

임계상대밀도 모델을 이용한 분말 등통로각압축 공정시 분말 치밀화 거동

복천희 · 유지훈^a · 윤승채^b · 김택수^c · 천병선 · 김형섭^{a,*}
충남대학교 나노소재공학과, ^a포항공과대학교 신소재공학과,
^b포항공과대학교 항공재료연구소, ^c한국생산기술연구원

Analysis of Densification Behavior during Powder Equal Channel Angular Pressing using Critical Relative Density Model

Cheon Hee Bok, Ji Hoon Yoo^a, Seung Chae Yoon^b, Taek-Soo Kim^c,
Byong Sun Chun and Hyoung Seop Kim^{a,*}

Department of Nano Materials Engineering, Chungnam National University, Daejeon, 305-764, Korea

*^aDepartment of Materials Science and Engineering, Pohang University of Science and
Technology, San 31 Hyoja-dong, Pohang Kyungbuk, 790-784, Korea*

*^bCenter for Advanced Aerospace Materials, Pohang University of Science and Technology,
San 31 Hyoja-dong, Pohang Kyungbuk, 790-784, Korea*

*^cAdvanced Materials R&D Center, Korea Institute of Industrial Technology (KITECH),
7-47, Techno-Park Songdo, Yeosu, Incheon 406-130, Korea*

(Received August 6, 2008; Accepted September 30, 2008)

Abstract In this study, bottom-up powder processing and top-down severe plastic deformation processing approaches were combined in order to achieve both full density and grain refinement with least grain growth. The numerical modeling of the powder process requires the appropriate constitutive model for densification of the powder materials. The present research investigates the effect of representative powder yield function of the Shima-Oyane model and the critical relative density model. It was found that the critical relative density model is better than the Shima-Oyane model for powder densification behavior, especially for initial stage.

Keywords : Powder consolidation modeling, Equal channel angular pressing, Critical relative density, Densification behavior

1. 서 론

분말 성형은 기존에 잘 알려진 것과 같이, 경제성과 재료 절감의 효과를 활용하여 가공 성형시 높은 생산 속도와 우수한 성질을 얻을 수 있는 큰 효율성을 가지고 있어, 고강도 제품 제조 및 생산에 많은 관심을 받고 있다[1, 2]. 그러나 공정을 통해 얻은 분말 소결체가 이론 밀도를 가지지 못하게 될 경우와 열간 공정으로 인한 내부의 미세조직의 성장 및 재

결정, 그리고 분말 소결체 내에 잔류하는 기공 등과 같은 문제로 성형체의 기계적 특성이 저하되기 때문에 이를 해결하고자 하는 방안이 활발히 제시되고 있다[3-5].

또한 최근에는 나노 및 초미세 결정립 구조를 가지는 소재를 얻기 위해 나노 분말 제조 기술을 비롯한 많은 연구가 이루어지고 있는데, 그 중 기상응축법(Gas phase condensation)을 비롯한 고주파 플라즈마에 의한 화학적 합성(High frequency plasma

*Corresponding Author : [Tel : +82-54-279-2150; E-mail : hskim@postech.ac.kr]

chemical process), 수열합성법(Hydro thermal method) 등이 대표적이라 할 수 있으며, 이러한 공정들을 통해 제조된 분말의 탁월한 특성을 얻기 위해 단일상뿐 아니라 복합상으로 이용되기도 한다[6-8]. 그러나 이렇게 제조된 분말의 실용화를 통해 고부가가치 산업으로의 응용 범위를 확대하기 위해서는 유효 크기를 갖는 분말의 성형 및 치밀화 공정 연구가 필수적으로 진행되어야 한다. 현재까지 나노재료 벌크화를 위한 많은 분말야금 공정 연구들이 선행되었으나[9, 10], 아직 기술적으로 많은 어려움을 겪고 있다. 또한 분말야금 공정을 통해서 제조된 벌크 소재의 밀도를 높이는 동시에 분말의 내부 결정립 성장을 최소화시키려는 연구가 이루어지고 있는데, 특히 나노/초미세 분말의 경우, 이를 효과적으로 제어하고자 하는 공정 연구가 집중된 관심을 받고 있다[2, 10]. 이러한 문제들을 효과적으로 대처할 수 있는 분말 가공 공정들이 다방면으로 연구가 진행되었고, 그 대표적인 적용 사례 공정이 강소성 공정(Severe plastic deformation: SPD)이라 할 수 있다.

