

## 반복접침접합압연법에 의해 강소성가공된 무산소동의 미세조직 및 기계적 특성

이성희<sup>†</sup> · 조 준 · 한승전\* · 임차용\*

목포대학교 신소재공학과  
\*한국기계연구원 재료연구부

## Microstructure and Mechanical Properties of Oxygen Free Copper Severely Deformed by Accumulative Roll-Bonding Process

Seong-Hee Lee<sup>†</sup>, Jun Cho, Seung-Zun Han\* and Cha-Yong Lim\*

Department of Advanced Materials Science and Engineering, Mokpo National University,  
Muan-gun, Chonnam, 534-729, Korea

\*Department of Materials Technology, Korea Institute of Machinery and Materials,  
66 Sangnam-dong, Changwon, 641-010, Korea

(2005년 3월 4일 받음, 2005년 4월 7일 최종수정본 받음)

**Abstract** An oxygen free copper was severely deformed by accumulative roll-bonding (ARB) process for improvement of its mechanical properties. Two copper sheets 1 mm thick, 30 mm wide and 300 mm long are first degreased and wire-brushed for sound bonding. The sheets are then stacked to each other, and roll-bonded by about 50% reduction rolling without lubrication at ambient temperature. The bonded sheet is then cut to the two pieces of same dimensions and the same procedure was repeated to the sheets up to eight cycles ( $\epsilon \sim 6.4$ ). TEM observation revealed that ultrafine grains were developed after the third cycle, and their size was slightly increased at higher cycles. Tensile strength of the copper increased with the strain at low strain levels, but it hardly increased from 3 cycles ( $\epsilon > 2.4$ ) due to occurrence of dynamic recovery, even if the imposed strain increased.

**Key words** accumulative roll-bonding, oxygen free copper, microstructure, mechanical property

### 1. 서 론

최근, 금속재료의 결정립을 초미세화시킴으로 기계적 특성을 크게 향상시키는 강소성가공법들이 많은 주목을 받고 있다. 그 중에도, 구속전단가공법(Equal Channel Angular Pressing, ECAP),<sup>1)</sup> 극한비틀림변형법(Severe Torsional Straining, STS),<sup>2)</sup> 반복접침접합압연법(Accumulative Roll-Bonding, ARB),<sup>3-8)</sup> 연속전단법(Conshearing),<sup>9)</sup> 반복주름압연법(Repetitive Corrugation and Straightening, RCS)<sup>10)</sup> 등과 같은 강소성 가공법들은 소재의 형상변화 없이 고강도화를 달성할 수 있는 장점을 가지고 있다. 이런 방법들 중에서, ARB법은 연속공정이 가능한 압연을 이용한 공정이므로 생산성이 높으며 비교적 큰 재료에도 적용이 가능하므로 실용 가능성이 높은 프로세스라 할 수 있다. 그러므로 지금까지 여러 알루미늄 합금,<sup>3,5,6,8)</sup> 극저탄소IF강<sup>4,7)</sup> 등에 적용되어 왔으며, 결정립초미세화 및 고

강도화가 실현 가능성이 입증되었다. 그러나, 현재까지 실제 제품생산에의 실용화에 ARB법이 적용된 사례는 보고되고 있지 않다. ARB법이 제품생산에 실용화되기 위해서는 공정의 효율화 및 고기능성 고부가가치 재료에의 적용 등 더 많은 연구가 필요하리라 판단된다. 다층(Multi-stack)ARB법<sup>8)</sup> 및 탠덤압연(tandem rolling)<sup>11)</sup>을 이용한 ARB법 등은 공정의 효율화에 큰 진전을 보여준 대표적인 사례라 할 수 있다. 그러나, ARB법에 관련된 연구의 대부분이 그 적용대상이 구조용 재료로 많이 사용되는 AI합금 또는 IF강 등에 국한되어 있으며, 동(銅)과 같은 기능성 소재에로의 적용은 극히 소수에 불과하다.<sup>12,13)</sup> 동은 높은 전기전도도로 인하여 대표적인 도전재료로 이전부터 많이 사용되고 있는 소재이다. 특히 최근에는 전기·전자 산업 및 정보통신 산업의 비약적인 발달로 경박단소(輕薄短小)의 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 이

