은 경우와 비교할 때 그림에서 보는 바와 같이 1600°C에서 이미 15R-sialon이 주된 상이다.

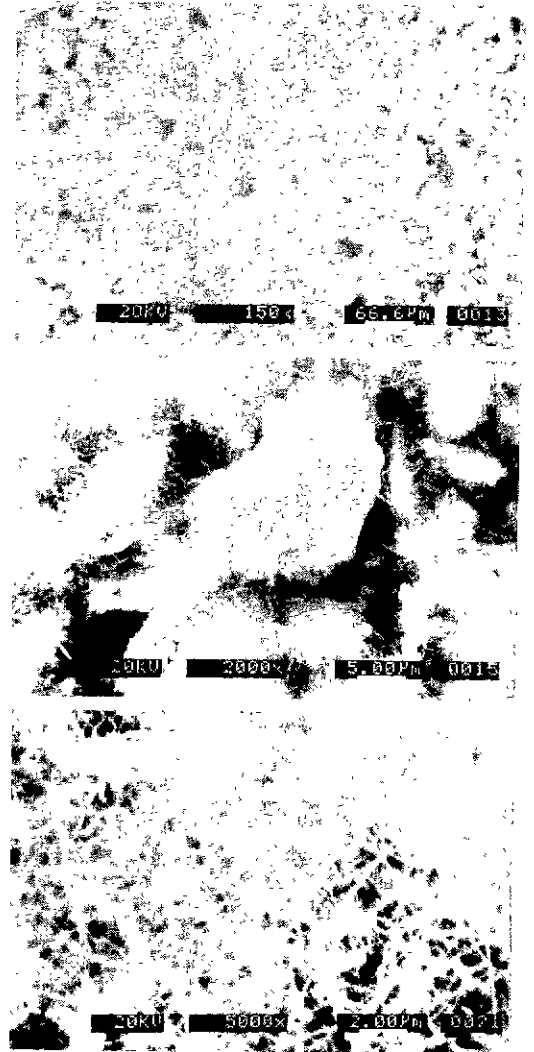


Fig. 10. SEM micrographs of the SHS products.

Table 2. X-ray Data for 15R-AlN Polytypes Compared with Umebayashi's Results

Index	Hot-pressing temperature (1 h in $\text{N}_2$ )						Present work	
	1800°C		1900°C		2000°C			
	d(Å)	I	d(Å)	I	d(Å)	I	d(Å)	I
0015	2.790	250	2.795	300	2.796	375	2.786	100
101	2.604	215	2.606	230	2.607	310	2.597	100
012	2.591	155	2.591	170	2.594	210	2.590	100
015	2.492	94	2.49	106	2.495	112.5	2.486	44
107	2.392	182	2.39	200	2.396	210	2.378	75
018	2.322	30	2.33	38	2.335	55	2.325	20
0111	2.215	35	2.15	40	2.156	37.5	2.145	20

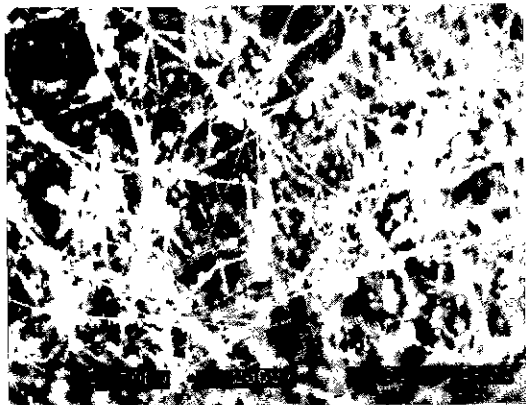


Fig. 11. SEM micrographs of the SHS products penetrated with  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  and nitrated at  $1450^\circ\text{C}$  for 20 hrs.