일반적으로 사용되어진 강소성 공정은 벌크 소재를 심한 전단 변형에 의한 전위 증식으로 초미세나노 결정립을 제조하는 공정이며, 대표적으로는 등통로각압축 공정(Equal channel angular pressing: ECAP), 고압비틀림 공정(High pressure torsion: HTP) 그리고 누적 압연 접합 공정(Accumulative roll bonding: ARB)이 있다[11-15].

ECAP 공정의 경우, 소재의 단면 형상 변화 없이 전단소성변형을 주어 초미세나노 소재를 얻을 수 있는 간단한 공정으로서 각광을 받고 있으며, 단 1회의 공정에서 다단의 반복 공정을 통해 소재에 부여할 수 있는 변형률을 제어할 수 있는 큰 장점을 가지고 있다[16-18]. 특히 분말 ECAP 가공 공정의 경우, 분말 성형에 있어서 가공 하중/압력과 밀도 그리고 여러 가지 복잡한 실험 공정 변수로 인해 소재의 물성을 결정하는 치밀화 거동과 가공 하중 및 압력에 대한 최적화 설계 및 타당도 검증과 관련된 연구가 미흡한 실정이다. 이에 분말 성형 소재의 분말 성형 공정시 하중/압력과 밀도와의 관계를 위해 많은 연구가 이루어져 왔으며, 실험을 통해 초기 밀도, 압력, 온도 그리고 시간과 같은 여러 변수들에 대한 복잡한 공정 요인을 제시하고 있다[3, 10, 14]. 분말 성형체의 물리적 특성 및 실험 공정을 연구하기 위해서 실제

실험상 영향을 미치는 공정 변수에 대한 연구가 반드시 선행되어야 하며, 또한 타당성을 높이기 위한 이론적 기초를 바탕으로 여러 공정에 적용함으로써 분말 소재 성형시 발생하는 여러 공정 변수에 대한 정량적인 논의가 되어야만 한다[2, 3, 10].

이에 본 연구에서는 기존에 분말 치밀화 모델로 사용된 실험식에 기초한 Shima 모델과 물리적 의미를 가지고 있는 Critical relative density 모델(CRD 모델)을 통해 분말 ECAP 공정시 발생하는 분말 치밀화 거동을 고찰하고자 한다[1, 19].

2. 분말성형모델 이론 및 유한요소 조건

분말 소재 성형은 기존의 가압성형-소결 공정을 거친 후 분말 단조, 분말 압출, 분말 압연 등의 공정을 사용하게 되는데, 이때 분말 예비 성형체의 실질적인 치밀화 거동을 통해 최종 형상을 얻게 된다. 이를 통해 여러 공정 변수 및 설계 변수 등을 이용하여 실험적 연구와 이론적 연구의 조합으로 공정 최적화를 도출하게 된다[1-3].