<sup>†</sup>E-Mail : shlee@mokpo.ac.kr

런 방법들은 전기전도도를 크게 저하시킨다. ARB법은 주로 결정립미세화에 의한 강화법이므로 전기전도도의 큰 저하 없이 동의 고강도화를 달성할 수 있는 효과적인 방법이라 사료된다. 또한, 동은 AI에 비해 적층결함에너지가 작으므로 ARB에 따른 미세조직의 형성 및 기계적 성질의 변화가 AI과는 다른 거동을 보일 것으로 예상된다. 그러므로 본 연구에서는 높은 전기전도도를 가지고 있고 가공성도 우수하여 전기/전자용 소재로 각광을 받고 있는 무산소동에 ARB법을 적용하여 ARB된 동의 미세조직 및 기계적 특성을 조사하였다.

## 2. 실험 방법

본 연구에 사용된 동은 시판용의 고순도(99.99%) 무산소동(O: 2, Pb: 1, Fe: 1, P: 2, S: 7, Bi<1 ppm, Cu:bal.)이다. ARB전에 시편을 440°C에서 5시간 동안 완전 어닐링하여 내부의 잔류변형을 제거하였다.

ARB공정의 모식도가 Fig. 1에 나타나 있다. 실험에 사용된 소재는 두께 1 mm, 폭 30 mm, 길이 300 mm의 무산소동 판재이다. 먼저, 동일 크기의 2매의 판재를 탈지 및 wire-brushing 등 표면처리한 후, 적층하여 약 50%의 냉간압연을 하여 두께 1 mm의 판재로 압접(roll-bonding)하였다. 그 후, 압접된 판재를 절반 길이로 절단한 후, 표면처리, 압연 등 같은 방법으로 반복하여 접합압연을 행하였다. 본 실험에서는 이와 같은 ARB를 상온, 무윤활 조건에서 8사이클(상당변형량 ~6.4)까지 행하였다. 사용한 압연기는 롤 직경이 210 mm인 2단 압연기였으며, 압연시의 롤주속은 15.9 m/min 었다.

ARB전후의 무산소동의 미세조직은 광학현미경 및 투과전자현미경(TEM)으로 관찰하였다. 광학현미경조직은  $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 의 10%수용액에서 화학부식한 후 횡단면(TD면)에서 관찰하였다. TEM관찰용 시편은 253K 온도에서  $\text{CH}_3\text{COOH}:\text{HNO}_3=2:1$ 의 비율로 혼합한 에칭액으로 jet-polishing하여 준비하였으며, TEM 관찰은 JEOL-2000FX로 200 kV의 전압에서 행하였다. 기계적 성질은 상온에서

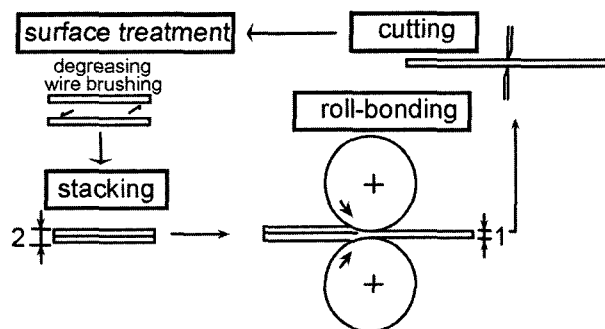


Fig. 1. Schematic illustration of accumulative roll-bonding process.