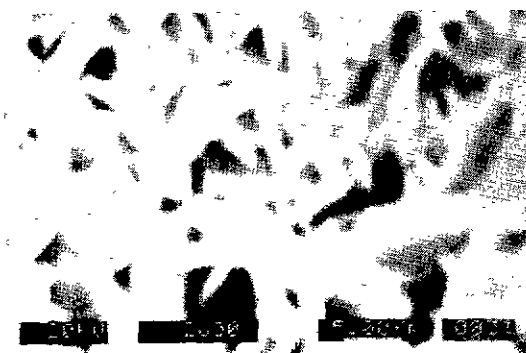
그리고 본 실험에서 SHS법에 의해 얻어진 성형체를  $1800^\circ\text{C}$  에서 가압소결하여 제조한 단상의 15R-sialon 소결체 시편의 X-선 회절분석 데이터를 Umabayashi<sup>7)</sup>의 결과와 비교하여 Table 2에 나타내었다. Umabayashi는  $\text{SiO}_2$ 와 Al 혼합물을 SHS 반응시키지 않고 가압소결하여 15R-AlN polytype에 대한 상을 보고하였는데 본 실험에서 얻은 결과는 Umabayashi의  $1800^\circ\text{C}$  데이터와 비슷한 값을 보여주고 있다.

### 3.3. 미세구조 관찰

다공성인 성형체의 표면을 살펴보기 위해 배율을 확대하면서 미세구조를 관찰한 결과를 Fig. 10에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 시료표면을 150배로 관찰해 보면 pore가 균일하게 분포되어 있고 이를 2000배로 살펴보면 아주 미세한 휘스커들의 응집체로 구성되어 있으며, 응집체를 5000배로 확대하여 보면 휘스커들의 모양을 더욱 선명하게 관찰할 수 있다.

재료를 고인성화 시키려는 노력은 휘스커를 보강하는 방법, 소결체의 미세구조 제어의 방법으로 진행되고 있다. 특히 휘스커를 첨가하는 방법이 인성 증진 가능성이 큰 것으로 믿어져 연구되어 왔으나, 공정중 휘스커의 분산이 어렵고, 휘스커가 소결 수축을 억제하여 결함이 형성되는 것으로 보고되고 있다<sup>9,10)</sup>.

본 실험에서 얻은 시편은 그림에서 보는 바와 같이 휘스커들이 불규칙하게 배열되어 있다. 따라서 복합체 제조 가능성을 보기 위해 휘스커들로 구성된 다공성 시편에 반응성이 좋고, 평균 입경이  $0.7\ \mu\text{m}$  크기인  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 를 함침하고 질소 분위기, 온도  $1450^\circ\text{C}$  에서 20시간



(a)



(b)

Fig. 12. SEM micrographs of the SHS products nitrated at  $1750^\circ\text{C}$  for 1 hr.

(a) without  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$

(b) with  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$



Fig. 13. SEM micrograph of the SHS product hot-pressed at  $1800^\circ\text{C}$  for 3 hrs under the atmosphere of  $\text{N}_2$ .

유지시킨 결과의 미세구조는 Fig. 11과 같다. 그림에서 보는 바와 같이 함침된  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 는 휘스커들과 반응하고, 휘스커의 형태를 그대로 유지하고 있어 복합체 제조의 가능성을 시사하고 있다. 시편을  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 를 함침하지 않고 1750°C에서 1시간 유지시킨 경우 Fig. 12의 (a)와 같고 함침한 경우는 Fig. 12의 (b)와 같다. 그림에서 보는 바와 같이 함침했을 경우가 더욱 치밀한 조직을 보여주고 있다. 이는 기공율, 기공크기 측정 결과와 잘 일치한다. 시편을 온도 1800°C, 질소 분위기에서 3시간 동안 가압 소결을 실시하여 치밀화 시킨후 파단면을 관찰한 결과 Fig. 13와 같이 aspect ratio가 큰 15R-sialon상들로 구성되어 있다. 밀도와 파괴인성을 측정하여 본 결과 각각 3.4 g/cm<sup>3</sup>과 5.1 MNm<sup>-3/2</sup>이다.

