

|||||||
論 文
|||||||

Mg-5%Al 합금의 등온가열에 따른 미세조직변화 및 반응고 성형성

김정민[†] · 황보현석 · 김기태 · 정운재

Microstructural Evolution during Isothermal Heating and Thixoformability of Mg-5%Al Alloy

Jeong-Min Kim[†], Hyun-Seok Hwangbo, Ki-Tae Kim and Woon-Jae Jung

Abstract

Variation in the microstructure of Mg-5%Al semi-solid slurry during isothermal heating was investigated in relation to initial microstructure, holding time, and holding temperature. Specimens with three different initial microstructures were isothermally heated. Dendritic structure in as-cast ingot was decomposed into solid globules in the semi-solid slurry during isothermal holding, while in the recrystallized specimens prepared by extrusion or rolling the size of solid particles was continuously increased during the heating. Effects of mold temperature and liquid fraction of slurry on the mold filling ability were also studied. Very thin section (0.4 mm) could be successfully filled up to 50 mm by 60% liquid slurry when the mold was heated to 600°C.

(Received July 13, 2001)

Keywords : Semi-Solid, Isothermal Heating, Mg, Slurry

1. 서 론

반응고 금속 성형가공법(Semi-Solid Metal Forming Process)은 액상과 고상이 공존하는 온도영역에서 금속을 성형하는 방법으로서 porosity의 감소, 치수정밀도의 향상, 금형 사용수명의 연장 등 많은 장점을 가지고 있다. 반응고 성형법은 여러 가지로 분류가 가능하지만 금속을 반응고 상태의 슬러리로 만드는 과정에 따라 나누면 용융금속을 냉각하는 방법과 고체금속을 가열하는 두 가지 방법으로 크게 나눌 수 있으며, 전자의 경우 금속을 고액 공존상태에서 교반하여 슬러리의 점성을 감소시키고 유동성을 증가시킨 후 가압하여 주조하는 방법이고 후자의 경우는 고체상태의 금속재를 가열하여 반응고상태로 만든 후 가압, 가공하는 방법이다[1].

금속재를 가열하여 일정한 고액 공존영역 온도에서 유지하면 초기조직이 점차 용융되어 액상율이 증가하

고, 고상의 형태가 구형으로 변화하여 최종적으로 구형의 고상 입자가 액상 내에 분포한 반응고상태가 된다. 이러한 방법으로 반응고 슬러리를 만들기 위해서는 여러 가지 공정 변수들을 제어하는 것과 더불어, 합금의 초기 조직 및 상태를 최적화하는 것이 필요하다. 초기 미세 조직의 형태에 따라 고상 입자의 구형화 속도 및 크기 등에 차이가 있게 되며, 냉간 가공 등에 의하여 금속에 축적되어진 응력이 충분히 크면 가열 도중 재결정이 일어나기 때문에 미세한 고상 입자를 가진 반응고 슬러리를 얻을 수 있다[2-5].

한편, 마그네슘 상용합금인 AM50은 대표적인 주조용 합금인 AZ91에 비하여 인장강도는 약간 작지만 충격흡수성과 특히 연성이 매우 우수하기 때문에 앞으로 많은 활용범위를 가질 것으로 기대된다[6]. 그 동안의 반응고 등온가열실험 및 연구는 알루미늄합금이나 AZ91합금에 국한되어 왔다[2-5,7,8]. 따라서 본 연구에서는 AM50의 주요 합금조성에 해당하는 Mg-

한국생산기술연구원(Korea Institute of Industrial Technology)

[†]E-mail : jmk7475@kitech.re.kr

5wt.%Al합금을 선택하여 잉곳을 제조하였고, 압출 및 압연을 하여 서로 다른 초기조직을 갖도록 한 후 가열 온도 및 시간에 따른 반응고 미세 조직의 변화를 관찰하였다. 또한 반응고 성형공정에서 고액 슬러리의 금형 충전성이 중요하기 때문에 금속의 액상율 및 금형 온도가 충전성에 미치는 영향을 조사하였다.

