

반복접침압연접합법에 의한 초미세립 고강도 금속재료의 제조기술

이성희 · 김상식 · 한승전 · 임차용

Fabrication Technique of Ultrafine Grained High-Strength Metallic Materials by Accumulative Roll-Bonding Process

Seong-Hee Lee, Sang-Shik Kim, Seung-Zeon Han and Cha-Yong Lim

1. 서 론

구조용 금속재료에서 요구되는 중요한 특성 중의 하나는 고강도이다. 금속재료의 고강도화는 적은 사용량으로 동일한 특성의 제품의 제조를 가능하게 함으로 금속 자원의 사용량을 절감할 수 있음과 동시에, 구조물의 소형화 및 경량화를 가능하게 한다. 특히, 자동차, 철도, 항공기 등의 수송기기용 재료의 경우, 기존 재료보다 얇은 고강도 재료를 이용함으로써 차체중량의 경량화가 가능하게 되어, 연비를 크게 향상시킬 수 있을 뿐 아니라, 지구온난화의 주범인 CO₂가스 등 유해 배기가스의 배출량을 감소시키는 효과도 있어, 지구환경보전의 관점에서 매우 유의미하다.

일반적으로, 다결정금속재료의 강도 σ 와 평균 결정립경 d 사이에는, 다음과 같은 Hall-Petch의 관계식^{1,2)},

$$\sigma = \sigma_0 + kd^{-1/2} \quad (1)$$

이 경험적으로 성립 한다는 것이 알려져 있다. 여기에서, σ_0 , k 는 상수이다. 이 관계는, 연강의 하향복점에 대하여 처음 도출되어진 것이지만^{1,2)}, 그 외의 금속재료의 항복응력³⁾, 변형저항⁴⁾, 인장강도, 파단응력⁵⁾ 등에 대해서도 성립한다는 것이 널리 실험적으로 확립되어 있다. 또한, Hall-Petch의 관계는, 단지 강도에 대해서만 성립되는 것이 아니라, 파괴인성값에 대해서도 성립하는 것으로 보고되고 있으며, 저탄소강의 연성·취성전이온도(DBTT)와 입경 사이에서도 비슷한 관계가 성립하여, 입경이 작아질수록 DBTT가 감소하는 것으로도 알려져 있다⁶⁾. 그러므로 결정립미세화법은, 강도와 인성을 동시에 증가시킬 수 있는 매우 효과적인 강화법이라고 할 수 있다.

그림 1은 대표적인 구조용 금속재료의 항복응력과 입

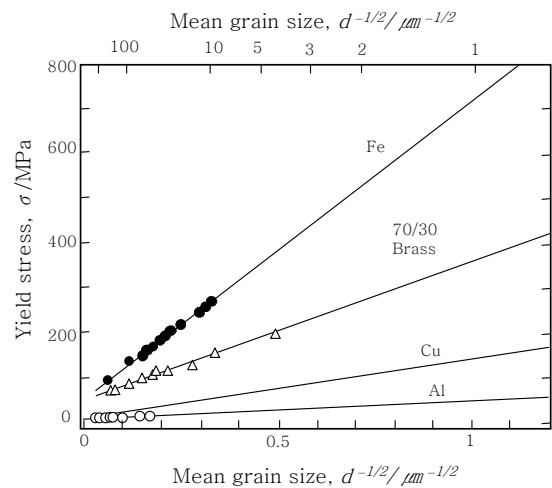


그림 1 각종 금속재료의 평균결정립 크기와 항복강도와의 관계

경의 관계를 나타낸 것이다. 이것들은 모두, 냉간가공과 그 후의 소둔에 의해 제조된 재결정조직을 가진 재료의 데이터를 정리한 것이다. Hall-Petch 식에 따라 모든 금속이 결정립이 미세화됨에 따라 강도가 상승하고 있는 것을 알 수 있다. 적층결합 에너지가 낮은 황동을 제외하면, 종래의 재결정법에 의해 얻을 수 있는 최소 결정립경은 10 μm 정도임을 알 수 있다. 그러므로 종래의 가공열처리법에서는 결정립미세화에 의한 더 이상의 고강도화는 기대하기 어렵고, 보다 높은 강도를 달성하기 위해서는, 그 이외의 강화기구를 이용할 필요가 있다. 실제, 실용 구조용 재료로 이용되고 있는 많은 금속재료에서는, 결정립미세화에 의한 강화 이외에, 고용강화 및 석출강화를 통하여 고강도화를 꾀하고 있다.

