

90% 단면감소율로 인발된 전해동의 어닐
링시 집합조직과 미세조직 발달에 미치는
전단 변형의 영향

서울대학교

박현, 이동녕

90% 단면감소율로 인발된 전해동의 어닐링시 집합조직과 미세조직 발달에 미치는 전단 변형의 영향

박 현, 이동녕

Effects of Shear Strains on the Development of Texture and Microstructure of 90% Drawn Copper Wire during Annealing

Hyun Park and Dong Nyung Lee

Abstract

An electrolytic copper rod was drawn up to 90% in area reduction and annealed under various conditions. The EBSD measurement of the drawn wire showed that in the center region the $\langle 111 \rangle + \langle 100 \rangle$ fiber duplex texture was dominant, while in the middle and surface regions relatively defused textures developed with a little higher density in $\langle 11w \rangle // \text{wire axis}$. The inhomogeneous texture in the deformed wire gave rise to the inhomogeneous microstructure and texture after annealing. The annealing texture could be classified into the recrystallization texture developed during low temperatures and at the early stage at a high temperature and the growth texture developed after a prolonged annealing at the high temperature. The recrystallization temperature could be explained by the strain energy release maximization model and the growth texture was discussed based on the grain boundary mobility anisotropy.

Key Words : Copper wire; Texture; Recrystallization, Strain energy, Abnormal grain growth

1. 서론

일반적으로 금속가공 공정을 거친 금속은 불균질한 내부 조직을 가지며, 이러한 불균질한 조직은 이후 공정에서의 조직 발달에 영향을 끼친다. 가공 시 금형의 형상

이나 마찰에 의해 재료 내부에서 발생하는 전단 변형은 불균질한 변형 집합조직을 발달하게 하며, 이는 이후 어닐링 공정에서 재료의 미세조직 및 집합조직에 큰 영향을 미치게 된다.

축 대칭 변형을 받은 면심입방정 금속의 경우, 균질

변형에 의해 $\langle 111 \rangle + \langle 100 \rangle$ 이중 섬유 집합조직이 발달⁽¹⁾하는 반면, 큰 전단 변형을 받는 금속 선재 표면에서는 원형 집합조직(Circular texture)이 발달⁽²⁾한다고 알려져 있다.

인발된 구리 선재의 변형 집합조직은 $\langle 111 \rangle$ 을 주성분으로 하고 $\langle 100 \rangle$ 을 부성분으로 하는 이중 섬유 집합조직이 발달한다. 이 선재를 어닐링했을 때, 비교적 저온에서는 $\langle 100 \rangle + \langle 111 \rangle$ 이중 섬유 집합조직이 발달⁽³⁾하는 반면, 고온에서는 $\langle 112 \rangle - \langle 111 \rangle$ 집합조직이 발달⁽⁴⁾한다고 보고되었다.

어닐링에 의해 발달하는 집합조직의 본질은 아직까지 명확히 해명되지 못하고 있다. 축 대칭 변형을 받은 면심 입방정 금속에서 발달하는, 재결정에 의한 $\langle 111 \rangle$ 성분과 결정립 성장에 기인한 $\langle 112 \rangle - \langle 111 \rangle$ 집합조직에 대해서 아직까지 명확한 설명이 부족한 상황이다. 또한, 이러한 집합조직의 발달과 미세조직의 변화를 체계적으로 연결한 연구가 없다.

본 연구에서, 인발 중 발생하는 전단 변형이 재료 내부에 축적되는 변형 에너지와 변형 집합조직에 불균질한 분포를 야기함을 발견하였다. 이러한 불균질 변형 에너지 및 변형 집합조직이 이후 재결정 시 집합조직의 발달에 큰 영향을 끼침을 알 수 있었다. 또한 고온에서의 어닐링 시 결정립 성장에 의해 발달하는 역시 불균질한 집합조직이 비정상 결정립 성장을 야기하여 불연속적인 미세조직의 변화를 유발하였다. 이와 같은 현상을 설명하기 위하여, 전자후방산란회절(Electron Back Scattering Diffraction, EBSD)을 이용하여 인발 및 어닐링된 구리 선재의 국부적 집합조직을 측정하고 이를 미세조직의 변화와 연결하여 관찰하였다.