2. 실험방법

3 kg의 모합금을 철제도가니에 장입한 후 전기저항로에서 용해를 하였으며, SF₆와 CO₂혼합가스를 사용하여 용탕을 대기로부터 보호하였다. 결정립 미세화처리는 하지 않았으며, 5분간 Ar을 용탕 내로 교반하며 주입하여 탈가스 처리를 하였다. 금형은 약 150°C로 예열하였고 용탕을 720°C에서 금형에 주입해 Ø75 mm의 잉곳을 제조하였다. 주조한 잉곳의 합금조성은 Table 1에 나타내었다. 서로 다른 초기조직을 갖는 시편을 준비하기 위하여 주조한 잉곳을 압출과 압연 등 Fig. 1과 같은 공정을 거치도록 하였고, 매 단계별로 시편을 채취하였다. 먼저, 잉곳의 표면을 절삭하여 Ø74 mm로 가공한 후 400°C에서 8시간 동안 균질화 처리를 하였다. 열처리가 끝난 잉곳은 400 ton급 압출기를 사용 압출속도 10 mm/sec, 온도 400°C에서 폭 40 mm, 두께 4 mm의 판재로 압출하였다. 압출재는 다시 열간 압연을 하였는데, 이때 압하율은 매 pass당 약 20%로, 총 50%가 되도록 하였고 공정 중간마다 400°C에서 30분간 열처리를 하였다.

등온가열실험에 앞서 제조된 합금의 고액선, 액상선, 공정점 등을 파악하기 위해 DSC(Differential Scanning Calorimeter) 실험을 하였으며, 결과는 Table 2에 나타내었다. 여기서 평형값은 Mg-Al 2원계 평형상태도에서 구하였으며 공정량은 Scheil equation을 이용하여 계산하였는데, 이때 계산에 사용된 평형분배계수(k)는 0.37이다[1]. 한편, DSC실험에서 가열 및 냉각은 3°C/min의 느린 속도로 하였다.

등온가열실험은 Fig. 2와 같이 일정한 온도로 맞추어진 chamber안에 시편을 넣고 정해진 시간을 유지한

Table 1. Chemical Compositions of test specimen (wt.%)