그러나, 고용체강화법의 경우에도 고강도는 달성할 수 있으나 생산 비용이 높고 리사이클성이 좋지 않은 단점이 있다. 반면, 결정립미세화법은 합금원소의 첨가를 필요로 하지 않고, 단순한 화학조성 자체로 금속재

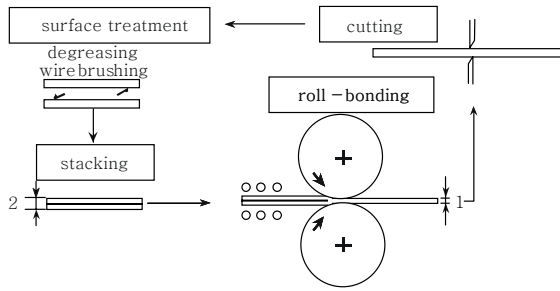


그림 2 반복겹침접합압연법(ARB)의 모식도

료의 고강도화를 달성할 수 있기 때문에, 저비용이며 리사이클성면에서도 우수하다 할 수 있다. 그러므로 본 기술보고에서는 최근 주목을 받고 있는 새로운 결정립 초미세화법의 하나인 반복겹침접합압연법에 대하여 소개하고자 한다.

2. 반복겹침접합압연법

반복겹침접합압연법(Accumulative Roll-Bonding Process, ARB법)은 1998년경 일본 오사카 대학의 Saito교수 연구그룹에 의해 연구 개발^{1,2)}되었으며 결정립 크기를 1 μ m 이하, 즉 sub-micron order 까지 초미세화시켜 고강도화를 달성하는 강소성가공법(severe plastic deformation)의 일종이다. ARB법의 모식도를 그림 2에 나타내었다. 그림과 같이, ARB법에서는 먼저 동일 크기를 가진 두 판재를 탈지 및 wire-brushing 등의 표면처리 후 적층하여 50% 압하율에서 압연하여 압접(Roll-Bonding)시킨다. 그 후, 접합된 재료의 길이를 2등분 하여 다시 표면처리 및 적층의 과정을 거친 후에 50%의 압하율에서 접합압연을 한다. 이와 같은 공정을 반복함으로써 금속재료에 강소성가공을 부여하여 변형량을 축적시킴으로써 결정립을 초미세화시키고 고강도를 달성하는 방법이다³⁻¹¹⁾. 그러므로 원리적으로는 초기 재료의 형상의 변화 없이 금속재료의 고강도화가 가능하다는 것이 큰 특징이다. 또한, 그림 1에서 알 수 있듯이, ARB에서의 압연은, 단순한 압연 프로세스가 아니고, 압연과 접합을 동시에 달성하는 “접합압연(Roll-Bonding)공정”임에 주목할 필요가 있다. 그러므로 양호한 접합을 통한 건전한 재료를 얻기 위해서는 적층 전에 행하는 탈지 및 와이어 브러싱 등의 표면처리에 특별한 주의를 요해야 한다.

2.1 ARB법의 기하학적 성질

ARB법은 두 판재의 접합압연에 기초를 두고 있으므로 서로 접하는 표면이 다음 공정(싸이클)에서는 두께 방향의 중심부위에 놓이게 되는 것이 특징이다. 그러므

Table 1 ARB에 따른 기하학적 성질의 변화

ARB 싸이클수, n	1	2	3	4	5	6	7	8
적층판재수, m	2	4	8	16	32	64	128	256
전압하율, r/ %	50.0	75.0	87.5	93.8	96.9	98.4	99.2	99.6
상당변형량, ϵ	0.80	1.6	2.4	3.2	4.0	4.8	5.6	6.4

로 ARB 싸이클 수가 증가할수록 적층되는 판재의 수는 기하급수적(2^n , n: 싸이클수)으로 증가하게 되며, 그에 따라 변형량도 점점 증가한다. ARB를 8c (c: 싸이클)까지 행할 시에 ARB 싸이클 수의 증가에 따른 금속판재의 적층 수, 전(全)압하율 그리고 상당변형량(equivalent strain)의 변화를 Table 1에 나타내었다. 여기서, 상당변형량은 다음 식에 의해 계산되었다.