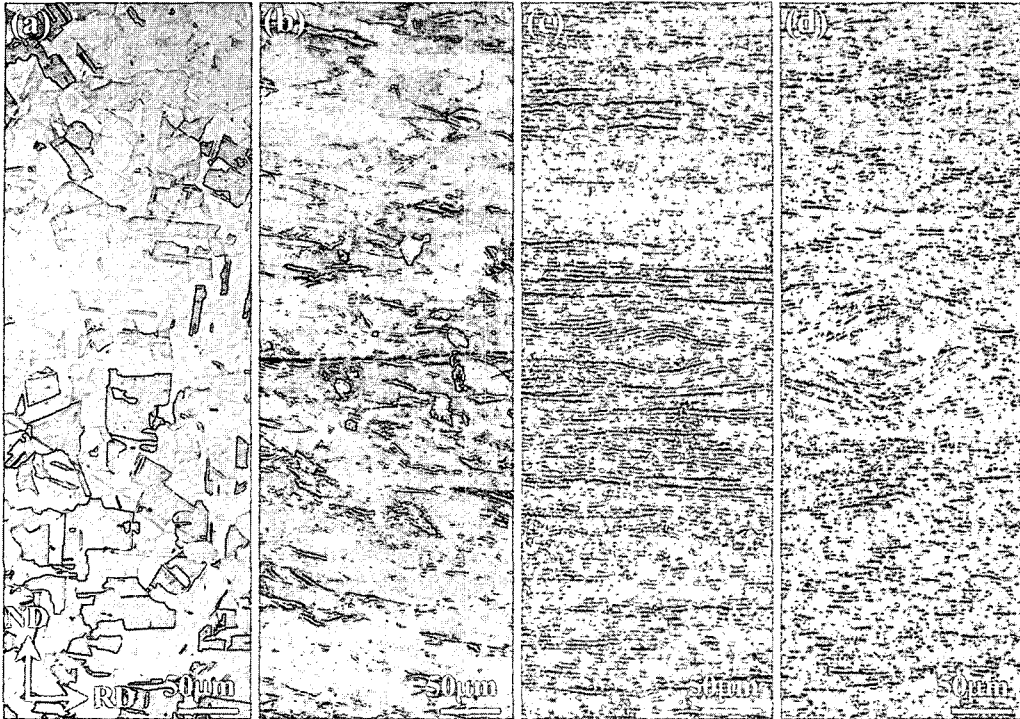
의 인장시험 및 경도시험으로 평가하였다. 인장시험을 위한 시편은 인장 방향이 압연 방향과 평행하도록 방전 가공으로 잘라서 준비하였다. 인장시험은 평행부의 길이가 32 mm, 폭이 6 mm의 인장 시편을 사용하여 Instron type의 인장 시험기를 사용하여  $10^{-3}\text{s}^{-1}$ 의 일정한 변형 속도로 행하였다. 경도시험은 마이크로 비커스 경도계를 사용하여 300 g의 하중에서 10초간의 압입시간으로 행하였다. 집합조직(texture)은  $\text{CuK}\alpha$ 선 40 kV, 30 mA을 이용하여 Schultz의 반사법으로 측정하였으며, 무방향성 표준 시료에 의하여 규격화하여 {111} 불완전 극점도(pole figure)를 작성하였다.