Mg	Al	Mn	Zn
Balance	4.68	0.03	-

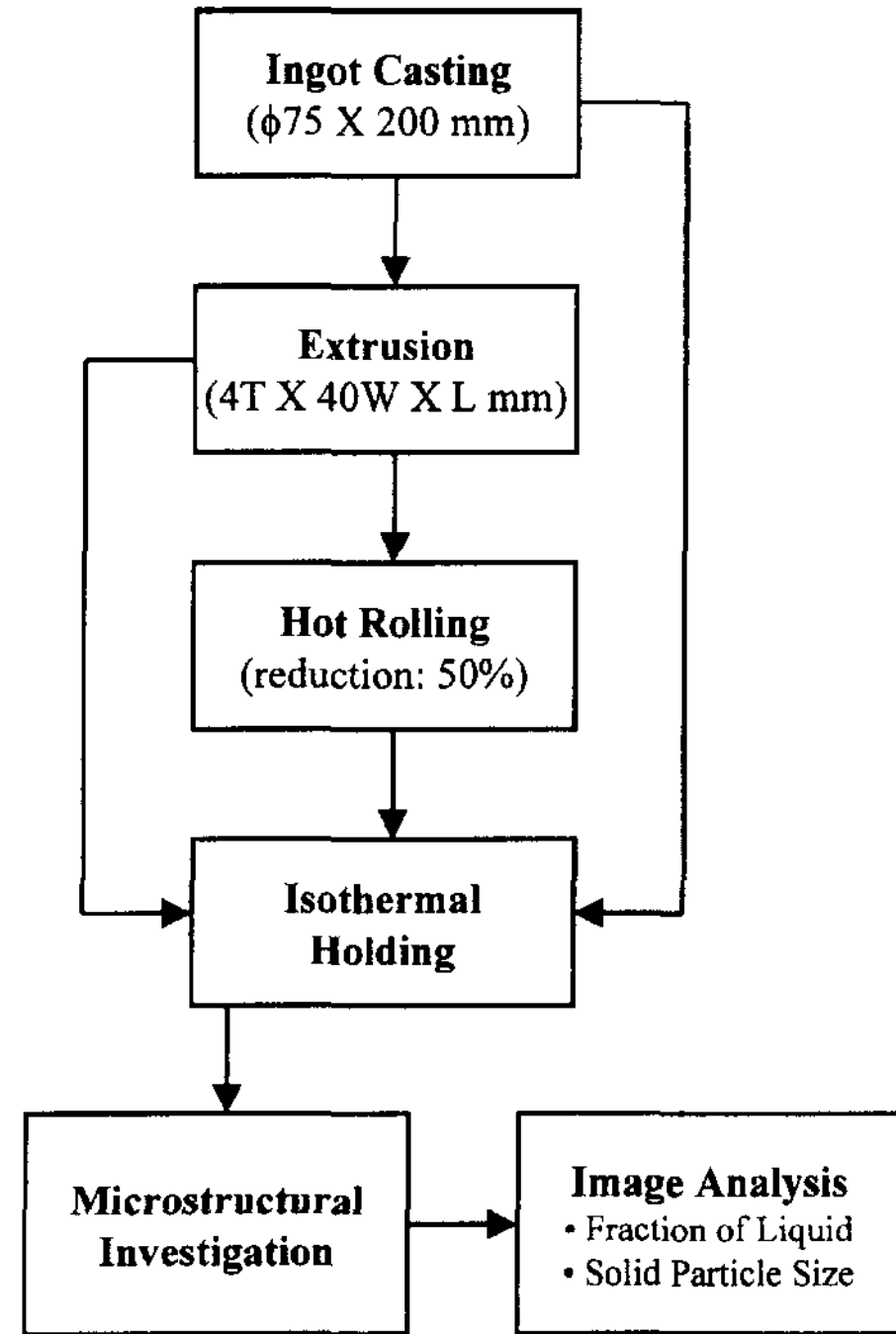


Fig. 1. Flow chart of isothermal holding experiment.

후 물에 급냉하였다. 초기조직의 영향을 보기 위하여 Fig. 1의 단계별로 채취한 시편을 20×20×4 mm로 가공하여 사용하였다. 시편을 철제도가니 안에 장착하여 실험하였으며, 계획한 온도까지 최대한 급격하게 가열하기 위해서 도가니를 미리 예열하였다. 시편에 부착된 열전대를 통해 약 5분만에 소정의 온도에 도달하는 것을 확인하였다. 급냉한 시편의 미세 조직은 acetic picral(5 ml acetic acid + 6 g picric acid + 10 ml H₂O + 100 ml ethanol(95%))을 사용하여 부식시킨 후 광학 현미경으로 관찰하였으며, 화상분석기를 이용하여 조건별로 액상율 및 고상 입자의 크기를 정량적으로 측정하였다.

Table 2. Results of DSC(Differential Scanning Calorimeter) Analysis

Alloy System	DSC (°C)			Equilibrium (°C)			Amount of eutectic(%) -Scheil eqn.
	eutectic temp	Melting of α-phase		eutectic temp	Melting of α-phase		
		Start	End		Start	End	
Mg-5%Al	435	575	627	437	560	625	6