$$\epsilon_n = \frac{2}{\sqrt{3}} n \ln \frac{1}{1-r_n} \quad (2)$$

여기서 n은 ARB싸이클 수, r_n 은 싸이클당 압하율(rolling reduction)이다. 그러므로 ARB가 매 사이클마다 정확히 50% 압하율에서 진행된다면, $r=0.5$ 이므로, $\epsilon_n = 0.8n$ 이 된다. 식(2)는 다음의 두 가지 가정 하에서 도출된 것이다. 첫째, 압연시의 변형은 평면 변형(plane strain)으로 작용한다. 둘째, 압연시 피가공재료(시편)와 압연롤 사이의 마찰에 의해 유발되는 부가적 전단변형(redundant shear strain)은 도입되지 않는 것으로 간주한다. 이와 같은 가정 하에서 ARB 가공을 8c 까지 행하면 전압하율(total reduction)이 99.6%, 상당변형량이 6.4인 강소성가공을 행하게 된다.

2.2 ARB법에서 결정립초미세화에 미치는 압연조건의 영향

ARB법의 주된 공정은 압연이므로 압연시의 윤활조건, 압연주속, 압연온도 등과 같은 압연조건에 의해 ARB 가공된 재료의 미세조직 및 기계적 특성이 크게 영향을 받는다.

2.2.1 윤활조건(마찰계수)

압연시에 압연롤과 피가공재료 사이의 마찰계수가 크면 피가공재료의 표면부근에 도입되는 부가적 전단변형(redundant shear strain)으로 인하여 두께방향으로의 미세조직이 불균일하게 되며, 따라서 집합조직 및 기계적 특성에도 큰 영향을 미친다¹²⁾. 즉, 마찰계수가 큰 조건에서 압연가공된 재료의 표면 부근에는 압축변형 외에 부가적 전단변형을 받게 되어 결정립의 형상이

중심부위에 비해 더욱 미세한 조직을 형성하며 FCC금속의 경우, 대표적인 전단집합조직 성분인 {111}<110>, {001}<110> 이 발달한다¹²⁾. 그런데 ARB에 있어서는 전단변형을 받은 표면부위가 다음 사이클에서 중심부위에 놓이게 되므로 마찰계수가 큰 조건에서는 ARB 사이클 수가 증가함에 따라 두께방향으로 복잡한 변형을 받게 된다. 이와 같은 전단변형량의 도입은 ARB에 있어서 결정립미세화를 촉진시키는 결과를 초래한다. 그러므로 ARB법에서 결정립미세화를 효과적으로 달성하기 위해서는 마찰계수가 큰 조건에서의 압연이 바람직하다고 할 수 있다.

2.2.2 압연 온도(Rolling Temperature)

압연온도는 ARB에 있어서 결정립미세화에 끼치는 중요한 인자 중의 하나이다. ARB 가공은 일반적으로 상온 또는 온간에서 행해진다. 그 이유는 열간압연을 행하게 되면 가공으로 변형량을 축적할 수 없게 되어 결정립 미세화의 목적을 달성할 수 없기 때문이다.

2.2.3 압연 주속(Rolling Speed)

압연속도는 금속재료의 변형속도에 직접적으로 영향을 주므로 가공된 금속조직의 발달에 영향을 끼친다. 일반적으로 압연속도가 빠를수록 제품의 생산성이 향상되므로 생산성면에서 바람직하지만, ARB에 있어서는 고속 압연일수록 형성되는 결정립 크기가 큰 것으로 보고되고 있다¹³⁾. 이것은 변형속도가 클 경우 압연시에 발생하는 큰 가공열로 인해 회복이 더욱 활발히 일어나기 때문인 것으로 알려져 있으나, 초고속압연 조건 등의 특수한 경우를 제외하고는 변형속도에 의한 결정립 크기의 차이는 그다지 크지는 않다.

3. ARB법의 적용사례

지금까지 각종 알루미늄합금, 철강재료, 동합금 등에 ARB법을 적용하여 결정립초미세화 및 고강도화를 달성하고 있다. 여기서는 알루미늄합금 및 동합금에 대하

여 간략하게 소개하고자 한다.

3.1 알루미늄(Al)합금에의 적용사례

ARB법의 여러 알루미늄 합금 적용 사례를 Table 2에 나타내었다. 어떤 알루미늄 합금에 있어서도 결정립 초미세화가 가능하며 강도도 초기의 1.7~3.6배 증가한 것을 알 수 있다.