그러나 이러한 연구과정에서 존재하는 여러 변수들을 조절하며 반복 실험을 수행할 경우, 실험의 재현성을 보장할 수 없을 뿐만 아니라 경제적, 정량적 접근을 이루기 힘들게 된다. 따라서 다공질 소결 금속이나, 분말의 변형 거동을 이론적으로 규정하기 위해서는 거시적 연속체 역학에 입각한 수학적 모델이 필요하다. 일반적으로 많은 연구자들은 압력에 의존하여 재료의 소성 항복 함수를 다음과 같이 식 (1)로 표현하였다[1-3, 19].

$$AJ'_2 + BJ'_1 = \eta Y_s^2 = Y_R^2 \quad (1)$$

여기서 J_1 과 J'_2 는 각각 1차 응력 불변량과 2차 편차응력 불변량이고, Y_R 은 다공질 금속의 결보기 항복응력, Y_s 는 비다공질인 기준 금속의 항복응력이며, η 는 '기하학적인 경화' 항이다.

기존에 사용된 Shima-Oyane 모델은 분말재료의 실험적 검증을 바탕으로 $B=2.49^2/9(1-R)^{1.028}$ 으로 제안하였다. 또한 η 항을 상대밀도와 밀접한 관계가 있음을 밝히고, 식 (2)와 같은 구형하였다[19].

$$3J'_3 + \frac{2.49^2}{9}(1-R)^{1.028}J'_1 = R^5 Y_s^2 \quad (2)$$

위 식은 철과 알루미늄 소결체에 잘 일치하므로

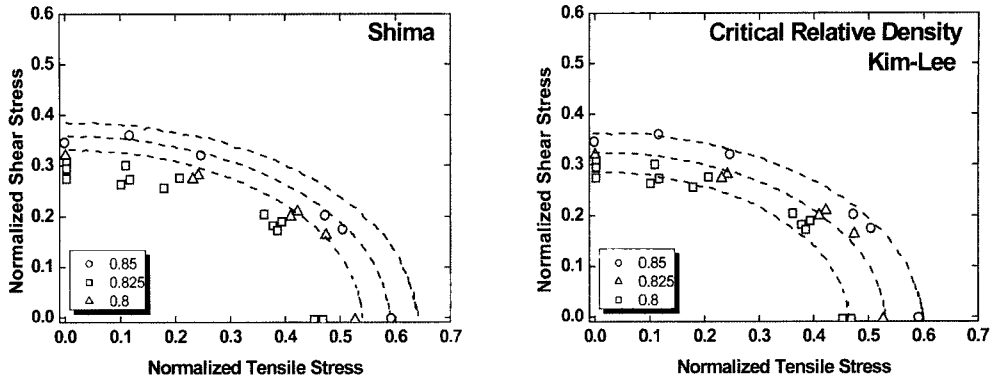


Fig. 1. Yield curve in Y/Y_0 - τ_r/Y_0 space measured and calculated using various equations at relative density on Fe powder [1].

소성 역학 분야에서 많이 사용되고 있다(그림 1). 반면 총변형 에너지가 임계값에 도달하면 항복이 일어난다고 가정할 경우, 단위 체적당의 변형에너지 W 는 식 (3)와 같이 나타낼 수 있다.

$$W = \frac{1}{2} \sigma_{ij} \epsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{1+\nu}{E} \sigma_{ij} \sigma_{ij} + \frac{1-2\nu}{3E} \sigma_{kk}^2 \right) \quad (3)$$

이때 항복이 일어나면 응력 상태에 무관하게 에너지가 일정하다고 생각하면, $3(1+\nu)\sigma_{ij}\sigma_{ij} + (1-2\nu)\sigma_{kk}^2 = K$ 으로 나타낼 수 있으며, 이때 일축응력 상태를 고려하게 될 경우, $3(1+\nu)(2/3)\sigma_{11}^2 + (1-2\nu)\sigma_{11}^2 = K = 3Y_R^2$ 으로 표현 가능하다. 여기서 $J_1 = \sigma_{kk}$, $J_2 = (1/2)\sigma_{ij}\sigma_{ij}$ 를 대입하여 정리하면 식 (4)를 얻을 수 있다.