#### 4. 결 론

$\text{SiO}_2$ 와 Al의 혼합분말을 이용하여 SHS법에 의해 성형체를 만들어 그 특성을 살펴본 결과를 다음과 같이 요약할 수 있다.

1.  $\text{SiO}_2$ 와 Al(30 : 70) 조성에서 직접 성형체를 제조할 수 있으며 성형체는 휘스커들로 구성되어 있고, 48.6%의 기공율과 10  $\mu\text{m}$ 와 30~100  $\mu\text{m}$  범위의 미세한 기공으로 형성되어 있다. 따라서 이 성형체를 이용하여 세라믹 필터, 내화 단열재료로서의 이용 가능성이 기대된다.

2. 성형체를 1450°C에서  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 로 함침시킨 결과 휘스커들이 그대로 유지되고 있어, 이를 이용한 복합재료 제조의 가능성을 보여주고 있다.

3. 성형체를 1500°C부터 1750°C 온도 범위에서 질화시킨 결과 30~100  $\mu\text{m}$  크기의 기공 피크가 상대적으로 낮아졌고 1750°C에서 기공율은 평균 19.5%이다.

4.  $\alpha$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$ 로 함침한 성형체를 1500°C부터 1750°C 온도 범위에서 질화시킨 결과 1500°C에서 15R-sialon이 생성이 시작되고 1750°C에서 기공은 10  $\mu\text{m}$ 의 일한 크기로 되었으며 기공율은 10.3%이다.

5. 성형체를 1800°C에서 가압 소결한 결과 주된 상은 비교적 aspect ratio가 큰 15R-sialon들로 구성되어 있고

밀도는 3.4 g/cm<sup>3</sup>이며 파괴인성은 5.1 MNm<sup>-3/2</sup>이다.

#### 감사의 글

본 연구는 1992년도 교육부 신소재 분야 학술 연구 지원에 의해 이루어진 것으로 이에 감사드립니다.

#### REFERENCES

1. A.G. Merzhanov, "Self-Propagating High Temperature Synthesis of Refractory Compounds," *Dokl. Chem.*, **204**(2), 429-32 (1972).
2. O. Qdawara and J. Ikeuchi, "Ceramic Composite Pipes Produced by a Centrifugal-Exothermic Process," *J. Am Ceram. Soc.*, **64**, C-80 (1986).
3. Y. Miyamoto, M. Koizumi and O. Yamada, "High-Pressure Self-Combustion Sintering for Ceramics," *Comm. Am. Ceram. Soc.*, C-224-5 (1984).
4. A.R. Sarkisyan et al., "Law of the Combustion of Mixtures of Transition Metals with Silicon and Synthesis of Silicides," *Fizika Goreniyai Vzryva*, **14**(3), 49-55 (1979).
5. V.M. Shkiro et al., "Preparation of Tantalum Carbides by Self Propagating High-Temperature Synthesis (SHS)," *Poroshkovaya Metallurgiya*, **4**(196), 14-17 (1979).
6. J.B. Holt and Z.A. Munir, "Combustion Synthesis of Titanium Carbide: Theory and Experiment," *J. Mater. Sci.*, **21**, 251-259 (1986).
7. S. Umebayashi and K. Kobayashi, "The Observation of Reaction Process between Siliceous Sand Al in N<sub>2</sub> Atmosphere by Thermobalance," *Yogyo-Kyokai-Shi.*, **86**(10), 449-457 (1978).
8. Y. Oyama, "Solid Solution in the System  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -AlN- $\text{Al}_2\text{O}_3$ ," *Yogyo-Kyokai-Shi.*, **82**(7), 351-357 (1974).
9. P.F. Becher and G.C. Wei, "Toughening Behavior in SiC Whisker-Reinforced Alumina," *J. Am Ceram. Soc.*, **67**(12), C267-269 (1984).
10. J.J. Petrovic and R.B. Roof, "Fracture Toughness of a Beta-SiC Whisker," *J. Am Ceram. Soc.*, **67**(10), C219 (1984).