2. 실험 방법

실험에 사용한 재료는 (주)LG전선에서 생산된 평균순도 99.97%의 전해동봉으로, 초기 전해동봉은 표면 및 중심 영역에서 균일하게 등축상의 결정립들로 구성되어 있었으며, 집합조직의 발달이 미약하였다.

초기 직경이 8mm인 봉을 각 패스당 15% 미만의 단면 감소율을 가지도록 인발하여, 최종 단면 감소율이 90%가 되도록 하였다. 다이각이 18°, 인발속도는 10 m/min 이었다. 인발시 동적 회복 및 동적 재결정을 막기 위해 수행하였다.

인발된 전해동 선재의 어닐링 시 발생하는 미세

조직 및 집합조직의 변화를 조사하기 위해서 300, 600, 700°C의 온도에서 인발된 구리 선재를 어닐링 하였다. 300, 600°C 어닐링은 염욕에서 이루어졌으며, 700°C 어닐링은 분위기의 영향을 고려하기 위하여 대기, 알곤 불활성 분위기, 수소 환원 분위기, 진공 ($< 10^{-4}$ torr) 조건에서 실험하였다.

인발 및 어닐링 선재의 미세조직 관찰은 광학 현미경을 통해 이루어졌으며, 2상 입자의 존재를 확인하기 위해서 투과 전자 현미경 관찰을 하였다.

집합조직은 X-선 회절과 EBSD를 이용하여 측정하였다. X-선 회절을 통하여 극점도들을 측정하였으며, 이 극점도들을 WIMV 법을 이용하여 계산하여 방위분포함수(Orientation Distribution Function, ODF)를 구하였다. 방위분포함수를 통해 광역적 집합조직을 정량적으로 평가하였다. 국부적 집합조직 및 개개 결정립의 방위는 EBSD를 이용하여 측정하였다.

3. 실험 결과 및 고찰

3.1. 인발에 의한 집합조직 및 미세조직의 발달

그림 1에 초기 봉상 시편을 90% 단면 감소율이 되도록 인발한 구리 선재의 광학 현미경 조직과 광역적 집합조직을 나타내었다.

인발에 의해 연신된 침상의 결정립들의 2차원 모습을 관찰할 수 있으며, 동적 재결정의 징후를 발견할 수 없었다.

극점도 및 방위분포함수를 통해, 인발된 구리 선재의 광역적 집합조직은 $\langle 111 \rangle$ 이 주성분이고 $\langle 100 \rangle$ 가 부성분인 이중 섬유 집합조직으로 표현할 수 있음을 알 수 있다. 또한, 그 두 성분의 비는 약 2.6이다.

그림 2에 EBSD를 이용하여 측정된 인발된 구리 선재의 국부적 집합조직의 분포를 나타내었다. X-선 회절에 의한 광역적 집합조직은 $\langle 111 \rangle + \langle 100 \rangle$ 이중 섬유 집합조직으로 표현할 수 있었으나, 그림 2에 의하면 이는 전체 반지름 영역중에서 1/3에 해당하는 중심 영역에 국한됨을 알 수 있다.

선재의 중간 영역에서는 여전히 $\langle 111 \rangle$ 성분이 강하나, 중심 영역에서의 $\langle 100 \rangle$ 성분과 $\langle 111 \rangle$

성분으로의 뚜렷한 분리가 아닌, 인발 방향 역극점도 상에서 $\langle 11w \rangle$ 방위띠에 결정의 방위들이 분포하고 있다. 이러한 퍼진 성분들 중 선재의 반지름 방향으로 결정의 $\langle 111 \rangle$ 방위가, 인발 방향으로 $\langle 112 \rangle$ 방위가 평행한 성분, 즉 $\{111\}\langle 112 \rangle$ 성분이 부성분으로 관찰되는데, 이는 과거 연구에서 원형 집합조직으로 해석되고 있는 성분이다. 퍼진 성분들의 집합조직이 발달한 관계로 주성분의 강도는 중심 영역의 강도에 비해 더 약하다. 표면 영역에서는 변형 집합조직의 발달이 미약하다. $\{110\}\langle 100 \rangle$ 성분이 관찰되며, 이는 역시 과거 연구에서 표면 영역에서 발달하는 성분으로 알려져 있다.

