

## ARB법에 의해 강소성가공된 무산소동의 어닐링 특성

이성희<sup>†</sup> · 조 준 · 이충효 · 한승전\* · 임차용\*

목포대학교 신소재공학과

\*한국기계연구원 재료연구부

## Annealing Characteristics of Oxygen Free Copper Severely Deformed by Accumulative Roll-Bonding Process

Seong-Hee Lee<sup>†</sup>, Jun Cho, Chung-Hyo Lee, 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 8월 3일 받음, 2005년 8월 20일 최종수정본 받음)

**Abstract** An oxygen free copper severely-deformed by eight cycles (an equivalent strain of ~6.4) of accumulative roll-bonding (ARB) was annealed at various temperatures ranging from 100 to 300°C. The annealed copper was characterized by transmission electron microscopy (TEM) and tensile & hardness test. TEM observation revealed that the ultrafine grains developed by the ARB still remained up to 150°C, however above 200°C they were replaced by equiaxed and coarse grains due to an occurrence of the static recrystallization. Tensile strength and hardness of the copper decreased slightly with the annealing temperature up to 150°C, however they dropped largely above 200°C. Annealing characteristics of the copper were compared with those of a commercially pure aluminum processed by ARB and subsequently annealed.

**Key words** Accumulative roll-bonding, annealing, oxygen free copper, transmission electron microscopy, mechanical property.

### 1. 서 론

최근 많은 주목을 받고 있는 구속전단가공법(Equal Channel Angular Pressing, ECAP),<sup>1)</sup> 극한비틀림변형법(Severe Torsional Straining, STS),<sup>2)</sup> 반복겹침접합압연법(Accumulative Roll-Bonding, ARB),<sup>3-8)</sup> 연속전단법(Con-shearing),<sup>9)</sup> 반복주름압연법(Repetitive Corrugation and Straightening, RCS)<sup>10)</sup> 등과 같은 강소성가공법(severe plastic deformation process)은 종래의 가공법과는 달리, 결정립 크기를 1  $\mu\text{m}$  이하까지 초미세화 시키는 점 외에도 시편의 형상을 거의 변화시키지 않는다는 점에서도 획기적이라 할 수 있다. 특히, ARB법은 연속공정이 가능한 압연을 이용한 공정이므로 생산성이 높으며 비교적 큰 재료에도 적용이 가능하므로 실용 가능성이 높은 프로세스라 할 수 있다. 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.

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 효과적인 방법이라 사료된다. 본 저자들은 이전 연구<sup>11)</sup>에서 ARB법이 무산소동의 고강도화에 효과적인 방법임을 입증하였다. 그러나, 다른 ARB된 금속들<sup>3,4)</sup>과 유사하게 무산소동에서도 연성이 크게 감소하는 경향을 나타내었다. 어닐링은 이와 같은 낮은 연성을 개선하는 방법들 중의 하나라 할 수 있다. 실제로 ARB가공된 알루미늄 및 극저탄소IF강 등에 대해서는 어닐링 거동에 대한 연구가 많이 보고되고 있

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

다.<sup>5,7)</sup> 그러나 동에 대한 어닐링 특성은 아직까지 보고된 바가 거의 없다. 본 연구에서는 ARB에 의해 강소성 가공된 무산소동의 어닐링 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. 실험용 시편은 두께 1 mm, 폭 30 mm, 길이 300 mm의 판재이다. ARB공정은 8사이클(상당변형량  $\epsilon \sim 6.4$ )까지 이전 연구와 동일한 조건에서 동일한 방법으로 행하였다. 8c-ARB 가공된 무산소동을 100~300°C (50°C 간격)사이의 여러 온도에서 10분간 어닐링하였다.

