

극저온 압연에 의한 초세립 5083 Al Alloy 제조 연구

이영범* · 심혜정* · 남원종*
(2003년 11월 18일 접수)

Formation of Ultrafine Grains in 5083 Al Alloy by Cryogenic Rolling Process

Y. B. Lee, H. J. Sim and W. J. Nam

Abstract

The large deformation at cryogenic temperature is expected as one of the effective methods to produce large bulk ultrafine grained materials. The effects of annealing temperature, 150~300°C, on microstructures and mechanical properties of the sheets received 85% reduction at cryogenic temperature were investigated, in comparison with those at room temperature. Annealing of 5083 Al alloy deformed 85%, at 200°C for an hour, resulted in the considerable increase of tensile elongation without the great loss of strength and the occurrence of equiaxed grains less than 300nm in diameter.

Key Words : Ultrafine Grain, Cryogenic Rolling, Recovery, Recrystallization

1. 서 론

최근 재료의 강도와 인성 등 기계적 특성을 향상 시키기 위해 결정립 크기를 1 μ m 이하의 범위로 미세화 하는 연구가 활발히 진행되고 있는데, 특히 알루미늄 합금은 결정립이 미세화 됨에 따라 강도, 내식성 및 저온 고속 변형 영역에서도 초소성 현상을⁽¹⁾ 나타냄으로써, 이를 이용하여 산업에 적용하고자 하는 노력이 계속 되고 있다. 따라서 최근 구속전단 가공(equal channel angular pressing ECAP)⁽²⁾, 누적압연 접합법(ARB)⁽³⁾, severe torsional straining (STS)⁽⁴⁻⁵⁾ 등을 이용한 결정립 미세화 연구가 진행되고 있다.

그러나 이러한 방법들은 반복적인 변형 가공을 실시하고 회복, 재결정에 의해 초세립을 형성 시킨다는 개념이나 산업에 적용 하기 위한 제조 공

정 기술 확보 및 열적으로 불안정한 아결정립을 고정각으로 제어하는 방법 등에 있어 아직 미흡한 실정이다. 따라서 현재 압출이나 압연 등 기존의 소성 가공 방법에 변형을 주어 단면적 감소에 따른 변형 에너지의 축적을 효율적으로 제어하는 방법들이 연구 되고 있다. 한 사례로 극저온 온도(-196°C)에서 소성 가공 시 기존의 소성 가공 방법에 비해 높은 강도 및 연성 등의 우수한 기계적 특성이 나타난다고 보고 되었다. 따라서 이러한 극저온 온도 하에서 소성 변형을 알루미늄 이나 알루미늄 합금에 적용 한다면 기존의 소성 가공법으로 얻을 수 없었던 초미세립을 갖는 소재를 제조하는데 유용하게 이용될 것이다. 그러나 현재까지 극저온 온도 하에서의 결정립 미세화에 관련된 기술은 공구강⁽⁶⁾ 및 구리⁽⁷⁾ 등에 제한적으로 적용되고 있다.

* 국민대학교 신소재공학부

따라서 본 연구에서는 5083 Al 합금을 이용하여 극저온 압연과 냉간 압연 하에서 압하를 변화에 따른 미세조직의 변화 거동 및 기계적 성질을 조사하고, 압하 시 온도가 재결정 온도에 미치는 영향의 분석을 통해 초세립 재료의 제조 가능성을 모색 하고자 한다.

2. 실험방법

본 연구에 사용된 소재는 두께 10mm의 5083 Al 합금 판재를 사용 하였으며, 내부 응력을 제거하기 위하여 540℃에서 2시간 열처리 후 수냉하였다.

열처리된 시편은 극저온 압연과 냉간압연과의 기계적 특성 및 미세조직의 변화를 비교 관찰하기 위하여 동일한 압하률(18~85%) 하에서 압연 하였으며, 극저온 압연 시편은 매회 압연 전 액화 질소 온도(-196℃)에서 15분 동안 침적 후 압연 하였다. 또한 회복과 재결정 거동을 관찰하기 위하여 각각 85% 압연된 시편을 150℃~300℃에서 1시간 동안 어닐링 처리 하였다.

