

극저온 압연한 Al 1050의 결정립 미세화 및 재결정 거동

이영범* · 송형락* · 남원종*
(2004년 3월 31일 접수)

Formation of Ultrafine Grain and Recrystallization in 1050 Al Alloy Rolled at Cryogenic Temperature

Y. B. Lee, H. L. Song and W. J. Nam

Abstract

The deformation and annealing behaviors of a 1050 Al alloy deformed at cryogenic temperature were investigated, focusing on the evolution of microstructures and mechanical properties. Especially, the effects of annealing temperature, 150~300°C, on microstructures and mechanical properties of the sheets received reduction of 88% at cryogenic temperature were investigated. The significant change in mechanical properties with the annealing temperatures of 200~300°C would be attributed to the variations in the volume fraction of recrystallized grains and coarse equiaxed grains.

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

1. 서 론

금속재료에 있어서 결정립의 미세화는 강도의 향상뿐 아니라 재료의 인성을 향상시키는 효과를 갖는 것으로 알려져 있다. 최근 환경친화형 특성을 갖는 재활용(recycling) 가능한 합금성분의 첨가를 최소화하고 결정립 크기를 미세화한 고강도 구조재료에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다. 특히 초세립 구조재료의 제조에 있어서 극심한 가공을 요구하는 강가공(severe deformation)에 의한 제조기술에 대한 많은 연구들이 이루어졌다. 결정립의 미세화를 위해서는 내부 축적 에너지를 증가시킴으로써 재결정의 핵생성 장소의 증가와 구동력의 증가가 필요하다. 그러나 알루미늄 합금은 다른 금속에 비해 적층결함 에너지(stacking fault energy)가 높으므로, 냉간가공을 실시할 때

동적회복(dynamic recovery)의 발생으로 변형 축적 에너지(stored energy)가 효과적으로 확보되지 못하는 문제점을 가지고 있다.

따라서 최근에는 이를 극복하기 위해, 구속전단 가공(equal channel angular pressing, ECAP)⁽¹⁻⁴⁾, 누적 압연접합법(accumulative roll-bonding, ARB)⁽⁵⁻⁶⁾ 및 severe torsional straining(STS)⁽⁷⁾ 등을 이용한 결정립 미세화 연구가 진행되고 있다. 그러나 강가공을 이용한 방법들은 초세립의 재료를 얻기 위해서 많은 양의 소성변형이 필요하게 되므로, 실제로 산업에 적용하기에 곤란한 점이 많다.

한편 극저온에서의 소성변형은 상온에서 실시하는 냉간변형에 비하여 같은 변형량에서 더 많은 변형 축적에너지(stored energy)를 재료에 부여한다. 즉 변형온도의 저하에 따라 소성변형시 많은 결함이 재료에 발생하게 되는데, 이 결함들은

* 국민대학교 신소재공학부

이후 어닐링(annealing) 처리시 발생하는 재결정의 핵생성 장소로 작용하게 된다. 따라서 소성변형 온도를 극저온으로 낮추면, 이후 어닐링시 발생하는 재결정의 핵생성 장소의 증가 효과와 변형 축적에너지의 급격한 증가로 회복 및 재결정의 구동력(driving force)가 증가하게 되는 효과가 있다. 그러므로 소성변형에 있어서 극저온을 적용하면 보다 작은 변형량으로 상온에서 강가공하는 효과를 얻을 수 있을 것으로 기대된다. Wang 등에 의하면⁽⁸⁻⁹⁾ 극저온(-196℃)에서 소성가공 및 어닐링(annealing)시 기존의 소성 가공 방법에 비해 강도 및 연성이 우수한 기계적 특성을 갖는 재료를 제조할 수 있다고 보고되었다.

따라서 이러한 극저온 하에서 소성변형을 알루미늄 합금에 적용한다면 기존의 소성 가공법으로 얻을 수 없었던 초미세립을 갖는 소재를 제조하는데 유용하게 이용될 것이다.

본 연구에서는 1050 Al 합금을 이용하여 극저온 압연과 냉간 압연 하에서 압하률의 변화에 따른 미세조직의 변화 거동 및 기계적 성질을 조사하고, 압하시 온도가 재결정 온도에 미치는 영향을 통해 초세립 제조 가능성을 모색 하고자 한다.