3.1.1 ARB에 의해 형성된 초미세결정립 형성

그림 3에 6c-ARB에 의해 1100-Al 내에 형성된 초미세결정립의 TEM 조직사진을 나타내었다. ARB전 출발재료의 결정립크기가 37 μm 이었는데, 6사이클 이후에 형성된 초미세결정립은 ND방향에서는 평균직경이 670nm이고, TD방향에서는 두께가 230nm인 빵케익(Pancake)모양을 하고 있음을 알 수 있다.

3.1.2 ARB에 따른 기계적 특성 변화

그림 4는 ARB 사이클 수의 증가에 따른 1100-Al의 기계적 성질의 변화를 나타낸 것이다. ARB전의 재료는 완전 어닐링된 상태이므로 강도가 낮고 비교적 큰 파단연신율(fracture elongation)을 나타낸다. 그러나 1c 후의 재료에서는 강도의 증가와 연신율의 감소가 두드러지게 나타난다. 3c 이후의 재료들도 1c 후의 재료와 유사하게 강도가 계속 증가하지만 연신율은 거의 감소

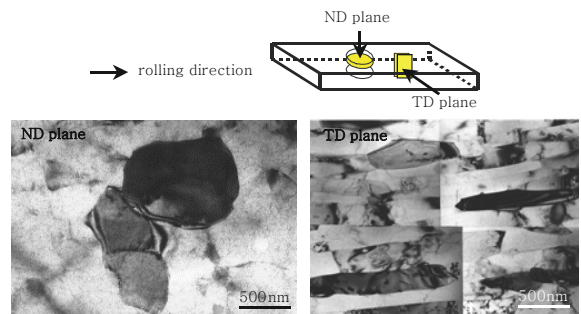


그림 3 ARB 6c에 의해 1100 Al에 형성된 초미세결정립의 TEM 조직사진^{7,8)}

Table 2 ARB법에 의한 각종 Al합금의 결정립경과 강도의 변화

Materials (mass%)	ARB 조건	Grain Size/ μm	Tensile Strength/MPa	Elongation/%
1100-Al(99%Al)	출발재료	37	84	42
	6 cycle at 200 $^{\circ}\text{C}$	0.67	304	8
5083-Al(Al-4.5Mg-0.57Mn)	7 cycle at 200 $^{\circ}\text{C}$	18	319	25
		0.28	551	6
6061-Al(Al-1.1Mg-0.4Si)	6 cycle at RT	25	123	33
		0.31	363	5
7075-Al(Al-5.6Zn-2.6Mg-1.7Cu)	5 cycle at 250 $^{\circ}\text{C}$	>100	215	24
		0.51	376	8

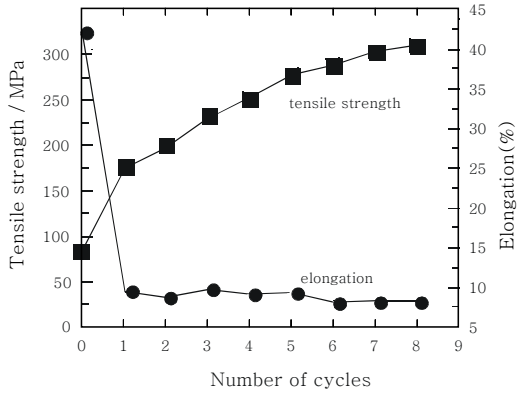


그림 4 ARB 공정에 따른 1100 Al의 인장 특성의 변화⁷⁾

하지 않는다. 8c 후에는 310MPa를 나타내었으며, 이것은 초기재료(84MPa)에 비해 무려 3.7배 증가한 값이다.

3.2 동(Cu)합금에의 적용 사례

동(銅)은 높은 전기전도도로 인하여 대표적인 도전재료로 이전부터 많이 사용되고 있는 소재이다. 특히 최근에는 전기/전자 산업 및 정보통신 산업의 비약적인 발달로 경박단소화 추세에 있으며 이와 관련하여 고전도도와 고강도의 특성을 동시에 겸비한 동 소재의 개발이 절실히 요구되고 있다. 동의 고강도화 방법으로 고용체강화법 및 석출경화법 등이 널리 사용되고 있으나 이런 방법들은 전기전도도를 크게 저하시킨다. ARB법은 주로 결정립미세화에 의한 강화법이므로 전기전도도의 큰 손실 없이 동의 고강도화를 달성할 수 있는 매우

효과적인 방법이라 할 수 있다. 지금까지 무산소동(Oxygen Free Copper, OFC)¹⁴⁾, 인탈산동(Deoxidized Low-Phosphorous Copper, DLP)¹⁵⁾, PMC90(Cu-Fe-P alloy)¹⁶⁾ 등에 적용하여 Al에서와 마찬가지로 결정립초미세화 및 고강도화가 달성됨이 입증되고 있다. 그 결과의 일부를 Table 3에 요약하였다.