압연된 시편의 미세조직 변화는 2% HBF₄용액에서 Barker법으로 부식 후 편광 현미경을 이용하여 관찰 하였으며, 재료 내부에 생성된 아결정립 및 전위의 분포 들은 TEM을 이용하여 관찰하였다. TEM 시편은 60μm 두께로 기계적 연마 후 75% CH₃OH + 25% HNO₃ 혼합용액으로 -30℃ 온도에서 twin jet polishing하여 가속 전압 200kv에서 단면 방향의 시편을 이용하여 관찰 하였다.

3. 실험 결과 및 고찰

Fig. 1은 가공 변형량 증가에 따른 극저온 압연 시편을 두께 방향에서 관찰한 광학 조직 사진이다. Fig. 1(a)는 균일한 등축정 결정립으로 구성되어 있으며 평균 결정립 크기는 87μm 정도로 관찰 되었다. 그러나 그림에서와 같이 (Fig. 1(b-d)) 압하률이 증가할수록 등축정 결정립 들이 압연 방향과 동일한 방향으로 길게 연신 되는 현상을 나타내고 있으며, 압하량이 85%로 증가한 경우에는 두께 방향의 결정립 폭이 10μm 정도로 감소됨이 관찰 되었다.

이와 같이 재료에 가공 변형량이 증가하게 되면 전위 밀도의 증가에 따라 재료의 경도가 증가하게 되는데 Fig. 2에 극저온 압연한 시편을 압하률의 증가에 따라 경도 변화를 나타내었다.

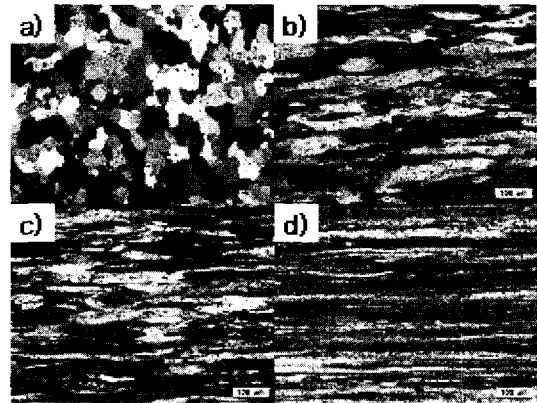


Fig. 1 Polarization optical micrographs of 5083 Al alloy deformed at cryogenic temperature with the reductions of (a) 0%, (b) 44% (c) 60% and (d) 85%

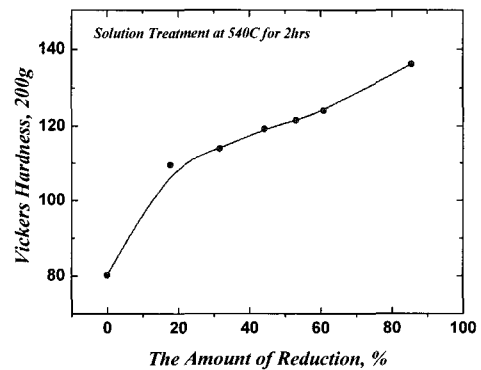


Fig. 2 Variation of hardness with the amount of deformation at cryogenic temperature in 5083 Al alloy

Fig. 2와 같이 초기 경도값이 80.2Hv에서 압하률이 85.5%로 증가한 경우 경도값이 136Hv로, 압하률이 증가할수록 경도가 증가하는 전형적인 가공 경화 현상이 관찰되는데, 이는 전위의 재배열 및 아결정립의 rotation 등에 의한 동적 회복 또는 동적 재결정 발생으로 1pass 이후 pass 수가 증가하여도 경도 변화가 거의 일어나지 않는 ECAP, ARB 등의 가공 방법과는 달리, 압하률이 증가할수록 축적된 높은 전위 밀도에 의해 경도가 상승하는 다른 양상을 나타낸다.⁽⁸⁾