8c-ARB가공 및 어닐링 처리한 시편의 미세조직은 투과전자현미경(TEM)으로 관찰하였다. TEM관찰용 시편은 Fig. 1에 나타난 것과 같이 ND (Normal Direction)면과 TD (Transverse Direction)면에서 방전가공기로 잘라내어 100  $\mu\text{m}$  이하로 연마한 후, 약 -20°C 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 상온에서의 인장시험 및 경도시험으로 평가하였다. 인장시험을 위한 시편은 인장 방향이 압연 방향과 평행하도록 방전가공기로 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 변형률 속도로 행하였다. 경도시험은 마이크로 비커스 경도계를 사용하여 300 g의 하중에서 10초간의 압입시간으로 행하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 ARB 가공된 무산소동의 미세조직 및 기계적 성질

Fig. 2는 8c-ARB 가공 후(어닐링 전)의 ND면 및 TD

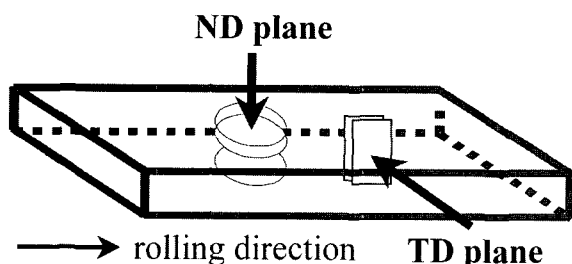


Fig. 1. Schematic illustration of the planes for TEM observation of the ARBed and annealed specimen.

면에서 관찰된 TEM 조직사진이다. 각 조직사진의 우측 상단의 회절도형은 각 조직의 중심에서 직경 3  $\mu\text{m}$  범위에 조리개를 삽입하여 찍은 SAD (Selected Area Diffraction) 도형을 나타낸다. 이하 모든 SAD 도형은 동일한 방법으로 촬영된 것이다. 8c-ARB 가공된 무산소동의 미세조직은 ND면(Fig. 2(a))에서는 등축(Equiaxed)의 모양을 하고 있고, TD면에서는 압연방향(RD)으로 연신된 빵케익(pancake) 모양의 초미세결정립 조직을 나타낸다. ND방향의 SAD도형에서는 회절반점의 퍼짐이 두드러지며 여분의 회절 반점도 많이 관찰되어 초미세결정립들 사이의 방위차가 비교적 큰 것을 알 수 있다. 그러나 TD방향에서는 ND방향에 비해 단순한 모양의 SAD도형을 나타내고 있어 결정립들 사이의 방위차가 상대적으로 작음을 시사해 준다. 이와 같은 초미세결정립 무산소동의 인장강도는 408 MPa, 연신율은 6.9%를 나타내었다.

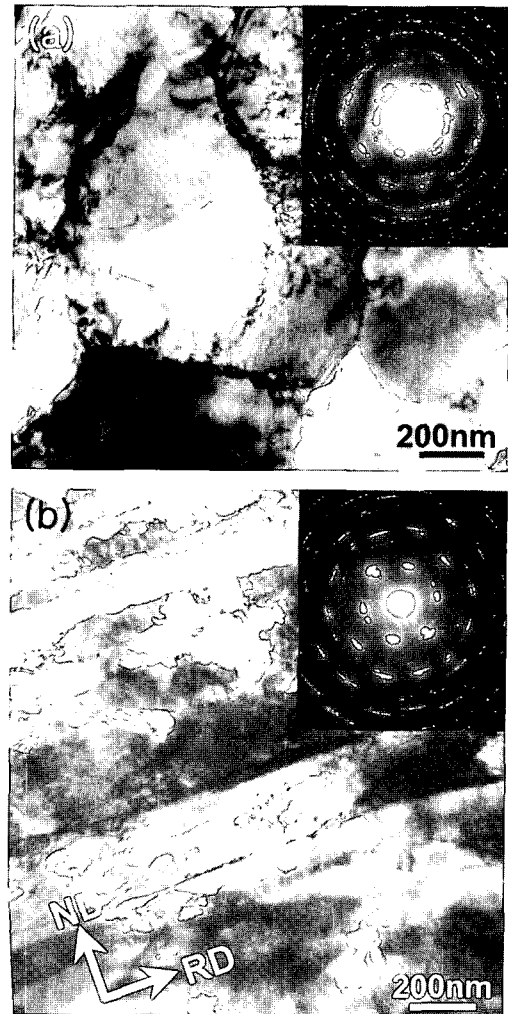


Fig. 2. TEM microstructures and the corresponding SAD patterns of as the ARB-processed copper. Observed from (a) ND plane (b) TD plane.