2. 실험 방법

본 실험에 사용된 소재는 두께 10mm의 1050 Al 합금 판재를 사용 하였으며, 초기 시편의 내부 응력을 제거하기 위하여 500℃에서 1시간 열처리 후 수냉하였다. Table 1은 본 실험에 사용된 1050 Al 합금의 화학 조성을 측정된 결과를 나타내었다. 내부 응력을 제거한 시편은 극저온 압연과 냉간 압연과의 기계적 특성 및 미세조직의 변화를 비교 관찰하기 위해 48~92%의 동일한 압하율 하에서 압연 하였으며, 극저온 압연 시편은 매회 압연 전 액화 질소 온도(-196℃)에서 15분 동안 침적 후 압연하였다.

또한 회복과 재결정 거동에 의한 초세립 제조를 관찰하기 위해 88% 압연된 시편을 150℃~300℃에서 1시간 동안 어닐링 처리 하였다.

압연된 시편의 미세조직 변화는 2% HBF_4 용액에서 부식 후 편광 현미경을 이용하여 관찰 하였으며, 재료 내부에 생성된 아결정립 및 전위 분포의 변화는 투과전자현미경(transmission electron microscope, TEM)을 이용하여 관찰하였다. TEM 시편은 80 μm 두께로 기계적 연마 후 75% CH_3OH , 25%

Table 1 Chemical composition(wt%)

Specimen	Si	Fe	Cu	Al
Al 1050	0.25	0.4	0.05	99.3

HNO_3 용액으로 0℃ 온도에서 twin-jet polishing 하여 단면 방향의 시편을 이용하여 관찰 하였다. 또한 변형량의 변화에 따른 기계적 특성을 관찰하기 위해 미소경도 시험기를 이용하여 하중 100g에 유지시간 15초로 하여 각 조건에서의 경도를 측정하였으며, 인장실험은 초기 변형속도 $3 \times 10^{-3}/\text{s}$ 의 조건에서 실시 하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 극저온 압연 하에서 가공 변형량 증가에 따른 미세조직 변화를 나타낸 사진이다. 500℃에서 1시간 동안 균질화 처리한 시편은 32 μm 크기의 균질한 등축정의 결정립으로 구성되어 있다.(Fig. 1(a))

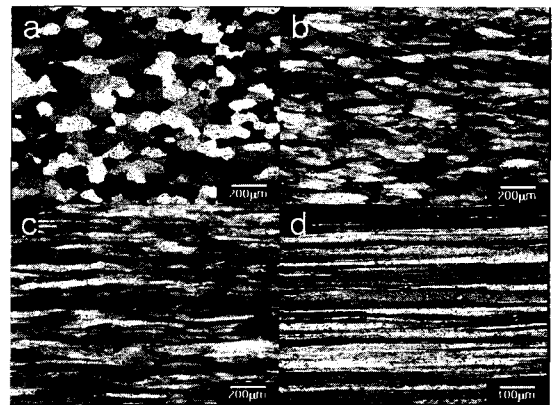


Fig. 1 Polarization optical micrographs of Al 1050 alloy deformed at cryogenic temperature with reductions of (a) 0%, (b) 48%, (c) 67% and (d) 88%

그러나 압하량이 증가함에 따라 등축정 결정립들은 압연 방향과 동일한 방향으로 길게 연신되는 현상을 나타내고 있으며, 결정립 계면도 점차 불명확하게 되는 경향을 보여, 가공량이 88%된 소재는 변형된 결정립의 폭이 6 μm 까지 감소됨이 관찰되었다.(Fig.1 (b-d))

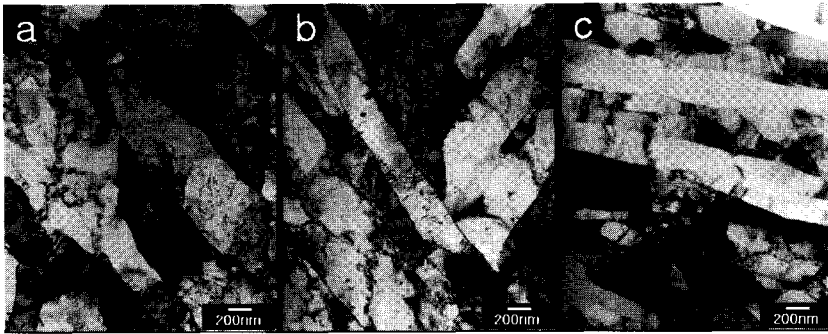


Fig. 2 TEM micrographs of Al 1050 alloy deformed at cryogenic temperature with reductions of (a) 48%, (b) 67% and (c) 88%