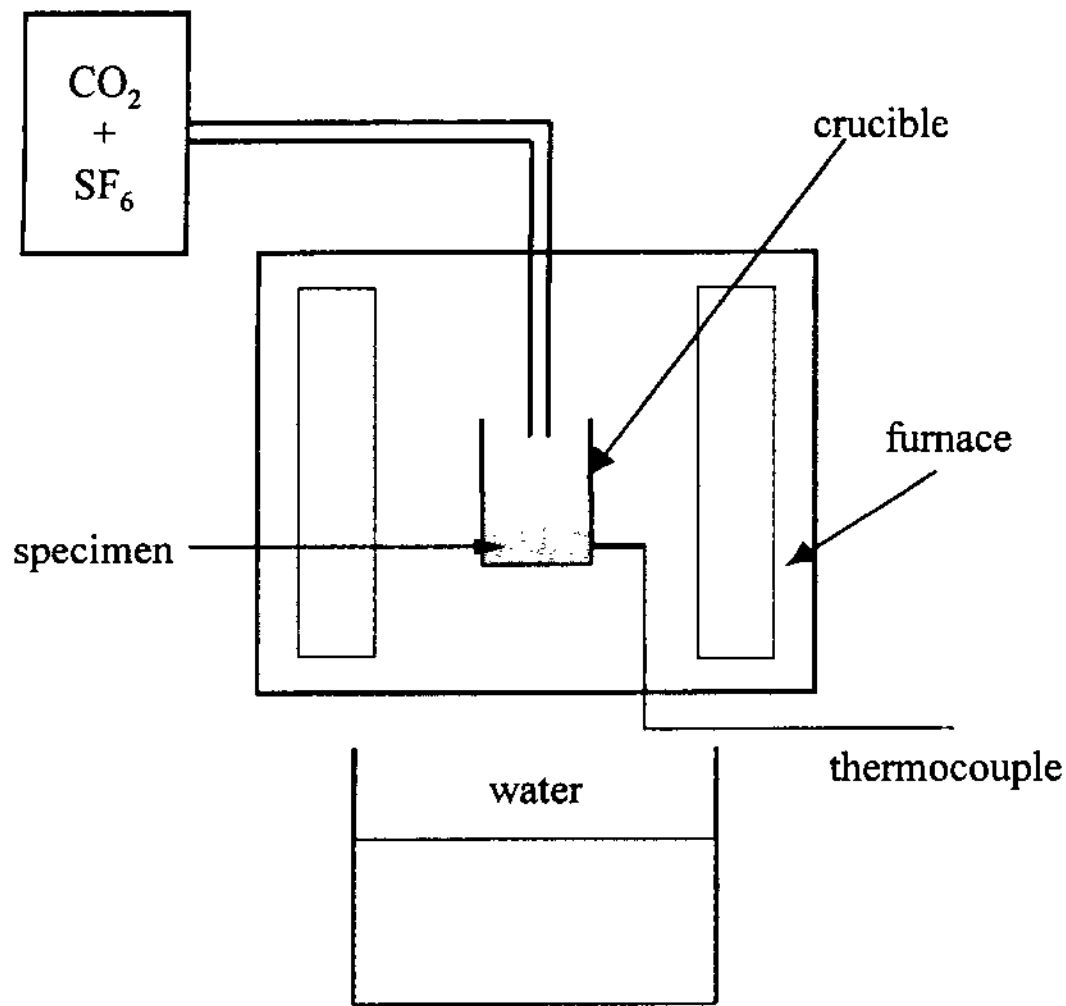


Fig. 2. Experimental set-up for isothermal holding and quenching.