## 3. 결과 및 고찰

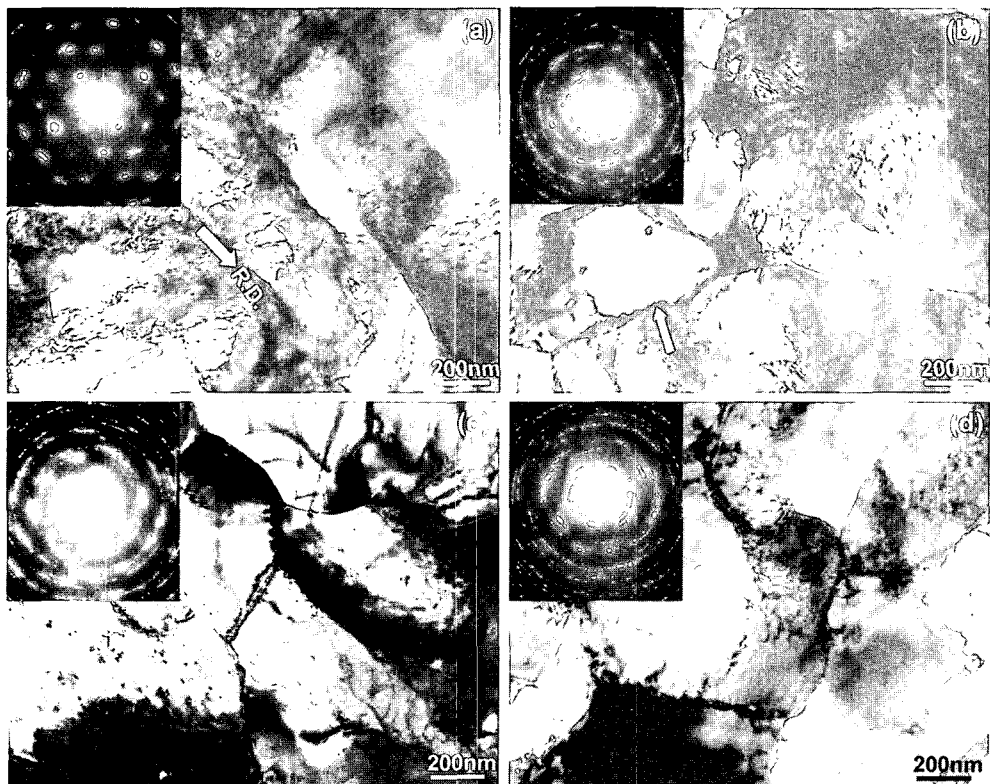
### 3.1 ARB에 따른 무산소동의 미세조직의 변화

Fig. 2는 ARB의 사이클 수에 따른 무산소동의 광학현미경 조직사진의 변화를 보여준다. ARB 전의 조직은 완전 어닐링된 상태이므로 평균입径이  $60\ \mu\text{m}$ 의 전형적인 재결정 조직을 나타내며 어닐링 쌍정(twin)의 모습도 많이 관찰된다. 1c (c: 사이클)후는 결정립들이 압연방향으로 연신된 전형적인 압연가공조직을 나타내며, 5c 후에는 결정립의 형상을 거의 식별할 수가 없을 정도로 결정립이 미세화되어 있음을 알 수 있다.

Fig. 3은 ARB 후에 시편의 두께방향에 수직인 면(ND면)에서 관찰된 TEM 조직사진을 나타낸다. 각 조직사진의 우측상단에 있는 회절도형은 각 조직의 중심에서 직경  $3\ \mu\text{m}$  범위에 조리개를 삽입하여 찍은 제한시야회절(selected area diffraction, SAD) 도형을 나타낸다. 1c 후의 시편은 전형적인 가공조직인 전위셀 조직(dislocation cell structure)을 나타내고 있으며, 셀이 압연방향(rolling direction, RD)으로 연신되어 있음을 알 수 있다. [011] 정대축(zone axis)에서 촬영하여 얻은 SAD 도형도 전위의 도입으로 인한 회절반점의 퍼짐이 나타나 있을 뿐 FCC구조의 전형적인 모양을 나타낸다. 3c 후의 시편[Fig. 3(b)]은 1c 후의 시편과는 달리 전위밀도가 크게 감소되어 있고, 동적회복(dynamic recovery)으로 인하여 초미세한 아결정립(subgrain)들이 형성되어 있음을 확인할 수 있다. 또한, SAD도형도 1c 후의 시편과는 달리 회절반점의 퍼짐현상이 두드러지며 여분의 회절반점도 많이 나타나 거의 드바이링(Debye ring)에 가까운 모양을 나타낸다. 이것은 형성된 초미세한 아결정립이 AI의 경우와 같이<sup>14)</sup> 고경각입계를 가진 독립된 결정립임을 시사해 준다. Fig. 4(a)는 Fig. 3(b)의 암시야상을 나타내는데, 명시야상에서 화살표로 표시되어 있는 부분이 독립된 초미세한 결정립이며 그 크기가 약 450 nm인 것을 알 수 있다. 6c 후의 시편도 3c 후의 시편과 유사하게 초미세한 결정립 조직을 나타내지만 전위밀도의 감소, 결정립 크기의 증가 외



**Fig. 2.** Optical microstructures of oxygen free copper before ARB(a), after 1 cycle(a), 5 cycles(b), 8 cycles(c) respectively. Observed at the plane perpendicular to the transverse direction (TD plane).



**Fig. 3.** TEM microstructures and the corresponding SAD patterns of oxygen free copper processed by ARB of 1 cycle(a), 3 cycles(b), 6 cycles(c) and 8 cycles(d), respectively.