Fig. 2는 극저온 압연한 시편을 두께 방향으로 관찰한 TEM 사진이므로 가공량이 증가함에 따른 미세조직의 변화과정을 보여주고 있다. Fig. 2(a)는 극저온에서 48% 압연한 소재의 미세조직으로서, 소성변형에 의해 형성된 전위가 서로 엮혀 전위 셀(cell) 및 아결정립을 형성하였으며, 아결정립 내부에도 많은 전위가 존재함이 관찰되었다.

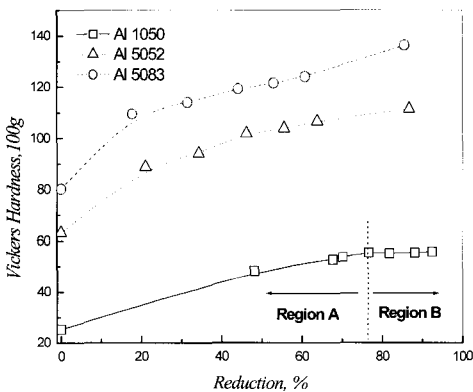


Fig. 3 Variations of hardness with various reductions in 1050, 5052 and 5083 Al alloys, deformed at cryogenic temperature

이와 같이 재료에 소성 변형이 가해지면, 재료 내에 전위가 생성하게 되며, 가공 변형량이 증가함에 따라 축적된 전위 밀도의 증가에 의해 강도가 증가하게 되는데, Fig.3과 같이 초기 경도가 Hv 25.1인 Al 1050 합금을 극저온에서 48% 압연한

경우 전위밀도의 증가에 의해 경도가 Hv 48.3으로 증가하는 전형적인 가공경화 현상이 관찰되었다.

변형량이 67%로 증가하면 관찰되는 미세조직은 Fig. 2(b)와 같이 압연방향으로 더욱 연신되며, 폭 또한 감소하고, 내부에 높은 전위밀도가 잔존하고 있음이 관찰되었다. 그러나 일부 부위에서는 아결정립을 구성하는 전위벽(dislocation wall)이 뚜렷해지는 현상이 관찰되었으며, 내부의 전위밀도도 감소된 것이 관찰되었다. 그러나 이러한 현상은 시편의 일부분에서만 관찰되었으며, 변형량이 80%에 도달할 때까지는 아결정립의 연신과 미세화가 동시에 진행되는 것이 관찰되었다.

한편 Fig. 3에서 1050 Al 합금의 경도가 변형량 80% 이하에서는 변형량의 증가에 따라 경도가 증가하는 영역(region A)과 경도값이 변형량이 증가하여도 더 이상 변화하지 않는 영역(region B)이 존재한다. 이러한 B 영역에서의 경도 변화가 작은 현상은 소성변형에 의한 전위생성과 소멸이 동시에 진행 되는 동적회복(dynamic recovery)에 기인한다고 알려져 있다.⁽¹⁰⁻¹¹⁾

Fig. 2(c)에서와 같이, 변형량이 88%인 Fig. 3의 B 영역에서는 변형량이 증가하여도 전위셀 또는 동적회복에 의해 생성된 아결정립의 미세화는 관찰되었으나, 반면 아결정립 내부의 전위밀도 증가는 관찰되지 않고 약간 감소하는 경향을 보였다. 따라서 높은 변형량의 가공은 변형 중 동적회복의 발생으로 경도값의 작은 변화를 일으킨다고 할 수 있다.