$$(2+R^2)J_2 + \frac{1-R^2}{3}J_1^2 = Y_R^2 \quad (4)$$

식 (4)를 식 (1)과 비교하였을 때, 첫째 항은 전단 변형에너지가 되고 두 번째 항은 체적변형에너지의 의미를 갖는다. 만약 진밀도의 금속이 비압축성이라고 가정하면, 총 변형 에너지는 전단변형 에너지가 되고, $\nu=0.5$ 가 되어 식 (4)은 von Mises 항복식을 만족하게 된다. 반면, 항복응력의 밀도 의존성, 즉 기하학적 경화는 매개변수 η 를 사용하여 $Y_R^2 = \eta Y_s^2$ 로 표현 가능하다. η 는 다공질 재료와 비다공질 소재의 항복 응력비 (Y_R/Y_s)로서 항복응력은 재료의 밀도가 낮아지면 감소하고 밀도가 진밀도에 도달하면 비다공질 재료의 항복응력과 같아지므로 $R_c \leq R \leq 1$ 의 범위에서 R_c 의 값을 가지게 된다. 여기서는 재료의 강도를 잃어버리는 임계상대밀도이다. 또한 R 을 이용하여 η 의 표현이 가능하며 다음과 같은 관계로 나타낼 수 있다[2, 10].

$$\eta = a_1 R^2 + a_2 R + a_3$$

$$\eta = \begin{cases} \frac{(R-R_c)}{1-R_c}(aR-a+1), & R_c < R \leq 1 \\ \eta_{min} & , R \leq R_c \end{cases} \quad (5)$$

상대밀도 R 이 임계상대밀도에 해당하는 R_c 에서 응력 값이 0이라는 것을 의미한다. 이처럼 상대밀도에 의존하는 이러한 강화를 '기하학적 강화' 또는 '치밀화 강화' 부르며 $[(R-R_c)/(1-R_c)]$ 의 식으로 표시될 수 있다. 또한 기지재료의 변형에 따른 강화는 '변형강화'라고 하는데 Y_s 의 변화로 나타낸다. 따라서 다공질 재료의 총 경화는 기하학적 강화와 변형 강화의 곱으로 표시된다. 이후에 Kim은 분말의 낮은 초기 밀도와 낮은 임계상대밀도를 고려하여 분말의 거동을 설명하는 다음과 같은 식 (6)을 제안하였다[2, 10].

$$(2+R^2)J_2 + \frac{1-R^2}{3}J_1^2 = Y_R^2 = \left(\frac{R-R_T}{1-R_T} \right)^{\frac{0.85}{R_T}} Y_s^2 \quad (6)$$

여기서 R 는 변형 후의 밀도, R_T 는 분말의 두드림 밀도이며, 또한 기지재료의 변형강화 항을 포함한 Y_s 로서 고려될 수 있으며, 본 연구에서는 식 (6)을 이용하였다.

분말 거동 이론적 기초가 되는 Shima 모델과 CRD 모델을 상용 유한요소 코드인 DEFORM2D를 사용하여 계산 수행을 하였는데, 초기 요소의 개수는 3000개로 하였고, 채널각과 모서리각은 가장 효과적인 변형이 가능하도록 각각 90°와 0°로 하였다. 시편의 크기는 10×10×60 mm에 해당하며 두께 방향

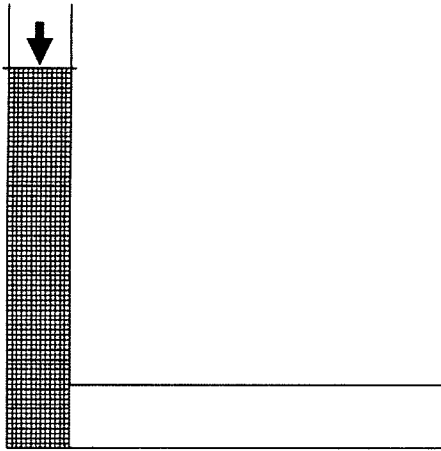


Fig. 2. Initial mesh condition of powder equal channel angular pressing.