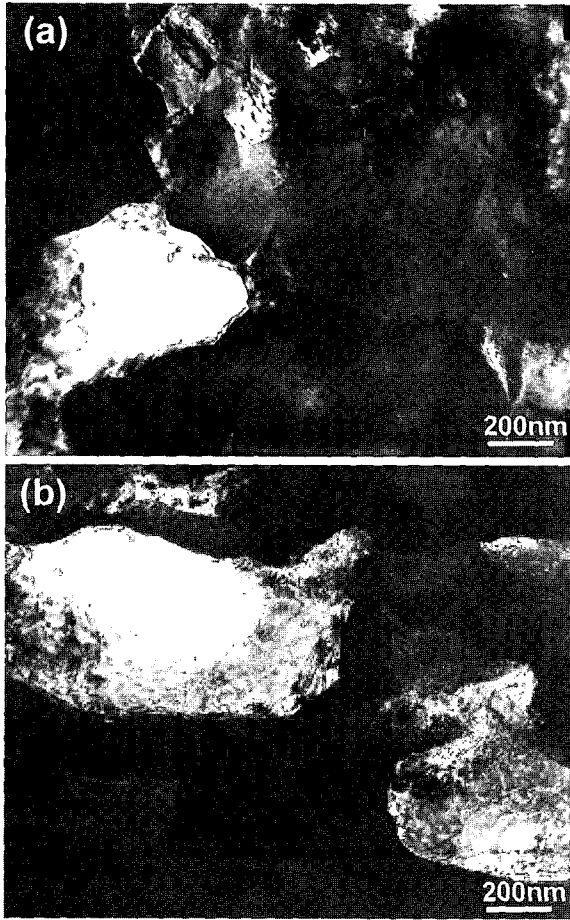


Fig. 4. Dark-field images of ultrafine grains developed by ARB of 3 cycles(a) and 8 cycles(b).

에도 결정립계가 더욱 선명해진 것들의 변화가 있음을 확인할 수 있다. 8c 후의 시편은 6c 후의 시편과 매우 유사한 초미세결정립 조직을 나타낸다. 8c 후에 형성된 초미세결정립의 암시야상이 Fig. 4b에 나타나 있는데 3c 후의 시편에서 형성된 초미세결정립[Fig. 4(a)]에 비해 다소 큰 것을 확인할 수 있다. ARB사이클 수의 증가에 따른 이러한 TEM미세조직의 발달과정은 ARB된 Al 합금들에서 보고되는 것들<sup>3,6)</sup>과 다음과 같은 점에서 다소 상이하다. 첫째, 일반적으로 ARB에 의해 형성되는 초미세결정립은 보통 3c에서 부분적으로 형성되기 시작하여 5c 내지는 6c에서 대부분의 영역으로 확대된다. 그러나 무산소동의 경우는 3c 후에 거의 모든 영역에서 초미세한 결정립이 형성된다. 둘째, ARB된 타 재료들에서 형성된 초미세 결정립은 사이클 수가 증가해도 초미세결정립 크기에는 변화가 거의 없었다. 그러나, 본 연구에서는 Fig. 4에서와 같이 사이클 수가 증가함에 따라 형성된 결정립의 크기가 다소 증가하였다. ARB에 있어서 초미세결정립의 형성은 주로 동적회복으로 인한 것이다. 그러므로 ARB에 따른 미세조직의 형성의 차이는 동적회복에

영향을 주는 적층결합에너지, 온도, 변형량 등의 차이로 설명해야 할 것이다.<sup>15)</sup> 그런데, 동은 알루미늄에 비해 적층결합에너지가 작으므로 동적회복의 발생이 더 어려울 것이다. 그러므로 적층결합에너지로는 두 재료의 조직형성의 차이를 설명하기 어렵다. 또한, 도입된 변형량은 같은 사이클의 경우 거의 동등하다고 할 수 있으므로 변형량에 의한 차이를 인정하기도 어렵다. 그러므로 온도의 차이가 조직형성의 차이에 가장 큰 영향을 끼쳤으리라 판단된다. 일반적으로 용질원자들은 전위의 이동을 방해하거나 원자공공의 이동도를 감소시키므로 회복의 진행을 어렵게 하는 작용을 하므로 온도가 높을수록 회복이 용이하게 일어난다.<sup>15)</sup> 그러므로 99.99%의 순도를 가진 무산소동이 99.9% 순도의 1100 Al<sup>3)</sup> 및 더 낮은 순도의 6061 Al<sup>6)</sup>에 비해 동적회복이 더욱 활발하게 발생했을 것이라 사료된다. 이것은 고순도(99.999%)Al<sup>16)</sup>에서 1100 Al과 6061 Al에 비해 더 적은 변형량에서 회복이 발생했던 것에서도 예상할 수 있는 결과라 할 수 있다.