### 3.2 어닐링에 따른 무산소동의 미세조직 변화

Fig. 3은 8c-ARB 가공 후 어닐링된 무산소동의 가열 온도에 따른 TD면에서의 TEM 조직사진의 변화를 나타낸다. 100°C에서 어닐링된 시편은 ARB후의 시편(Fig. 2(b))과 유사하게 압연방향으로 연신된 층상(lamella)조직을 나타낸다. SAD 도형도 어닐링 전과 유사하며 회절반점의 퍼짐과 여분의 회절반점을 나타낸다. 150°C에서 어닐링된 시편의 경우도 100°C의 조직과 유사하여 압연 방향으로 연신된 초미세조직을 나타내지만 회복(recovery)으로 인하여 전위밀도가 다소 감소하였으며 결정립의 크기(두께)가 약간 증가한 것을 알 수 있다. 그러나 200°C에서 어닐링된 시편의 경우는 150°C까지의 조직과는 완전히 다른 조직을 나타낸다. Fig. 3(c)에서와 같이, 정적 재결정(static recrystallization)이 발생하여 결정립 크기가

크게 증가하였으며 모양도 거의 등축(equiaxed)의 형태를 보여 준다. SAD 도형에서도 150°C까지 어닐링된 재료에서 나타났던 회절반점의 퍼짐과 여분의 회절반점은 거의 나타나지 않고 규칙적인 망상(net pattern)을 나타내고 있으며 이것은 재결정으로 인하여 결정립이 조대해졌음을 뒷받침해 준다. 이와 같은 조대한 결정립 조직은 Fig. 3(d)에서와 같이 250°C에서 어닐링된 시편에서도 나타남을 알 수 있다.

이상과 같이 ARB에 의해 강소성가공된 무산소동의 어닐링에 따른 미세조직의 변화는 순알루미늄(AA1100) 및 IF steel의 그것과는 다소 차이가 있다. Tsuji그룹은 ARB 가공된 1100-Al과 IF steel의 어닐링 거동은 서로 매우 유사하며 저온과 고온에 있어서 다른 기구(mechanism)에 의해 결정립이 성장한다고 설명하고 있다.<sup>5)</sup> 즉, 저온(Al