여기서 전단 변형 집합조직 성분들이 이전의 연구 결과에서 보고했던 $\{111\}\langle 112 \rangle$ 또는 $\{110\}\langle 100 \rangle$ 으로 분명히 구분할 수 있는 것이 아니라, 오히려 인발 방향에 대해 결정의 방위가 $\langle 11w \rangle$ 방위띠에 넓게 퍼져서 존재함을 알 수 있다. 전단 변형률이 반지름의 함수이며, 표면에 가까울수록 전단 변형률이 연속적으로 증가함을 고려할 때, 인발 방향에 대한 결정의 방위는 전단 변형률이 증가할수록 $\langle 111 \rangle$ 에서 $\langle 100 \rangle$ 로 회전한다고 추측할 수 있다.

3.2. 재결정에 의한 집합조직 및 미세조직의 발달

인발된 구리 선재의 집합조직은 어닐링 후 바뀌었다. 그림 3에 각 온도별로 어닐링한 구리 선재들의 측정된 (100) 극점도를 나타내었다. 3시간 동안의 어닐링 시, 300°C 에서 600°C 까지 시편들은 변형 집합조직의 경우와는 반대로 $\langle 100 \rangle$ 를 주 방위로 하고 $\langle 111 \rangle$ 을 부방위로 하는 이중 섬유 집합조직이 발달하였다. 이러한 이중 섬유 성분들은 축 대칭 변형을 거친 구리 선재의 재결정 집합조직의 성분들로 잘 알려져 있다. 계산된 방위분포함수에서 얻어진 방위 강도를 살펴보면, 300 및 600°C 어닐링한 시편들의 $\langle 111 \rangle$ 성분에 대한 $\langle 100 \rangle$ 성분의 비는 각각 1.7, 1.5이다.

그런데, 700°C 에서의 어닐링은 그보다 낮은 온도에서의 어닐링과는 다른 양상을 보였다. 즉, 낮은 온도에서의 경우보다 $\langle 100 \rangle$ 섬유 성분이 약하며, 대략 결정의 $\langle 111 \rangle$ - $\langle 112 \rangle$ 방위가 인발 방향에 평행한 집합조직이 매우 강하게 발달하였다. 이와 같은 강한 $\langle 112 \rangle$ 또는 $\langle 111 \rangle$ 집합조직의

발달은 비정상 결정립 성장에 의한 불연속적인 미세조직 변화에 기인하였으며, 이에 대해서 다음 절에서 자세히 고찰하였다.

그림 4에 300°C 에서 3시간 어닐링된, 재결정이 완료된 선재의 극부적 집합조직 분포를 나타내었다.

세 영역에서 모두 $\langle 100 \rangle + \langle 111 \rangle$ 이중 섬유 집합조직이 발달하였음을 알 수 있다. 즉, 인발 방향으로 $\langle 100 \rangle$ 및 $\langle 111 \rangle$ 집합조직이 강하게 발달하였으나, 반지름 방향으로 집합조직이 거의 발달하지 않았다. 그런데, $\langle 100 \rangle$ 과 $\langle 111 \rangle$, 두 성분의 비는 세 영역에서 상이하게 나타난다. 중심 영역에서는 $\langle 100 \rangle$ 성분이 $\langle 111 \rangle$ 성분에 비해 좀더 우세하며, 중간 영역에서는 $\langle 100 \rangle$ 성분이 강하게 발달하였다. 표면 영역에서는 집합조직의 강도는 중심 및 중간 영역들에 비해 약하다.