한편 상온에서 실시하는 냉간가공시 동적회복의 발생은, Fig. 4에서 보는 바와 같이 1050 Al 합금의 회복온도가 상온에 가까우므로 발생이 용이

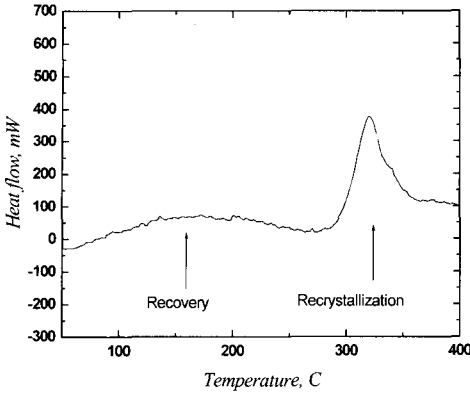


Fig. 4 DSC curve, deformed at cryogenic temperature with 88% reduction in 1050 Al alloy

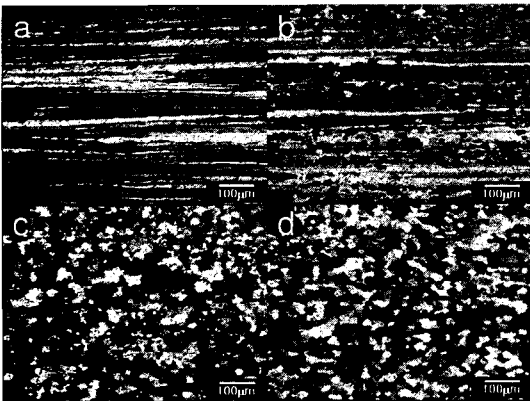


Fig. 5 Optical micrographs of Al 1050 alloy, cryolled with 88% reduction and 1hr annealed at various temperatures of (a) 200 °C, (b) 250 °C, (c) 275 °C and (d) 300 °C

하다 하겠으나, 극저온에서 압연한 경우 압연시 동적회복의 발생은 압연온도가 매우 낮아 발생이 곤란할 것으로 보인다.

따라서 본 연구에서의 극저온 압연시 발생한 동적회복의 원인을 고찰한 결과, 극저온 압연시 액체 질소에 15분간 침적 후 압연을 실시할 때 높은 변형률에 기인한 발열에 의해 시편의 온도가 상당히 증가하여 동적회복 발생할 가능성이 가장 높다. 이는 압하량이 증가함에 따라 지속적인 가공경화 현상을 나타내는 5052 및 5083 Al 합금과는 다른 양상을 나타내고 있는데, Mg 함유하

고 있는 5052 및 5083 Al 합금에서는 적층결합 에너지의 저하 및 용질원자의 존재에 의해 동적회복의 발생이 억제되기 때문으로 사료된다.

또한 소재의 극저온 압연에 따른 변형률 증가가 재결정 거동에 미치는 영향을 관찰하기 위해 88% 극저온 압연한 소재를 150~300°C 사이의 온도에서 1시간 동안 열처리 하였으며, 열처리 후의 미세조직의 변화를 관찰하여 Fig. 5에 나타내었다. Fig. 5(a)의 200°C 이하 온도에서는 결정립 들이 압연방향과 동일한 방향으로 길게 연신된 미세조직을 나타내고 있으나, 250°C에서는 연신된 결정립의 밴드 외에 등축정 결정립이 일부 관찰 되어 재결정이 이미 시작 되었음을 알 수 있었다. 어닐링 온도가 275°C로 증가함에 따라 대부분의 미세조직이 등축정 재결정립으로 구성되어 연신된 결정립의 밴드는 거의 소멸되었음을 알 수 있었다. 어닐링 온도가 300°C에 이르면(Fig. 5(d)) 미세한 등축정의 결정립이 전면적으로 생성되어, 재결정이 완료되었음을 알 수 있었다.

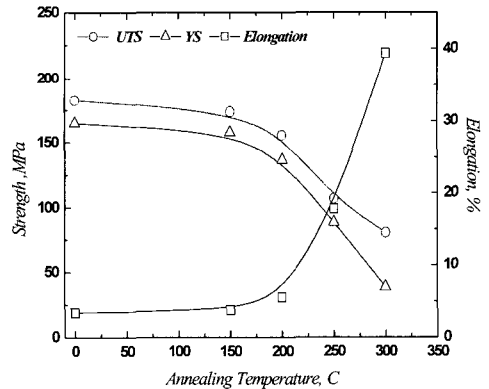


Fig. 6 The effect of annealing temperature on mechanical properties of 1050 Al alloy, rolled at cryogenic temperature