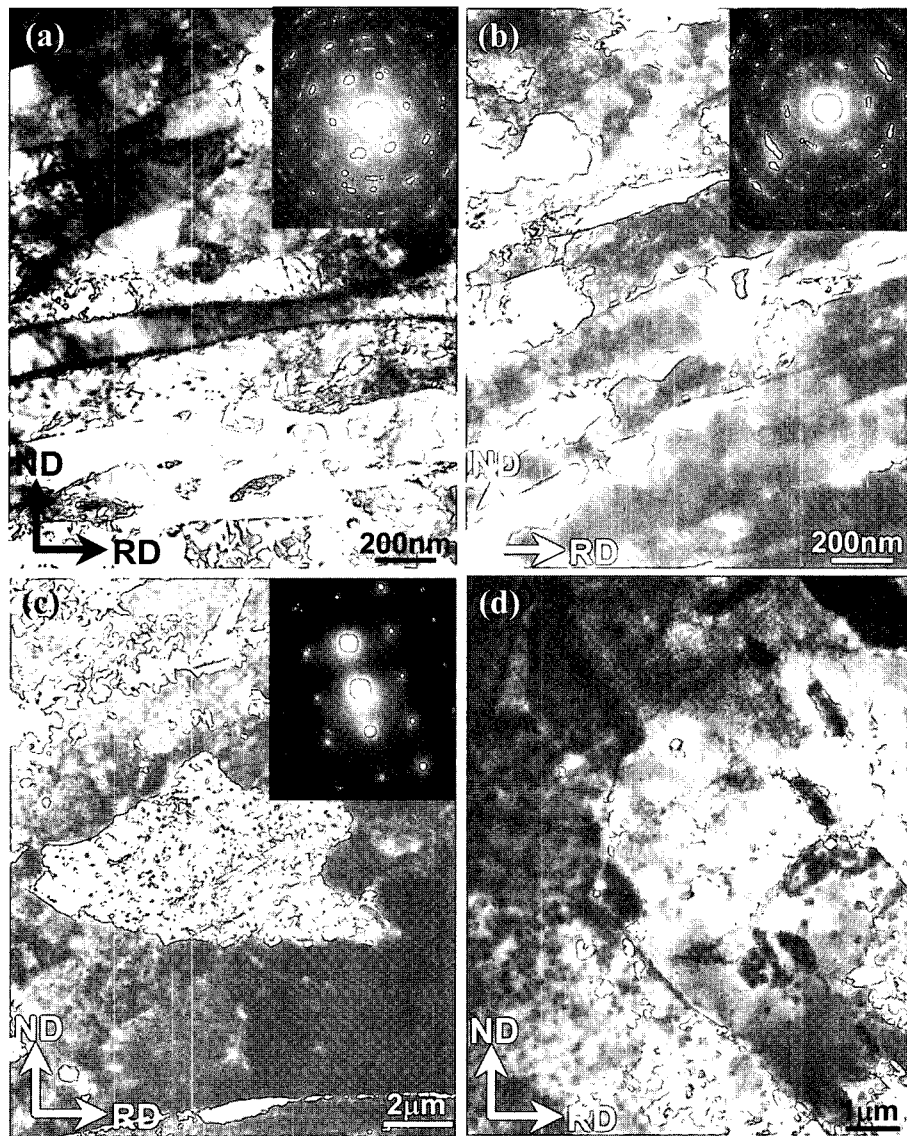


Fig. 3. TEM microstructures of oxygen free copper annealed at various temperatures after the ARB. Observed from TD plane after annealing at (a) 100°C (b) 150°C (c) 200°C (d) 250°C.

의 경우, 225°C 이하)에서는 온도가 증가함에 따라 회복으로 인해 초미세결정립 내부의 전위밀도가 감소함과 동시에 특히 두께방향으로 결정립이 점차적으로 성장하여 결국은 등축 모양의 결정립이 되고, 고온에서는(AI의 경우, 250°C 이상) 회복을 동반한 일종의 정상적 결정립 성장(normal grain growth)으로 결정립이 조대해진다고 설명하고 있다. 즉, 일반적인 정적 재결정은 발생하지 않으며 회복에 의해서만 결정립이 성장한다는 것이다. 이와 같은 어닐링에 따른 미세조직의 변화과정은 in-situ TEM 관찰<sup>12)</sup>에 의해서도 입증되고 있다. 그러나, 무산소동의 경우, 앞에서 설명한 것과 같이, 저온(150°C 이하)에서는 AI과 유사하게 회복에 의해 전위밀도가 감소하고 결정립의 크기가 다소 증가하나, 고온(200°C 이상)에서는 AI과는 달리 정적 재결정으로 인해 조대한 결정립 조직을 나타내었다. 두 재료의 이와 같은 어닐링 거동의 차이는 여러 가지 요인이 있을 수 있으나 적층결합에너지의 차이가 가장 큰 요인이라 사료된다. 알루미늄의 적층결합에너지( $\sim 166 \text{ mJm}^{-2}$ )는 동이의 그것( $\sim 78 \text{ mJm}^{-2}$ )에 비해 약 2배 이상 크므로 회복이 더욱 용이하게 발생한다.<sup>13)</sup> 잘 알려진 대로 회복과 재결정은 서로 경쟁적 관계에 있다. 그러므로 어닐링 과정에서 회복이 활발히 발생하게 되면 재결정을 위한 구동력을 낮추게 되어 재결정의 발생은 어렵게 된다. ARB된 1100-AI의 어닐링 거동에서 나타난 현상이 여기에 해당된다고 사료된다. ARB된 무산소동의 경우, 저온에서는 새로운 핵생성(재결정)을 위한 구동력이 충분하지 않아 회복이 발생하였으나, 고온에서는 충분한 구동력이 되어 회복보다 정적 재결정이 우선적으로 발생하였으리라 사료된다.