### 3.2 ARB된 무산소동의 기계적 성질

#### 3.2.1 인장 특성

Fig. 5는 ARB 전과 후의 무산소동의 공칭응력-공칭변형을 곡선을 나타낸다. ARB전의 재료는 완전 어닐링된(full-annealed) 상태의 무산소동이므로 강도가 낮고 비교적 큰 균일 연신율(uniform elongation)을 나타낸다. 그러나 1c 후( $\epsilon \sim 0.8$ )의 재료에서는 강도는 크게 증가하지만 연신율이 크게 감소한다. 3c 이후( $\epsilon > 2.4$ )의 재료들도 1c 후의 재료와 유사한 곡선을 나타내지만, 1c 재료에 비해 강도의 증가가 미미하며, 오히려 연신율(특히, 국부연신율)이 다소 증가하는 경향을 나타낸다. 이와 같이 3c 이후에 변형량이 증가함에도 불구하고 강도의 증가가 미미한 것은 앞에서 설명하였듯이 압연 중에 동적회복이 활발히 일어났기 때문이라 사료된다. 또한, 3c 이후 결정립 크기가 증가했음에도 불구하고 인장강도가 증가한

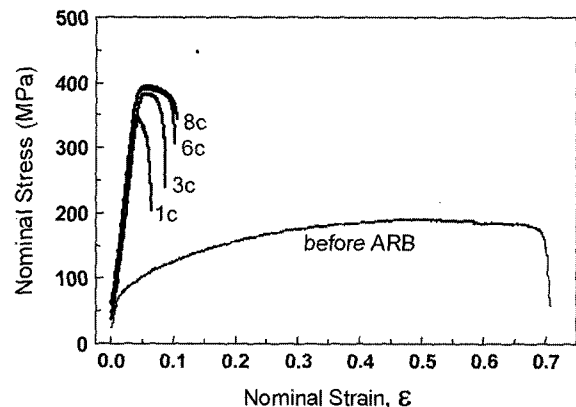
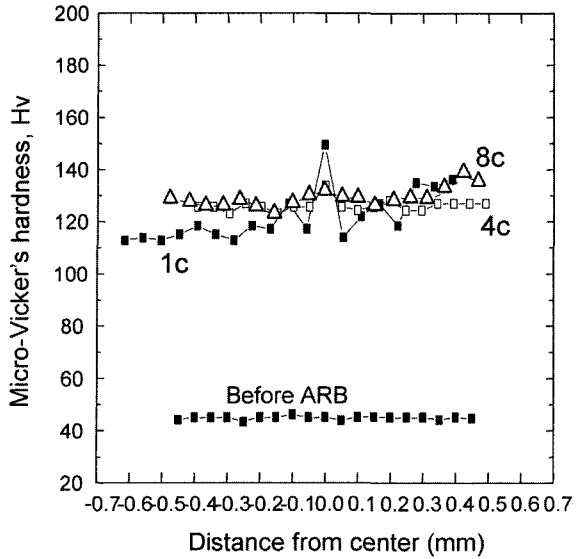


Fig. 5. Nominal stress-nominal strain curves of oxygen free copper severely deformed by ARB process.



**Fig. 6.** Micro-Vicker's hardness distribution in thickness direction of oxygen free copper severely deformed by ARB process.