3.2.1 ARB에 의해 형성된 초미세결정립

그림 5에 ARB-8c 이후에 각종 동합금의 ND plane에 형성된 초미세결정립의 TEM 조직사진을 나타낸다. 어떤 동합금에 있어서도 형성된 결정립 크기에 다소 차이는 있으나 알루미늄에서 형성된 것과 유사한 초미세 결정립이 형성된다. 인탈산동에 있어서 결정립 크기(두께)가 평균 210nm로 가장 작았으며, 이와 같은 결정립 크기 차이는 동적 회복(dynamic recovery)의 정도 차이에 기인한 것으로 사료된다.

3.2.2 ARB에 따른 기계적 특성 변화

그림 6에 ARB 사이클 수의 증가에 따른 각종 동합금의 기계적 성질의 변화를 나타낸다. 동합금의 종류에 따라 ARB에 따른 강도 증가효과에는 다소 차이가 있으나 ARB법이 동합금의 고강도화에 효과적임이 확실함을 알 수 있다. 파단 연신율은 Al에서와 유사하게 1c에서 크게 감소하지만 2c 후에는 오히려 다소 증가하는 경향을 나타낸다.

그림 7은 무산소동과 인탈산동의 ARB에 따른 인장 강도와 전기전도도의 변화를 나타낸 것이다. ARB법에

Table 3 ARB법에 의한 각종 동합금의 결정립경과 강도의 변화

Materials (mass%)	ARB 조건	Grain Size/ μm	Tensile Strength/MPa	Elongation/%
무산소동(99.99%)	출발재료	60	191	67
	8 cycle at RT	0.37	395	7
인탈산동(99.9%)	출발재료	45	184	62
	8 cycle at RT	0.21	547	7
PMC90 (Cu-Fe-P, 99.9%)	출발재료	36	270	27
	8 cycle at RT	0.23	450	8

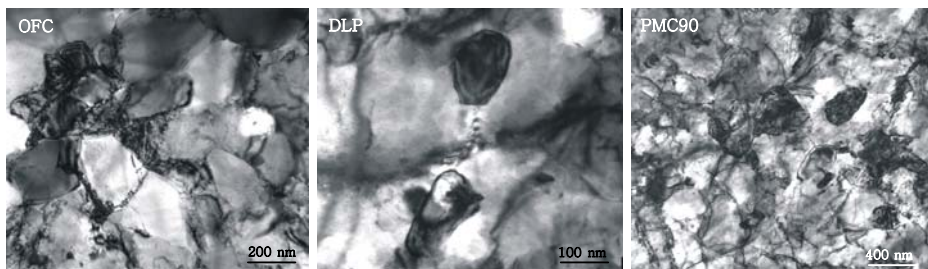


그림 5 ARB 8c 후에 각종 동합금내에 형성된 초미세결정립의 TEM 조직사진(ND plane)¹⁶⁾

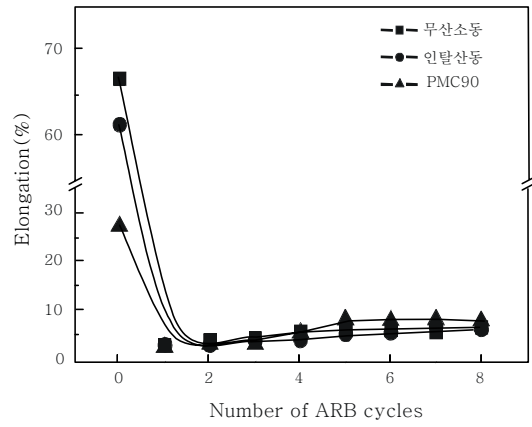
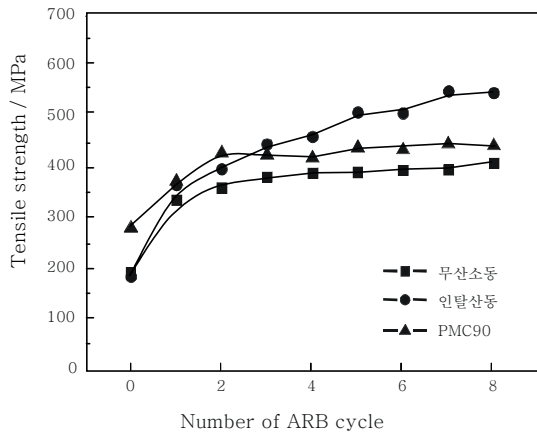