Fig. 6과7은 어닐링 온도 변화에 따른 기계적 특성 및 미세조직의 변화를 나타낸 것으로서, 88% 극저온 압연한 시편을 150~300°C 온도 범위에서 1시간 동안 어닐링 처리하였다. Fig.6에서 보는 것과 같이 인장강도 및 항복강도는 어닐링 온도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내고 있다. 어닐링 온도 200°C에서 어닐링시 인장강도 및 항복강도는 각각 182.5MPa, 165MPa에서 155MPa, 136.8MPa로 감소하는

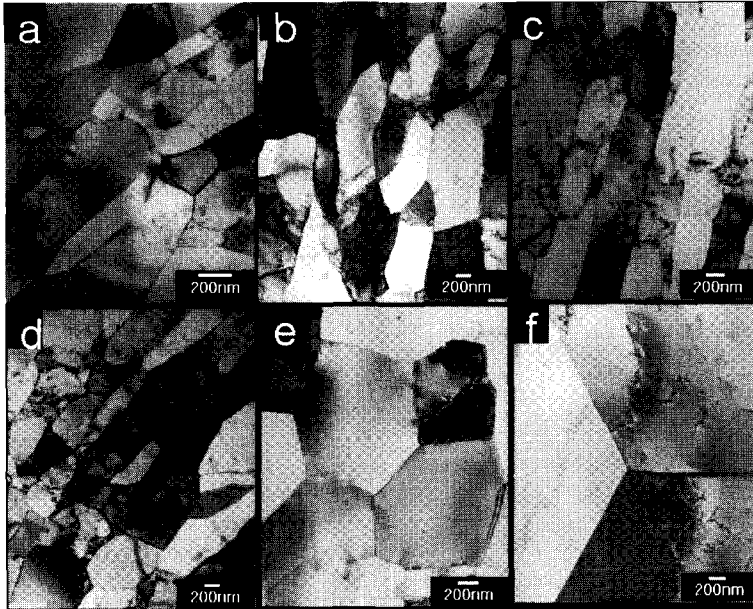


Fig. 7 TEM micrographs of Al 1050 alloy, cryo-rolled with 88% reduction and annealed for 1hr at (a) 150°C, (b) - (c) 200°C, (d) - (e) 250°C and (f) 300°C

반면 연신율은 3.4%에서 5.6%로 미미한 증가를 나타내었다. Fig. 7(a)와 같이 어닐링 온도 150°C에서는 압연방향과 동일한 방향으로 연신된 아결정립 밴드가 관찰되었으며, 88% 압연된 미세조직 (Fig. 2(c))에 비하여 아결정립 폭이 다소 증가하고 길이가 감소하는 현상을 보여, 정적회복(static recovery)이 상당히 진행되었음을 알 수 있었다. 어닐링 온도 200°C에서는 회복에 의해 아결정립 내부에 전위가 거의 존재하지 않는 영역(Fig. 7(b))과 국부적으로 불완전한 입계가 형성된 영역(Fig. 7(c))이 공존하며, 일부 영역에서는 300nm 정도의 등축정 결정립의 존재가 관찰되었으나 관찰된 양은 미미하였다.

그러나 어닐링 온도가 상승함에 따라 급격한 미세조직의 변화를 나타내고 있는데, 어닐링 온도 250°C에서는 Fig. 7(d)와 같이 일부 연신된 아결정립의 밴드가 존재하는 부위도 관찰되었으나, 회복 과정을 통하여 결정립내 전위 밀도의 급격한 감소 및 200°C에서 생성된 등축정 결정립이 성장하여 1 μ m 크기의 조대한 결정립으로 성장한 것이 관찰되었다. 이러한 결과로, Fig. 6에서 어닐링 온도 250°C에서 급격한 기계적특성의 변화를 볼 수 있는데, 인장강도 및 항복강도는 각각 106.6MPa,

88.2MPa로, 급격한 강도의 감소를 보이고 있으며, 연신율은 17.8%로, 88% 극저온 압연한 소재에 비해 높은 연신율의 증가를 나타내었다.

또한 Fig. 7(f)를 보면 300°C까지 어닐링 온도의 증가에 따라 재결정 및 결정립 성장에 의해 매우 뚜렷한 입계를 가진 20 μ m 정도 조대한 결정립이 관찰되었으며, 결정립 내부에서는 매우 낮은 전위밀도가 관찰되었다.