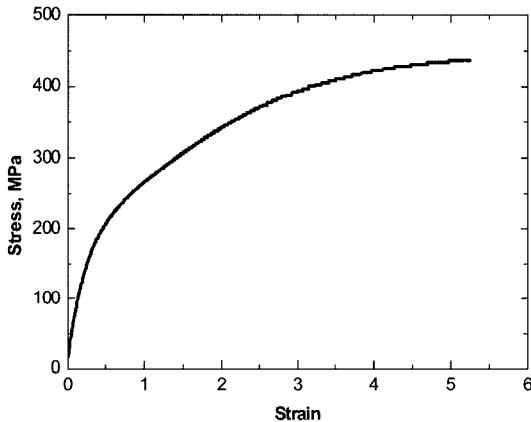


Fig. 3. Strain-stress curve of Cu material [20].

변형률이 0인 평면변형 상태를 가정하였다(그림 2). 물성은 그림 3에서 보여주는 바와 같이 $50\ \mu\text{m}$ 에 등축 결정립을 가지는 어닐링 된 Cu 재료를 사용하였으며, 이는 일반적인 인장 실험으로는 본 계산에서 발생되어지는 유효변형률 1 이상의 대변형률에 대한 결과를 얻기 어려우므로, 미세조직 모델을 이용한 이론 응력-변형률 곡선을 사용하였다(그림 3)[20]. 금형과 소재와의 마찰은 분말 소재의 표면 거칠기로 인해 0.2로 하였으며, 등은 상태를 유지하기 위해 속도는 $1\ \text{mm/s}$ 로 일정하게 유지하였다[21]. 초기 상대밀도는 기존에 발표된 CRD 모델을 통해 얻은 임계상대밀도 값이 0.54이기 때문에 본 연구에서 사용된 두 모델의 효과적인 비교를 위해 0.5로 설계하여 계산을 수행하였다[9, 10].

3. 결과 및 고찰

기존의 Kim의 연구에 의하면, 순 구리의 경우 임계상대밀도가 약 0.54을 가지는 것을 알 수 있으며 [3, 10], 이는 순 구리의 상대밀도가 0.54에 이르도록 분말 간 거리가 가까워지면 물리적 특성을 가지게 되는 것임을 알 수 있다.

그림 4는 Shima 모델과 CRD 모델에 대해 약 $5\ \mu\text{m}$ 에 해당하는 크기를 가지는 순 구리 분말을 이용하여 냉간 정수압(Cold iso-static pressing: CIP) 실험 및 계산을 나타낸 그래프로 냉간 정수압 실험을 통해 얻은 상대밀도 결과와 각 모델을 계산을 통해 얻은 곡선이다. 대략 0.5~0.6의 상대밀도를 가지는 영역에서는 초기 상대밀도 분포의 차이를 가지고 있으나 고밀도 상황에서의 거동 자체는 유사한 경향을 나타내고 있다. 특히, 저밀도 구간에서는 CRD 모델의 경우, 임계상대밀도 이하에서는 압력이 발생하지 않는 반면, Shima 모델에서는 저밀도 하에서도 작은 압력이 나타나는 현상을 확인할 수 있다. 즉, 각 모델은 고밀도 상황에서는 큰 차이가 나타나지 않으나, 초기 분말 성형에서는 가공 하중 및 거동에 차이가 발생할 것으로 사료된다. 이와 같은 상대밀도 및 압력 차이는 분말 성형 가공에 있어서 초기 하중을 결정하는 공정 변수가 될 수 있다.