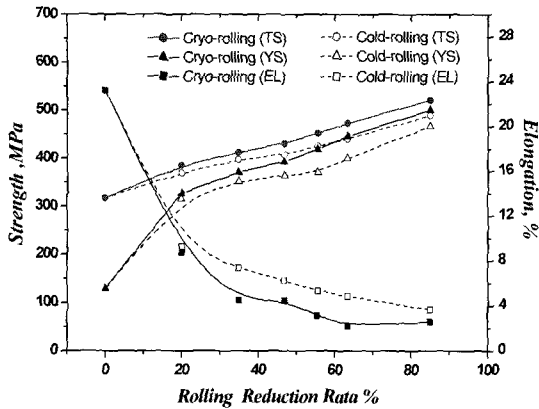


Fig. 3 Mechanical properties of 5083 Al alloy deformed at cryogenic and room temperatures

Fig. 3은 극저온 압연한 시편과 냉간 압연한 시편의 기계적 특성을 비교하기 위해 상온에서 인장 실험한 결과를 압하율에 따라 나타낸 것이다. 냉간 압연한 시편의 경우, 압하율 85%시 항복강도 및 인장 강도가 각각 466.8MPa, 489.2MPa로 초기 소재에 비해 54% 증가된 값을 나타낸 반면, 극저온 온도에서 압연한 시편의 경우는 압하율 85.5%시 항복 강도 및 인장 강도가 각각 500.9MPa, 521.4MPa로 냉간 압연된 시편(54%)보다 11% 증가된 65%를 나타내었다. 이러한 차이는 TEM 그림에서도 관찰 할 수 있는데, 압하율이 증가할수록 높은 전위밀도를 이루며 형성된 전위셀 조직들이 관찰되며, 연신된 전위셀의 폭의 감소와 전위 밀도의 증가가 관찰되었다. 더욱이 Fig. 4-(a)와 (b)를 비교해보면, 비록 정량적인 결과를 도출한 것은 아니나, 극저온에서 압연한 시편의 경우 냉간 압연한 시편에 비해 더 높은 전위 밀도를 형성하고 있음을 알 수 있으며, 연신된 밴드상 미세 조직의 폭도 각각 0.05~0.1 μ m, 0.1~0.2 μ m 정도로 관찰되었다.

또한 <110> 정대축에서 관찰한 SAED(Selected Area Electron Diffraction) pattern을 보면 냉간 압연한 시편에 비해 diffraction spot이 흩어진 형태를 보이는데, 이는 동일한 압하량에서도 (85%) misorientation 이 증가되었음을 나타내고 있다. 따라서 Fig. 3에 나타난 기계적 특성의 차이는 냉간 압연에 비해 극저온 압연 하에서 소성변형시 변형 에너지의 내부 축적 효과가 상대적으로 크므로 나타난 결과로 보여진다.

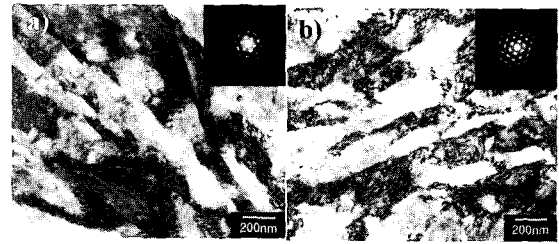


Fig. 4 TEM micrographs of 5083 Al alloy deformed at (a) cryogenic and (b) room temperatures with 85% reduction

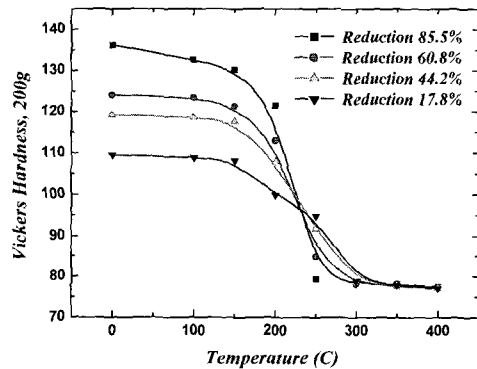


Fig. 5 Variations of hardness with annealing temperature in Al 5083 alloy, deformed at cryogenic temperature

또한 극저온 압연시 소재의 압하량 증가가 재결정 거동에 미치는 영향을 관찰하기 위해 100~400 $^{\circ}$ C의 온도에서 1시간 동안 어닐링 처리를 하였다.