### 3.3 어닐링에 따른 무산소동의 기계적 성질의 변화

#### 3.3.1 인장 특성

Fig. 4는 8c-ARB 가공 후 어닐링된 무산소동의 가열

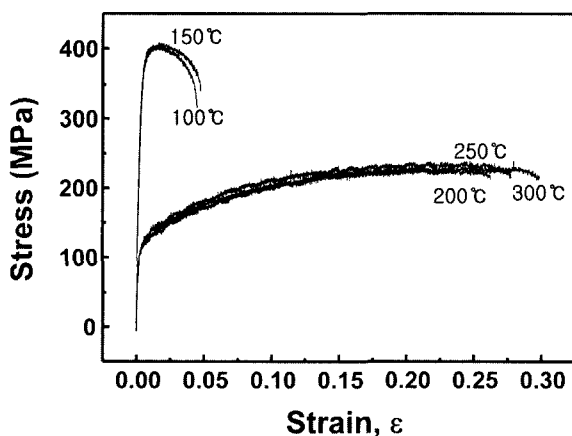


Fig. 4. Changes in nominal stress-nominal strain curves with annealing temperature of the ARB-processed copper.

온도에 따른 공칭응력-공칭변형(s-s) 곡선의 변화를 나타낸다. 100°C 및 150°C에서 어닐링된 시편의 경우, ARB 가공된 재료와 유사하게 큰 인장강도와 낮은 연신율을 나타낸다. 그러나 200°C 이상의 온도에서 어닐링된 재료는 150°C 까지의 곡선과 전혀 다른 모양을 나타낸다. 즉, 낮은 강도와 높은 연신율을 나타내며 가공(변형)경화도 현저하게 나타난다. Fig. 5에 어닐링된 무산소동의 가열 온도에 따른 기계적 특성의 변화를 나타내었다. 그림에서와 같이, 인장강도 및 항복강도는 150°C까지 어닐링 온도가 증가함에 따라 다소 감소하다가 200°C에서 급격하게 감소한다. 연신율은 강도와 상반된 경향을 나타내며 150°C까지는 10% 이하의 낮은 값을 나타내다가 200°C에서 크게 증가한다. 이와 같은 가열 온도에 따른 기계적 성질의 변화는 미세조직의 변화와 잘 대응하며, 200°C에서 강도가 급격히 감소하고 연신율이 크게 증가한 것은 정적 재결정이 발생했기 때문인 것으로 사료된다. 이와 같은 어닐링 온도에 따른 기계적 성질의 변화도 고온까지 회복의 발생으로 강도가 점진적으로 감소했던 AI 및 IF steel의 경우<sup>5)</sup>와 비교된다 할 수 있다.

#### 3.3.2 경도

Fig. 6에 어닐링된 무산소동의 온도에 따른 두께방향

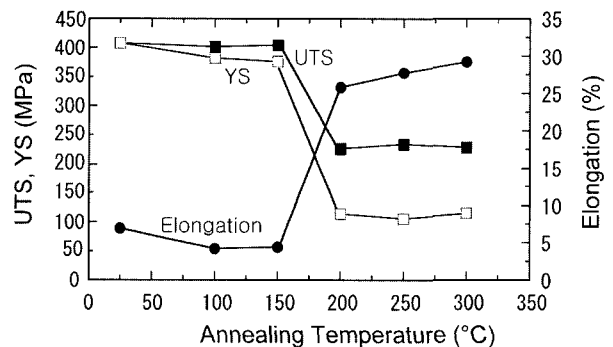


Fig. 5. Changes in mechanical properties with annealing temperature of the ARB-processed copper.