중심 및 중간 영역에서의 $\langle 100 \rangle$ 재결정 성분의 발달은 변형 에너지 방출 최대화 이론으로 설명할 수 있다.

심하게 가공된 금속의 어닐링 시, 변형 기지에서 전위가 없는 새로운 결정립이 형성되는 과정, 즉 재결정은 변형 중 금속 내부에 축적된 변형 에너지를 구동력으로 하여 일어난다. 그리고, 내부 변형 에너지는 주로 집적된 전위의 양과 배열 형태의 함수로 알려져 있다.

이동녕⁽⁵⁾은 변형 집합조직의 발달에 의해 형성되는 전위 배열과 이에 의한 내부 변형 에너지의 이방성이 재결정 집합조직을 결정된다는 변형 에너지 방출 최대화 이론을 제안하였다. 변형 에너지 방출 최대화 이론에 의하면, 전위 구조에 의해 변형 기지에 형성되는 최대 응력 방향이 재결정시 새로운 결정립의 최소 탄성계수 방향과 평행하게 될 때 계의 에너지 방출이 최대화되어 재결정 구동력이 최대화된다고 하였다.

이동녕은 변형 에너지 방출 최대화 이론으로, 축 대칭 변형을 받아 $\langle 111 \rangle$ 또는 $\langle 100 \rangle$ 섬유 집합조직이 발달한 면심 입방정 금속의 어닐링 시 $\langle 100 \rangle$ 섬유 성분의 재결정립들이 형성될 때 계의 에너지 방출이 최대화된을 보였다^(5,6). 인발된 구리 선재의 재결정 시 중심 및 중간 영역에서 관찰된 $\langle 100 \rangle$ 재결정 집합조직의 발달 역시 변형 에너지 방출 최대화 이론으로 설명할 수 있다.

그런데, 변형 시 $\langle 111 \rangle + \langle 100 \rangle$ 집합조직이 강

하게 발달한 중심 영역에서 재결정 시 <111> 성분이 부성분으로 강하게 발달한 사실이 설명되어야 할 것이다. 이와 같은 <111> 재결정 성분은, 정상적이 불연속 재결정과는 구분되는, 연속 재결정 기구⁽⁷⁾에 의해 발달하는 것으로 판단된다.

그림 5에서 나타냈듯이, 인발된 선재의 재결정이 불균질하게 일어남을 관찰할 수 있었다. 중심 영역은 표면 영역에 비해 재결정이 완료되는데 더 긴 시간이 필요하였다. 이는 전단 변형에 의한 과잉 변형 에너지의 불균질 분포에 기인하는 것으로, 과잉 에너지가 커 재결정 구동력이 더 큰 표면 영역에서 먼저 재결정이 완료되는 것이다. 이는 또한, 중심 영역에서는 재결정 구동력이 상대적으로 작아 표면 영역에 비해 회복에 의한 미세구조 및 집합조직의 발달, 즉 연속 재결정이 활발할 것임을 의미한다. 즉, 중심 영역에서는, 불연속 재결정에 의한 <100> 성분의 발달과 함께, 연속 재결정에 의해 변형 집합조직과 동일한 <111> 재결정 집합조직이 발달하는 것이다.

3.3. 결정립 성장에 의한 집합조직 및 미세조직의 발달

앞 절에서 언급했듯이, 700°C에서 어닐링 시 더 낮은 온도에서의 어닐링 때와는 다른 집합조직, 즉 <111>-<112> 집합조직이 강하게 발달하였고, 이는 비정상 결정립 성장의 발생과 관계있었다. 그림 6, 7에 700°C 어닐링 시, 시간에 따른 미세조직 및 집합조직의 변화를 나타내었다. 어닐링 초기에 선재는 재결정이 완료된, 등축상의 미세한 결정립들로 구성되어 있으나, 어닐링 시간이 증가함에 따라 비정상적으로 크게 성장하는 결정립들을 관찰할 수 있다. 그리고, 어닐링 초기에는 더 낮은 온도에서 관찰된 것과 동일한 재결정 집합조직이 얻어졌으나, 시간이 증가할수록 비정상 결정립 성장에 의해 <111> 성분이 증가하였다.