Fig. 5는 어닐링 처리한 극저온 시편의 경도값을 압하율에 따라 나타낸 것이다. 150 $^{\circ}$ C 이하에서 어닐링한 경우 시편의 압하율에 관계없이 어닐링 온도 증가에 따른 경도 변화가 매우 작았으나, 150 $^{\circ}$ C 이상의 온도에서는 압하율이 증가함에 따라 급격한 경도 변화를 나타내고 있으며, 어닐링 온도 300 $^{\circ}$ C 이상에서는 압하율에 따른 경도 변화가 없어 300 $^{\circ}$ C에서 재결정이 완료 되었음을 알 수 있다. 이는 재결정 이후 결정립 내부에 존재하던 전위들이 거의 소멸됨으로써 나타난 결과로 보여진다. 다만 압하율이 85.5%인 경우는 150 $^{\circ}$ C부터 급격한 회복 과정을 거쳐 250 $^{\circ}$ C에서는 300 $^{\circ}$ C와 유사한 경도값을 나타내어 재결정이 더 낮은 온도에서 이루어졌음을 알 수 있다. 이는 압하량의 증가에 따

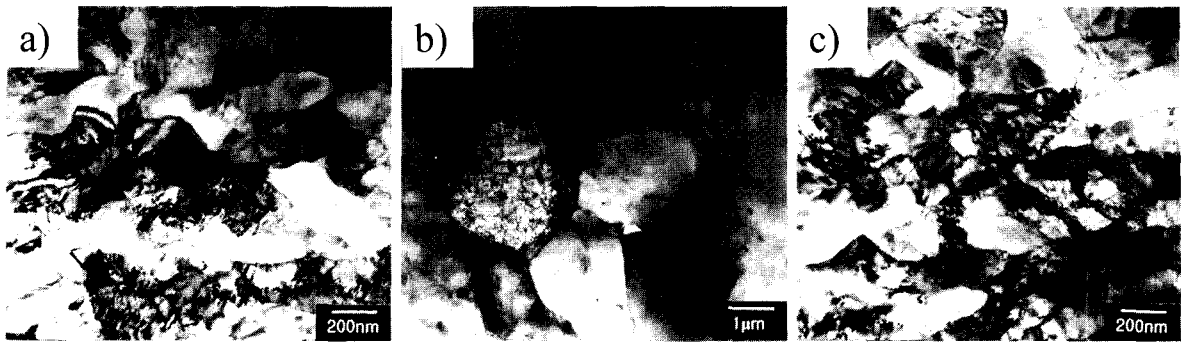


Fig. 7 TEM micrographs of Al 5083 alloy, cryo-rolled with 85% reduction and annealed at 200~250°C for 1hr ; (a) 200°C 1hr, (b) The presence recrystallized grains of 1.5~2µm in a diameter, and non-recrystallized grains, and (c) elongated and equiaxed grains in non-recrystallized regions of (a)

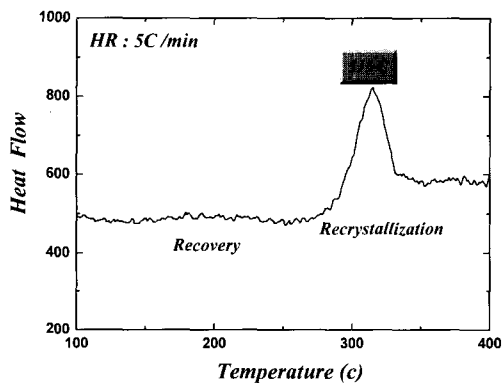


Fig. 6 DSC curve for the 5083 Al alloy, deformed 85.5% at cryogenic temperature

라 재료 내부에 축적된 변형에너지가 증가되어 어닐링시 회복, 재결정의 구동력으로 작용하여 재결정 속도가 빨라 졌기 때문으로 사료된다.