그림 5는 본 연구에서 제시한 분말 ECAP 공정 거동으로써 크게 두 단계 거동으로 설명되어질 수 있다. 분말의 치밀화가 이루어지는 치밀화 단계와 주변 형태를 통과하는 분말 결합 단계로 나누어진다. Kim

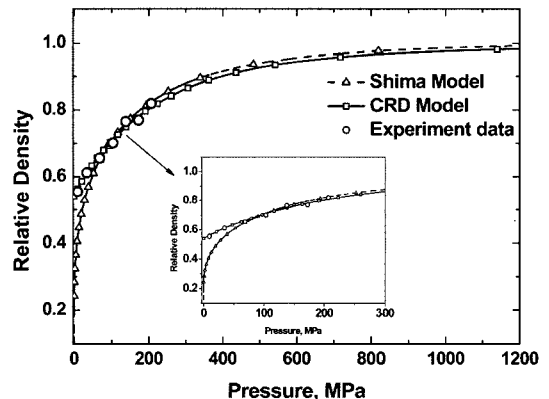


Fig. 4. Relative density-pressure curves by numerical calculation and relative density points by experiment.

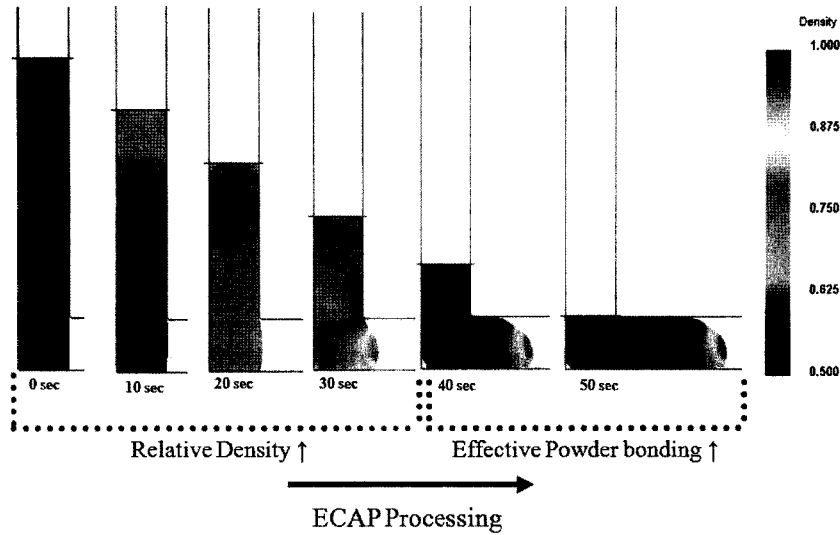


Fig. 5. Cu powder relative density distribution during powder equal channel angular pressing processing.

의 기존 연구에서 Al-Si 소재의 경우, 낮은 온도에서도 효과적인 분말 유효크기의 벌크화를 이룬 연구가 보고된 바가 있는데, 강소성 공정의 특징인 심한 전단변형으로 인해 소재의 전위 증식을 증가시킴으로써 온간에서도 결정립 성장을 제어하는 동시에 효과적인 분말 결합을 이루었다[4, 5]. 또한 본 연구에서 제시하는 분말 ECAP 성형 거동이 실제 실험에서 발생하는 변형단계와 매우 유사함을 알 수 있다. Cu의 경우, 분말 ECAP 공정시 약 0.5~0.7의 초기 밀도를 가지고 있는 조건에서 Shima 모델과 CRD 모델의 거동차이를 알 수 있는 경계 초기 상대밀도가 약 0.5 이기 때문에, 이 조건에서 분말 ECAP 계산 수행을 하였으며, 두 모델에서 얻은 분말 ECAP 공정시 치밀화 거동은 유사한 거동임을 확인하였다[22]. 이는 분말 ECAP 공정이 높은 치밀화 공정에 매우 효과적이기 때문에 저밀도에서 발생하는 차이를 상대밀도 분포를 통해서 구분하기 어렵다. 이를 명확히 확인하고자, 그림 6은 분말 ECAP 공정을 수행한 하중-시간의 곡선을 관찰하였는데, 기존의 벌크 ECAP 공정의 3단계와 유사한 하중 거동을 하고 있음을 알 수 있으나[23], 치밀화 거동이 나타나는 구간이 매우 길게 나타나고 있음을 관찰할 수 있다. 이는 본 그래프에서 관찰할 수 있는 바와 같이 Shima 모델은 초기부터 하중이 증가하는 추세를 나타내지만, CRD 모델의 경우는 약 10 초 이후에 하중이 증