비정상 결정립 성장이 선재의 표면 영역에서 발생함을 주목할 필요가 있다. 이는 선재의 중심에 비해 표면 영역이 비정상 결정립 성장이 일어나기 쉬운 조건을 가짐을 의미한다. 이러한 비정상 결정립 성장의 거동은 대기, 알곤 분위기, 수소 분위기, 그리고 진공(1×10^{-4})에서 동일하게 관찰할 수 있었다.

일반적으로 비정상 결정립 성장은 재료가 1) 열

처리 시 2상 입자의 조대화에 의해 국부적으로 입계 이동 방해력이 감소할 때, 2) 결정립 크기 분포가 넓게 퍼져 있어 큰 결정립들이 크기 이점을 가질 때, 그리고 3) 집합조직이 발달하여 특수한 결정립계가 형성될 때 발생한다고 알려져 있다.

투과 전자 현미경을 이용한 2상 입자의 관찰 결과 및 EBSD를 이용한 결정립 크기 분포 결과를 통해, 인발된 구리 선재에서의 비정상 결정립 성장은 위의 1), 2) 조건으로 설명할 수 없음을 알 수 있었다.

인발된 구리 선재의 고온 어닐링 시 발생하는 <111>-<112> 집합조직의 발달을 동반하는 비정상 결정립 성장은 표면 영역에서 발달하는 집합조직과 연관이 있었다. 그림 8, 9에 EBSD를 이용하여 측정된, 표면 영역에서 정상적으로 결정립 성장을 하고 있는 기지 결정립들의 국부적 집합조직 분포와 초기 비정상 성장 결정립들의 개개 방위를 나타내었다.

그림 8에서 결정립 성장에 의해 표면 영역에서는 다른 영역에서와는 다르게 {110}<001>로 표현할 수 있는 집합조직이 발달하였음을 알 수 있다. 이 {110}<001> 집합조직은 인발 중 표면 영역에서 발달하는 원형 집합조직과 동일하다. 결정립 성장에 의해 변형 집합조직 성분이 다시 나타나는 현상은 아직 그 원인이 불분명하나, 인발 중 표면 영역에서 받은 전단 변형과 관계있을 것으로 추측된다.

{110}<001> 집합조직을 가지는 정상 성장 기지 결정립들 속에서 {110}<111> - {110}<112> 집합조직을 가지는 비정상적으로 성장하기 시작하는 결정립들이 관찰되었다 (그림9). 기지 결정립들과 비정상 성장 결정립들의 집합조직을 고려할 때, 이들 간에 형성되는 결정립계는 <110>을 축으로 하여 약 35-55° 각을 가지는 경각 입계를 형성하게 된다.

결정립 내부에 축적된 변형 에너지를 구동력으로 하는 재결정과는 달리, 결정립 성장은 결정립계의 특성이 큰 영향을 미친다⁽⁸⁾. 집합조직의 발달에 의한 특수한 결정립계의 형성은 선택적 성장으로 이어져 비정상 결정립 성장을 일으킬 것이다. 구리 선재의 결정립 성장 시, <110>을 축으로 하여 약 35-55° 각을 가지는 경각 입계를 형성할 가능성이 다른 결정립계의 형성에 비해 큼을 알

수 있으며, 이러한 결정립계의 이동 속도가 상대적으로 빠르기 때문에 비정상 결정립 성장이 일어나는 것으로 판단된다.

4. 결론

인발 시 전단 변형의 영향으로 구리 선재에서는 불균질 변형 집합조직이 발달하며, 내부에 축적되는 변형 에너지의 분포 역시 불균질하게 된다. 이러한 불균질 집합조직 및 변형 에너지는 이 후 어닐링 시, 미세조직 및 집합조직의 발달에 큰 영향을 끼친다.