또한 DSC 곡선에서 회복 및 재결정 거동을 명확하게 관찰 할 수 있는데, Fig. 6은 85.5% 극저온 압연한 시편을 승온 속도 5°C/min로 측정된 것으로써, 145~250°C 구간에서는 회복 과정에 해당하는 1차 발열 피크가 관찰되고 있으며, 250~335°C 구간에서는 재결정에 해당되는 2차 발열 피크가 관찰 되었다.

온도가 상승함에 따라 전위가 먼저 Slip면 위에서 이동을 시작해 합체 및 소멸 과정을 거치면서 변형 축적 에너지의 일부가 방출된 결과로 회복이 발생하며, 그 이상의 온도에서는 새로운 결정립의 생성 및 압연시 축적된 변형 에너지의 방출에 의

해 재결정 구간이 발생한다.⁽⁹⁾

또한 재결정 발생시의 엔탈피 값은 152J/mol로 측정 되었다

Fig. 7과 8은 어닐링 온도 변화에 따른 미세조직 변화 및 기계적 성질로서, 150~300°C 온도 범위에서 1시간 동안 어닐링 처리한 시편을 이용하였다. Fig. 8에서 인장 강도 및 항복 강도는 어닐링 온도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내고 있는데, 앞서 온도 변화 값과 같이 어닐링 150°C에서도 미세조직의 큰 변화는 관찰되지 않으나, 아결정립의 형성 및 전위 밀도의 감소 등의 회복 과정을 나타내고 있다. 그러나 어닐링 온도 150~200°C에서는 미세조직의 큰 변화가 관찰되기 시작하는데, 회복에 의하여 전위가 감소하고, 아결정립의 폭이 증가한다. 또한 일부 전위들이 아결정립계인 전위벽(Polygonized Dislocation Walls, PDW)을 형성하는데 이러한 전위벽 (Fig. 7(a))들은 불완전 입계로 변환되며 일부 불완전 입계들은 결정립계로 변화한다고 알려져있다.⁽¹⁰⁾ 또한 Fig. 7(a)를 보면 약간 연신 되어진 결정립과 함께 일부 등축정에 가까운 결정립도 관찰되고 있는데 이때 측정된 결정립 크기는 약 200nm 정도로 측정되었다. 따라서 이 온도 구간에서는 저경각 경계를 갖는 아결정립이 고경각 경계를 갖는 등축 결정립으로 변화해 가는 과정으로 보여진다.

어닐링 온도 200~250°C에서의 기계적 특성을 관찰해 보면 인장 및 항복 강도의 급격한 감소가 나타나고 있으며, 연신율도 큰 증가를 나타내고 있다. 이는 Fig. 7(b)와 같이 재결정된 결정립의 조대화 및 Fig. 7(c)에서와 같은 등축정 결정립의 분율 증가에 기인된 것으로 판단된다. 또한 Fig. 7(c)

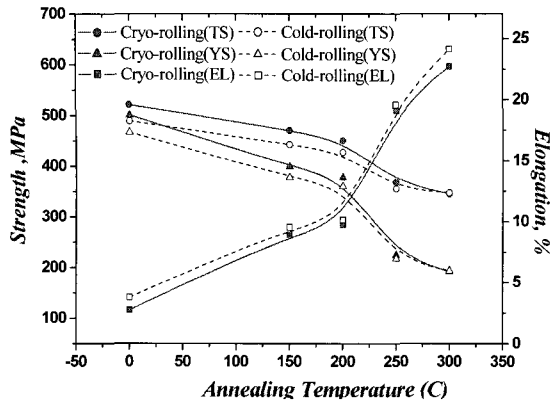


Fig. 8 The effect of annealing temperature on mechanical properties of 5083 Al alloy deformed at cryogenic and room temperatures