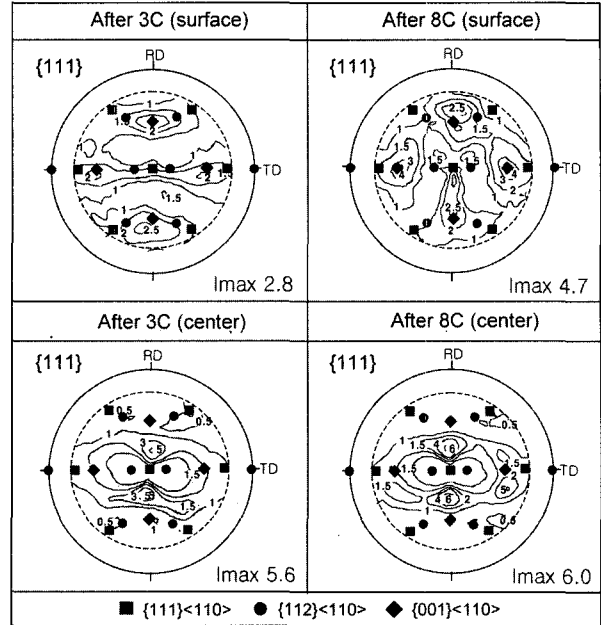
것은 ARB 사이클 수가 증가함에 따라 표면처리(wire-brushing) 후 재료 내부에 의해 도입되는 가공경화층과 산화물의 양이 많아져 강화에 기여했기 때문이라 사료된다.<sup>6)</sup> ARB된 무산소동의 이와 같은 인장 특성은 변형량의 증가에 따라 강도가 꾸준히 증가했던 몇몇 알루미늄 합금들의 결과와 대조적이다. 그럼에도 불구하고 8c 후 ( $\epsilon \sim 6.4$ )에 무산소동의 강도(395MPa)가 ARB전(191MPa)에 비해 약 2.1배 증가한 것은 주목할만하다 할 수 있다.

3.2.2 경도

Fig. 6에 ARB 전과 후의 두께방향으로의 경도시험 결과를 나타내었다. ARB전의 시편은 두께방향으로 약 45 Hv의 균일한 경도 값을 나타내지만 1c 후에는 중심부위가 큰 다소 불균일한 경도분포를 나타내며, 그 절대값도 약 2.7배 증가하였다. 중심부위의 이와 같은 큰 경도값은 wire-brushing으로 인해 생긴 가공경화층과 산화물에 기인한 것이다.<sup>6)</sup> 그러나, 4c 후의 시편에서는 부여된 가공량(변형량)이 1c의 경우보다 큼에도 불구하고 경도의 증가량은 더 작음을 알 수 있다. 또한, 다른 부위의 상대적인 경도 값의 증가로 인하여 두께방향의 경도의 불균일성도 크게 감소한 것을 알 수 있다. 8c 후는 4c 후의 시편과 비교하여 경도의 증가가 없으며 두께방향으로의 경도분포도 거의 같음을 보여준다. 이와 같은 ARB 사이클 수에 따른 경도의 변화는 공칭응력-공칭변형률 곡선[Fig. 5]에 있어서의 인장강도의 변화와 잘 대응한다.

3.3 ARB된 무산소동의 집합조직 특성

Fig. 7에 3c 및 8c 후의 무산소동의 두께방향에서의 중



**Fig. 7.** {111} incomplete pole figures taken at surface and center in thickness direction of oxygen free copper severely deformed by ARB process.

심과 표면부위 (자유표면에서 약 200  $\mu\text{m}$  안쪽부위)에서 측정된 {111}극점도를 나타내었다. 표면부위는 3c과 8c 재료 모두 전단집합조직 성분인 {001}<110> 및 {111}<110>이 주로 발달한 집합조직을 나타낸다. 이러한 전단 집합조직은 일반적으로 압연 롤 표면과 피가공 재료 사이의 마찰계수가 큰 조건에서의 압연에서 자주 나타나는 것으로, 압연 중에 재료 표면 부위에 도입되는 여분의 전단변형(redundant shear deformation)이 그 주된 원인이다.<sup>5)</sup> 본 연구에서도 무운할 조건에서 ARB를 하였으므로 시편의 표면부위에 여분의 전단변형이 도입되었을 것이고 그것이 전단집합조직 형성에 기여하였을 것이다. 이러한 전단집합조직의 발달정도는 ARB사이클 수가 클수록 증가할 것이므로 3c 후의 재료보다 8c 후의 재료에서 그 최대 세기(max intensity)가 크다. 그런데 ARB에 있어서 이와 같이 표면부위에 도입된 전단변형은 그 다음 사이클에 있어서 중심부위로 위치하게 된다. 그러므로 중심부위의 집합조직에서도 전단집합조직이 나타날 가능성이 존재한다. 그러나, 그림에서와 같이, 전단성분은 거의 발달하지 않고, 3c과 8c 재료 모두 전형적인 압연 집합조직(rolling texture)이 형성된다. 이것은 표면부위에 형성되었던 전단집합조직 성분들이 중심부위에 놓이게 될 경우 압연 중에 소멸된다는 것을 나타낸다. 이와 같은 현상은 알루미늄합금의 ARB에서도 보고된 바 있으며,<sup>3)</sup> ARB재료의 집합조직의 형성에 있어서 최종단계의 변형 모드가 집합조직 형성에 중요한 역할을 한다는 것을 확인시켜 준다.