이와 같이 어닐링 온도 200°C 이하에서는 주로 회복에 의해 전위가 재배열 되거나, 국부적으로 재결정이 시작되는 단계로 보여지며, 250°C 이상에서는 회복, 재결정 및 결정립 성장 과정에 의해 보다 안정한 결정립계가 생성 되었음을 관찰 할 수 있었다.

4. 결 론

1050 Al 합금의 극저온 압연 조건 및 어닐링 조건을 변경하여, 어닐링 시간과 온도가 미세조직 및 기계적성질에 미치는 영향을 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1050 Al 합금을 극저온 압연할 때 변형량이 80%에 도달할 때까지 아결정립의 연신 및 미세

화가 동시에 관찰되어, 변형량 증가에 따라 경도 값이 증가하였다. 그러나 변형량이 80~92% 범위로 증가하면 동적회복에 의한 내부 전위밀도가 감소와 가공에 의한 전위셀 또는 아결정립의 미세화가 관찰되었으며, 이러한 미세조직의 변화로 인하여 변형량 증가에 따른 경도의 증가는 관찰되지 않았다.

어닐링 온도 200~300°C 구간에서 급격한 기계적성질의 변화가 관찰되었는데, 이는 어닐링시 발생한 재결정 입자 생성 및 결정립 성장에 의한 조대한 결정립 분포에 크게 영향을 받았다.

후 기

이 논문은 한국과학재단 목적기초 사업의 지원에 의해 연구되었음.(No.R01-2003-000-1020 2-0)

참 고 문 헌

- (1) Y. K. Kim, S. M. Kim, K. S. Lee, J. J. Park and D. H. Shin., "Effect of repetitive equal channel angular pre-ssing on microstructural stability of low carbon steel", *Metals and Materials*, Vol. 7 (2001) p. 437.
- (2) S. Y. Chang, J. G. Lee, K. T. Park and D. H. Shin., "Microstructures and mechanical properties of equal channel angular pressed 5083 Al alloy, *Mater. Trans. JIM*, Vol. 42 (2001) p. 1074.
- (3) V. Patlan, K. Higashi, K. Kitagawa, A. Vinogradov and M. Kawazoe., "Cyclic response of fine grain 5056 Al-Mg alloy processed by equal-channel angular pressing", *Mater. Sci. and Eng.*, Vol. 319-321 (2001) p. 587.
- (4) M. A. Munoz-Morris, C. Garcia Oca and D. G. Morr-is., "Mechanical behavior of dilute Al-Mg alloy processed by equal channel angular pressing", *Scripta Mater.* Vol. 48 (2003) p. 213.
- (5) N. Tsuji, Y. Ito, Y. Saito and Y. Minamino., "Strength and ductility of ultrafine grained aluminum and iron produced by ARB and annealing", *Scripta Mater.* Vol. 47 (2002) p. 893.
- (6) Y. Saito, H. Utsunomiya, N. Tsuji and T. Sakai., "Novel ultra-high straining process for bulk materials-development of the accumulative roll-bonding (ARB) process", *Acta Mater.* Vol. 47 (1999) p. 579.
- (7) A. P. Zhilyaev, G. V. Nurislamova, B. K. Kim, M. D. Baro, J. A. Szpunar and T. G. Landon., "Experimental parameters influencing grain refinement and microstructural evolution during high-pressure torsion", *Acta Mater.* Vol. 51 (2003) p. 753.
- (8) Y. Wang, M. Chen, F. Zhou and E. Ma., "High tensile ductility in a nanostructured metal", *Nature*, Vol. 419 (2002) p. 912.
- (9) Y. Wang, E. Ma and M. Chen., "Enhanced tensile ductility and toughness in nanostructured Cu", *Applied Physics Letters*, Vol. 80, (2002) p. 2395.
- (10) S. K. Varma, V. Caballero, J. Ponce, A. De La Cruz and D. Salas., "The effect of stacking fault energy on the microstructural development during room temperature wire drawing in Cu, Al and their dilute alloys", *Jour. Of Materials Science*, Vol. 31 (1996) p. 5623.
- (11) J. C. Lee, H. K. Seok and J. Y. Suh., "Microstructural evolutions of the Al strip prepared by cold rolling and continuous equal channel angular pressing", *Acta Mater.*, Vol. 50 (2002) p. 4005.