참고 문헌

- (1) Mecking, H., 1985, Preferred Orientation in Deformed Metals and Rocks: An Introduction to Modern Texture analysis, ed. H.-R. Wenk, Academic Press, Orlando, pp. 277-282.
- (2) Linsen, G., Mengelberg, H. D. and Stüwe H. P., 1964, Z. Metallkunde, Vol. 55, pp. 600.
- (3) Inakazu, N., Kaneno, Y. and Inoue, H., 1994, Mater. Sci. Forum, Vol. 157-162, pp. 715-720.
- (4) Grant, E., Juul Jensen, D., Ralph, B. and Hansen, N., 1984, in ICOTM 7, eds. C. M. Brakman et al. Netherlands Society for Materials Science, Noordwijkerhout, The Netherlands, pp. 239-244.
- (5) Lee, D. N., 1995, Scripta metall. mater., Vol. 32, pp. 1689-1694.
- (6) Shin, H. J., Jeong, H. T. and Lee, D. N., 2000, Mater. Sci. Eng., Vol. A279, pp. 244-253.
- (7) Major, B., 1992, Mater. Sci. Tech., Vol. 8, pp. 510-515.
- (8) Gottstein, G., Shvindlerman, L. S., 1999, Grain Boundary Migration in Metals, CRC Press, Boca Raton.

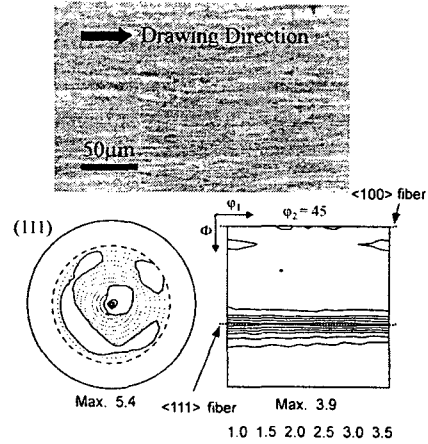


Fig. 1. Optical micrograph and global texture of copper wire drawn to 90% reduction in area.

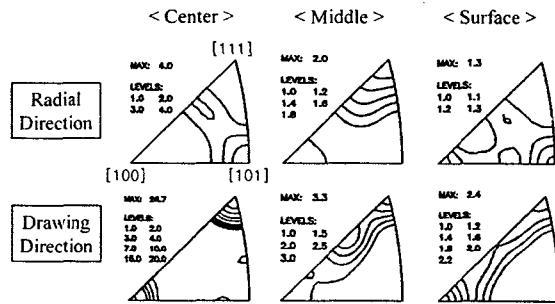


Fig. 2. Textures in center, middle, and surface regions of 90% drawn copper wire.

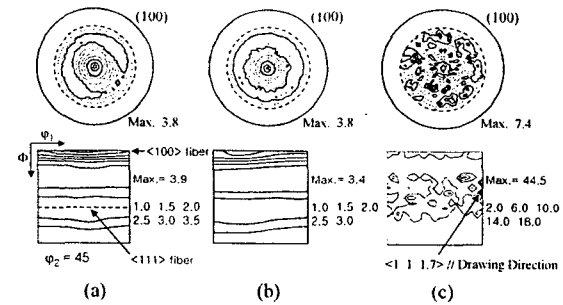


Fig. 3. Experimental pole figures and ODFs of 90% drawn copper wires after annealing at (a) 300°C, (b) 600°C, and (c) 700°C for 3 h.

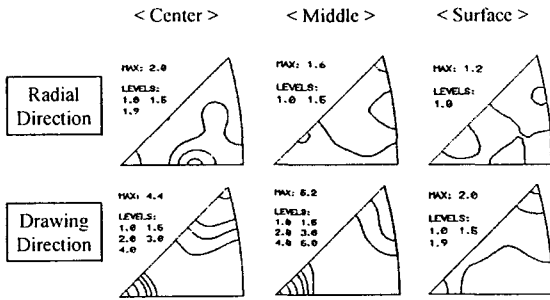


Fig. 4. Textures in center, middle, and surface regions of 90% drawn copper wire after annealing at 300°C for 3 h.