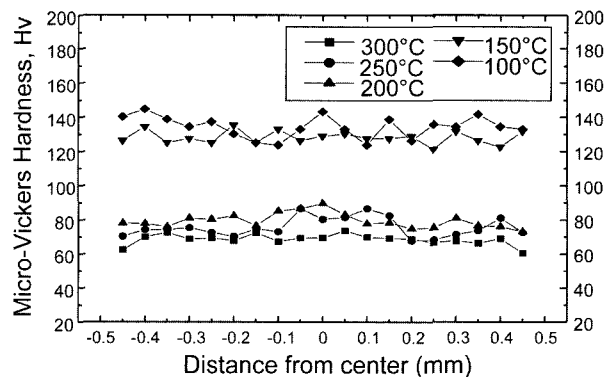


Fig. 6. Micro-Vickers hardness distribution in thickness direction of the annealed copper after the ARB.

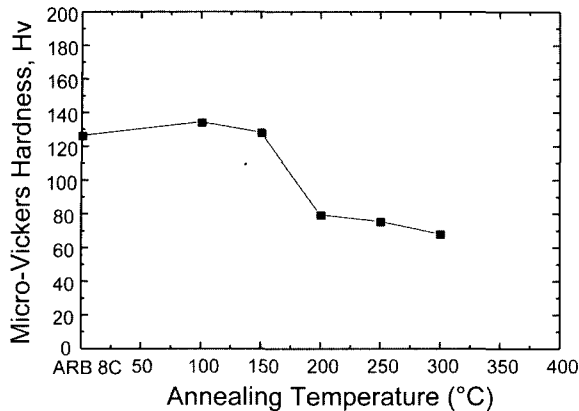


Fig. 7. Changes in micro-Vicker's hardness with the annealing temperature of the ARB-processed copper.

의 경도분포의 변화를 나타내었다. 100°C 및 150°C에서 어닐링된 시편의 경우, 120~140 Hv의 범위의 비교적 높은 값을 보이며, 부위에 따라 경도값에 차이를 보이는 불균일한 경도분포를 나타낸다. 그러나 200°C 이상에서는 경도값이 90 Hv 이하로 크게 감소하며 두께방향으로 비교적 균일한 경도분포를 나타낸다. Fig. 7은 어닐링된 무산소동의 가열 온도에 따른 경도값의 평균치의 변화를 나타낸다. 어닐링 온도가 150°C까지는 경도값의 큰 변화는 없지만 200°C 이상에서 정적 재결정으로 인해 크게 감소하는 것을 알 수 있다. 어닐링 온도에 따른 이와 같은 경도값의 변화는 인장강도의 변화곡선(Fig. 5)과 잘 대응한다.

#### 4. 결 론

8c-ARB에 의해 강소성가공된 무산소동의 어닐링 특성을 조사한 결과 다음과 같이 요약할 수 있다. ARB 가공에 의해 무산소동 내에 형성된 초미세립은 150°C까지는 초미세립의 형상을 그대로 유지하나 200°C 이상의 온도에서는 정적 재결정이 발생하여 등축정으로 크게 성장하였다. 인장강도 및 경도도 150°C의 어닐링 온도까지는

ARB 가공된 재료의 고강도를 그대로 유지하지만, 200°C 이상에서 크게 감소하였다. 연신율은 인장강도와 상반된 어닐링 거동을 나타내며 200°C 이상에서 크게 증가하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부 21세기 프론티어 연구개발사업인 '나노소재기술개발사업단'의 지원(과제번호: 05K1501-00231)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. N. Tsuji, Y. Ito, Y. Saito and Y. Minamino, Scripta Mater., **47**, 893 (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. S. H. Lee, J. Cho, S. Z. Han and C. Y. Lim, Kor. J. Mater. Res., **15**, 240 (2005).
12. N. Tsuji, Y. Ito, H. Nakashima, F. Yoshida and Y. Minamino, Mater. Sci. Forum, **423**, 396 (2002).
13. F. J. Humphreys and M. Hatherly, Recrystallization and Related Annealing Phenomena, 1st ed., p.129, Elsevier Science Ltd., England, (1995).