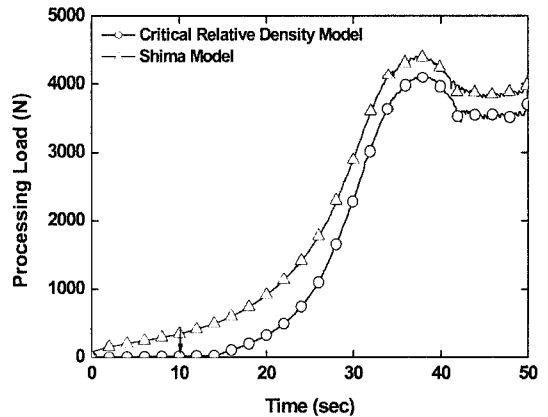


Fig. 6. Load-time curve of Cu powder during powder equal channel angular pressing analyzed by the finite element method.

가하는 경향을 확인할 수 있다. 즉 CRD 모델은 분말의 입계상대밀도 이하에서는 분말간 거리가 가까워질 뿐 물리적 하중 및 특성은 나타나지 않으나 분말의 거리가 입계상대밀도 이상으로 가까워지면 기존에 알려진 벌크 소재 가공 단계에서 나타나던 하중 변화와 유사한 거동이 발생됨을 고찰할 수 있다.

또한 그림 7은 분말 ECAP 공정시 상대밀도변화를 나타낸 것으로써, 분말의 충전 및 치밀화 거동이 각 모델에서 유사한 경향을 나타냄을 확인할 수 있다. 실제 실험에서는 분말이 금형 사이에 끼는 현상으로

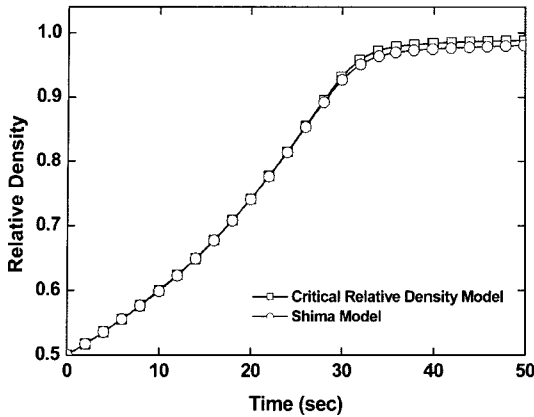


Fig. 7. Relative density-time curves during powder equal channel angular pressing.

인해 역응력이 존재하게 되고[24], 이 때문에 분말 ECAP 하중이 매우 높게 발생됨으로 피복재를 사용하여 분말 ECAP 거동을 수행한다. 추후 통합형 점소성 모델[2]을 통해 분말의 미세조직과 피복재 효과를 고려한 분말 ECAP 공정을 수행하고자 한다.

4. 결 론

초미세나노 결정립 소재 제조에 대한 많은 관심과 경제적 효과를 동시에 얻을 수 있는 큰 장점을 가진 분말 야금 성형에 대해 각 모델을 사용하여 치밀화 계산을 수행하였다. 본 연구에서는 Shima 모델과 CRD 모델을 상용 유한요소법을 통해 비교하였으며, 분말 가공 공정으로는 분말 ECAP 공정을 사용하였다. 분말 ECAP 공정은 치밀화 구간과 전단 변형에 의한 분말 결합 구간의 두 단계로 거동하며, 고밀도 상황에서는 각 모델에 있어서 치밀화 거동이 유사함을 확인할 수 있었으나, 저밀도에서는 Shima 모델의 경우 기계적 특성을 얻을 수 있는 반면, CRD 모델은 임계상대밀도 값 이상에서 분말 성형체의 물리적 특성이 나타나는 것을 확인할 수 있었다. 특히 ECAP 공정시 발생하는 하중시간 곡선에서 그 현상이 나타나는 경계가 명확하였으며, 최고 하중의 경우 약 7%의 하중 차이가 발생됨을 확인할 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 21세기 프론티어 연구개