그림 6 ARB 사이클 수의 증가에 따른 각종 동합금의 기계적 성질의 변화¹⁶⁾

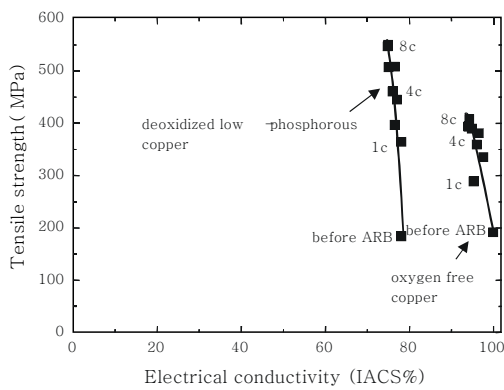
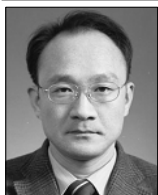


그림 7 무산소동과 인탈산동의 ARB에 따른 인장강도와 전기전도도의 변화¹⁵⁾

의하여 인탈산동, 무산소동 모두 전기전도도의 큰 희생 없이 강도를 크게 향상시킬 수 있음을 알 수 있다. 그러므로 ARB법은 동합금의 전기전도도의 큰 손실 없이 강도를 증가시킬 수 있는 매우 효과적인 프로세스이라 할 수 있다.

후 기

본 연구는 과학기술부 21세기 프론티어 연구개발사업인 '나노소재기술개발사업단'의 지원(과제번호: 06K1501-00231)으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.



- 이성희
- 1963년생
- 목포대학교 신소재공학과
- 고강도금속재료, 마찰교반접합
- e-mail : shlee@mokpo.ac.kr



- 김상식
- 1962년생
- 경상대학교 나노신소재공학과
- 피로파괴, 응력부식균열
- e-mail : sang@gsnu.ac.kr

참 고 문 헌

1. E.O. Hall: Proc. Phys. Soc., B64 (1951) 747
2. N. J. Petch: Journal of the Iron and Steel Institute, **174** (1953), 25
3. N. Hansen: Acta Metallurgica, **25** (1977), 863
4. N. Hansen: Metallurgical Transactions, **16A** (1985), 2167
5. R. W. Armstrong: Metallurgical Transactions, **1** (1985), 1169
6. N. J. Petch: Philosophical Magazine, **3** (1958), 1128
7. Y. Saito, N. Tsuji, H. Utsunomiya, T. Sakai and R. G. Hong: Scripta Mater., **39** (1998), 1221
8. N. Tsuji, Y. Saito, H. Utsunomiya and S. Tanigawa: Scripta Mater., **40** (1999), 795
9. S. H. Lee, Y. Saito, T. Sakai and H. Utsunomiya: Mater. Sci. Eng., **A325** (2002), 228
10. S. H. Lee, Y. Saito, K. T. Park and D. H. Shin: Mater. Trans., **43** (2002), 2320
11. S. H. Lee, H. Inagaki, H. Utsunomiya, Y. Saito, T. Sakai: Mater. Trans., **44** (2003), 1376
12. W. Truszkowski, J. Krol and B. Major: Metall. Trans., **A11** (1980), 749
13. N. Tsuji, T. Toyoda, Y. Minamino, Y. Koizumi, T. Yamane, M. Komatsu and M. Kiritani: Mater. Sci. Eng., **A350** (2003), 108
14. S. H. Lee, C. H. Lee, S. Z. Han and C. Y. Lim: J. Nanoscience and Nanotechnology, **6** (2006), 3661.
15. S. H. Lee, S. Z. Han and C. Y. Lim: Kor. J. Mater. Res., **16(9)** 2006), 592
16. C. Y. Lim, S. Z. Han and S. H. Lee: METALS AND MATERIALS *International*, **12(3)** (2006) 225



- 한승진
- 1968년생
- 한국기계연구원 부설 재료연구소
- 비철재료, 합금설계
- e-mail : szhan@kmail.kimm.re.kr



- 임차용
- 1963년생
- 한국기계연구원 부설 재료연구소
- 에너지재료, 경량재료
- e-mail : cylim@kmail.kimm.re.kr