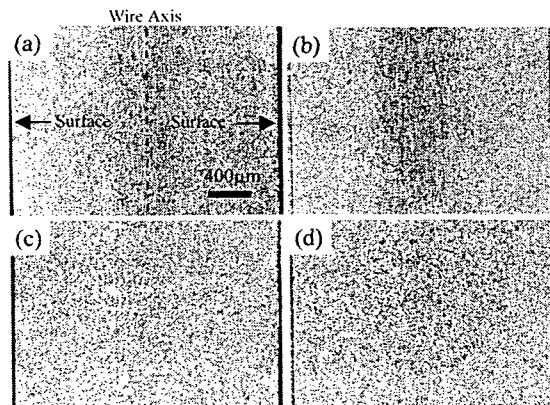


Fig. 5. Optical microstructures of 90% drawn copper wires after annealing at 300°C for (a) 5 s, (b) 10 s, (c) 30 s, and (d) 1 min.

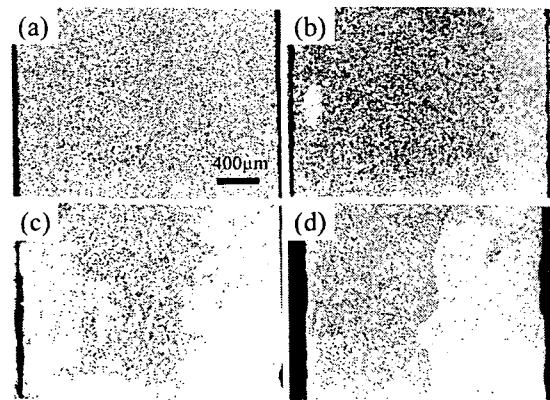


Fig. 6. Optical microstructures of 90% drawn copper wires after annealing at 700°C for (a) 10 min, (b) 1 h, (c) 6 h, and (d) 9 h.

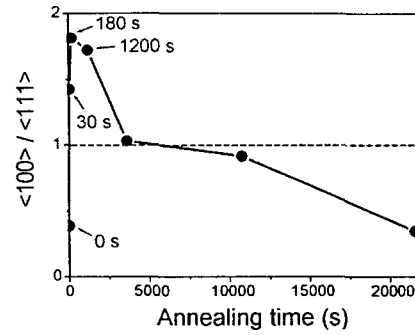


Fig. 7. Change of orientation density ratio of <111> fiber component to <111> in 90% drawn copper wires as a function of time during annealing at 700°C.

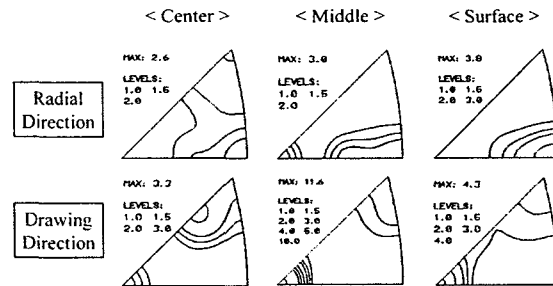


Fig. 8. Textures in center, middle, and surface regions of 90% drawn copper wire after annealing at 700°C for 1 h.

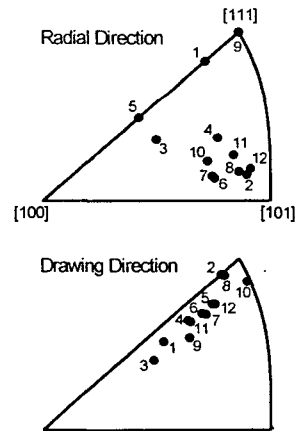


Fig. 9. Orientations of large grains located in the surface region of 90% drawn copper wire after annealing at 700°C for 1 h.