발사업의 일환인 차세대소재성형 기술개발 사업단의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

참고문헌

- [1] H. S. Kim and D. Y. Lee: J. Kor. Inst. Met. Metal., **30** (1992) 37 (Korean).
- [2] H. S. Kim: J. Kor. Inst. Met. Metal., **38** (2000) 817 (Korean).
- [3] H. S. Kim, M. H. Seo, W. S. Ryu, S. C. Yoon and C. K. Rhee: J. Metastable Nanocryst. Mater., **15-16** (2003) 235.
- [4] S. C. Yoon and H. S. Kim: Mater. Sci. Forum, **503-504** (2006) 221.
- [5] S. C. Yoon, S-J. Hong, S. I. Shong and H. S. Kim: Mater. Sci. Eng. A, **449-451** (2007) 290.
- [6] B. H. Kear and P. R. Strutt: Acta Mater., **6** (1995) 227.
- [7] J. G. Park: J. Kor. Ceramic Society., **10** (2007) 1.
- [8] H. Gleiter: Nanostruct. Mater., **4** (1994) 121.
- [9] H. S. Kim, Y. Estrin, E. Y. Gutmanas and C. K. Rhee: Mater. Sci. Eng. A, **307** (2001) 67.
- [10] S. C. Yoon, H. S. Kim and C. K. Rhee: J. Kor. Powder Metall. Inst., **11** (2004) 341 (Korean).
- [11] S. Ohsaki, S. Kato, N. Tsuji, T. Ohkubo and K. Hono: Acta Mater., **55** (2007) 2885.
- [12] H. S. Kim, M. H. Seo and S. I. Hong: Mater. Sci. Eng. A, **291** (2000) 86.
- [13] R. Z. Valiev, R. K. Islamgaliev and I. V. Alexandrov: Prog. Mater. Sci., **45** (2000) 103.
- [14] S. C. Yoon, S. J. Hong, M. H. Seo, Y. G. Jeong and H. S. Kim: J. Kor. Powder Metall. Inst., **11** (2004) 233 (Korean).
- [15] S. Y. Chang, K. S. Lee, S. H. Choi and D. H. Shin: J. Alloys Comp., **354** (2004) 216.
- [16] M. Furukawa, Z. Horita, M. Nemoto and T. G. Langdon: Mater. Sci. Eng. A, **324** (2002) 82.
- [17] B. S. Moon, H. S. Kim and S. I. Hong: Scripta Mater., **46** (2002) 131.
- [18] V. M. Segal: Mater. Sci. Eng. A, **197** (1995) 157.
- [19] S. Shima and M. Oyne: J. Mech. Sci., **18** (1976) 285.
- [20] Y. Estrin, L. S. Tóth, A. Molinari and Y. Bréchet: Acta Mater., **46** (1998) 5509.
- [21] S. C. Yoon, P. Quang, S. C. Chun, H. R. Lee and H. S. Kim: J. Kor. Powder Metall. Inst., **13** (2006) 415 (Korean).
- [22] S. C. Yoon: Chungnam National University, Doctoral Dissertation (2008) (Korean).
- [23] S. C. Yoon, M. H. Seo and H. S. Kim: Scripta Mater., **55** (2006) 159.
- [24] S. C. Yoon, C. H. Bok, S. I. Hong and H. S. Kim: J. Kor. Inst. Met. Metal., **45** (2007) 473 (Korean).