에서와 같이 아직 재결정이 완료되지 않은 미세한 결정립도 존재하는 것이 관찰 되었다. 이런 미세한 결정립은 고경각 경계를 가지면서 결정립내 전위도 소멸된 등축 결정립 형태로 진행되어 나가고 있으며, 어닐링 150°C에 비해 회복 및 재결정 과정에 의해 보다 안정한 결정립계가 생성 되었음을 알 수 있다. 그러나 Fig. 7(b)와 같이 일부 결정립에서 재결정에 의해 결정립 크기가 1.5~2 μ m 정도로 조대한 결정립이 관찰된 것은 형성된 미세조직이 아직까지 열적으로 안정하지 않은 상태인 것을 의미한다.

또한 냉간 압연한 시편과의 기계적 성질 및 미세 조직의 변화를 비교해 보면, (Fig. 8) 어닐링 온도의 증가에 따라 비슷한 연신율을 나타내고 있으나, 극저온 압연한 시편의 경우가 보다 높은 강도를 유지하고 있다. 이는 냉간 압연한 시편의 경우, 극저온 압연과 유사한 미세조직의 변화 경향이 관찰되고 있으나 어닐링에 따른 전위 밀도의 감소 및 생성된 아결정립의 성장 속도가 상대적으로 크기 때문에 나타난 결과로 사료된다.

4. 결론

5083 Al 합금의 초세립 제조 가능성을 모색하고자 극저온 압연과 냉간 압연 하에서 압하율 및 어닐링 온도의 변화에 따른 미세조직의 변화 및 기계적 성질을 고찰한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 극저온 압연에 의한 결정립 미세화 시 냉간 압연에 비해 변형 에너지의 내부 축적 효과가 상대적으로 커 높은 인장강도 및 경도값을 나타내었다.

(2) 극저온 압연후 어닐링 처리에 의한 경도값 저하는 어닐링 온도 150°C 이상부터 급격히 감소하였으며, 300°C에서 1시간 어닐링시 압하율에 따른 경도 변화가 없어 재결정이 완료 되었음이 관찰되었다.

(3) 극저온 하에서 85% 압연 후 200°C에서 1시간 동안 어닐링 한 경우 강도의 큰 감소 없이 300 nm 이하의 등축 초미세립 결정립이 관찰 되었다.

참고 문헌

- (1) R. Z. Valiev, D. A. Salimonenko, N. K. Tsenev and P. B. Berbon, *Scripta Mater.*, 37 (1997) p. 1945.
- (2) M. Nemoto, Z. Horita, M. Huruikawa and T.G. Land-don, *Materials*, 4 (1998) p. 1181.
- (3) Y. saito, H. Utsunomiya, N. Tsuji, T. Saito and Y. Min-amono, *Script Mater.*, 47 (1999) p. 579.
- (4) R. Z. Valiev, R.K. Islangaliev and I.V. Alexandrov, *Prog. Mater. Sci.*, 45 (2000) p. 103.
- (5) I. V. Alexandrov, *Met. Mater. Inter.*, 7 (2001) p. 565.
- (6) P. Paulin, "Cold Cuts", *Cutting Tool Engineering*, August (1992).
- (7) Y. Wang, M. Chen, F. Zhou and E. Ma, *Nature*, 419 (2002) p. 912.
- (8) N. Tsuji, Y. Saito, H. Utsunomiya and S. Tanigawa, *Scripta Mater.*, 40 (1999) p. 795.
- (9) F. J. Humphreys and M. Hatherly, *Recrystallization and related annealing*. Oxford, UK, Pergamon, (1996).
- (10) J.-C. Lee, H.-K. Seok and J.-Y. Suh, *Acta Mater.*, 50 (2002) p. 4005.