#### 4. 결 론

ARB법에 의해 강소성가공된 무산소동의 미세조직 및 기계적 특성을 조사한 결과 다음과 같이 요약할 수 있다. ARB된 다른 AI 합금들과는 달리, 초미세결정립은 3c 이후에 거의 모든 영역에서 형성되며, ARB 사이클 수가 증가함에 따라 결정립의 크기가 다소 증가한다. 강도 및 경도는 사이클 수가 증가함에 따라 증가하나 3c 이후에는 그다지 증가하지 않는다. 이와 같은 미세 조직의 형성 및 기계적 특성은 동적회복으로 설명할 수 있다. 집합조직은 모든 ARB가공된 재료에 있어서 두께방향의 표면부근에는 전단집합조직을, 중심부근에는 압연집합조직을 나타낸다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부 21세기 프론티어 연구개발사업인 '나노소재기술개발사업단'의 지원(과제번호: 03K1501-00312)으로 수행되었습니다.

#### 참 고 문 헌

1. R. Z. Valiev, N. A. Krasilnikov and N. K. Tsenev, *Mater. Sci. Eng.*, **A137**, 35 (1991).
2. R. Z. Abdulov, R. Z. Valiev and N.A. Krasilnikov, *Mater. Sci. Lett.*, **9**, 1445 (1990).
3. Y. Saito, N. Tsuji, H. Utsunomiya, T. Sakai and R. G. Hong, *Scripta Mater.*, **39**, 1221 (1998).
4. N. Tsuji, Y. Saito, H. Utsunomiya and S. Tanigawa, *Scripta Mater.*, **40**, 795 (1999).
5. S. H. Lee, Y. Saito, N. Tsuji, H. Utsunomiya and T. Sakai, *Scripta Mater.*, **46**, 281 (2002).
6. S. H. Lee, Y. Saito, T. Sakai and H. Utsunomiya, *Mater. Sci. Eng.*, **A325**, 228 (2002).
7. S. H. Lee, Y. Saito, K. T. Park and D. H. Shin, *Mater. Trans.*, **43**, 2320 (2002).
8. S. H. Lee, H. Inagaki, H. Utsunomiya, Y. Saito, T. Sakai, *Mater. Trans.*, **44**, 1376 (2003).
9. Y. Saito, H. Utsunomiya and H. Suzuki, *Proc. Inst. Mech. Eng. Ser. B*, **215**, 947 (2001).
10. J. Y. Huang, Y. T. Zhu, H. Jiang and T. C. Lowe, *Acta Mater.*, **49**, 1497 (2001).
11. H. Utsunomiya, R. Souba, T. Sakai and Y. Saito, *Mater. Sci. Forum*, **462/432**, 2681 (2003).
12. T. Sakai, Y. Saito, T. Kanzaki, N. Tamaki and N. Tsuji, *J. of the JCBRA*, **40**, 213 (2001).
13. Y. H. Jang, S. S. Kim, S. Z. Han, C. Y. Lim, C. J. Kim and M. Goto, *Scripta Mater.*, **52**, 21 (2005).
14. X. Huang, N. Tsuji, N. Hansen and Y. Minamino, *Mater. Sci. Eng.*, **A340**, 265 (2003).
15. F. J. Humphreys and M. Hatherly, *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, 1st ed., p.129, Elsevier Science Ltd., England, (1995).
16. S. H. Lee, *J. of Kor. Pow. Met. Inst.*, **12**, 30 (2005).