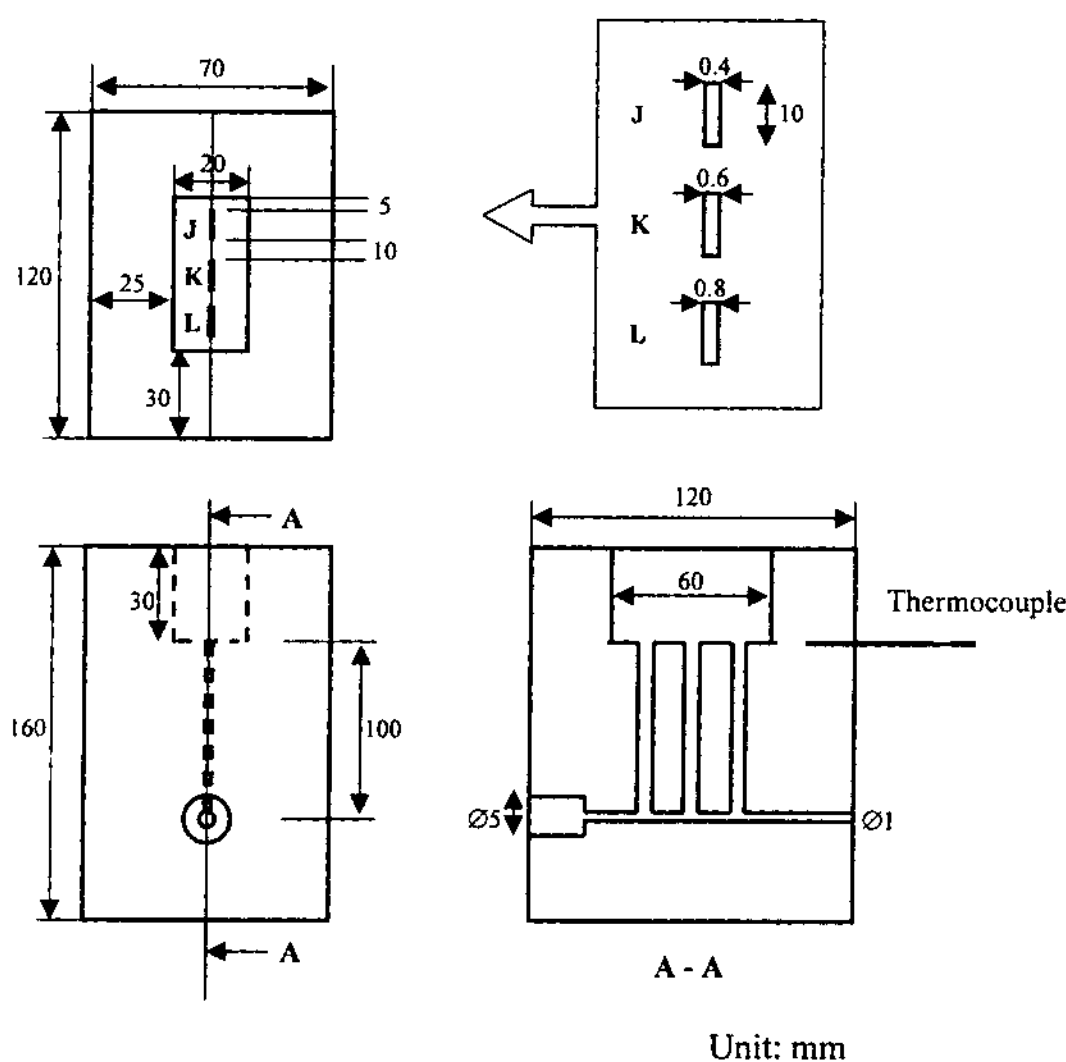


Fig. 3. Mold design for the fillability test of semi-solid slurry.

반응고 슬러리의 성형성은 충전성 실험을 통해 조사하였으며, Fig. 3과 같이 두께 0.4-0.8 mm의 매우 얇은 공간이 있는 금형을 사용하였다. 이 실험에서는 압출재를 가공하여 먼저 80x40x4mm의 판재형태로 만들고, Scheil equation으로 구한 액상율이 약 0.6, 0.75, 0.9에 해당하는 각각의 가열온도에서 45분간 유지하였다. 반응고 슬러리가 준비되면 금형으로 즉시 이송하였고 유압프레스의 압력이 일정하게 40 kg/cm²인 상태에서 가압하여 성형하였다.

3. 실험결과 및 토의

3.1. 열분석

Table 2에 나타난 합금의 평형 및 DSC결과 값을 비교하면, 액상선과 공정온도의 경우 비교적 유사한 값을 나타냈다. 평형값의 경우 합금을 2원계로 가정하여 계산하였으나 실제로는 다른 첨가원소 및 불순물이 존재하기 때문에 약간의 차이가 발생할 수 있고, 실험에 사용된 Mg-5%Al합금의 경우 Al이외의 첨가 및 불순원소가 거의 없어 그 차이는 작았던 것으로 생각된다. α상의 용융이 개시되는 온도의 경우에는 약 15°C의 차이가 있었으며, 이것은 온도가 평형 고상선 이상이 되더라도 용융이 개시되기까지 용질의 재분배에 따른 시간이 필요하기 때문으로 사료된다. 한편, Table 2에 나타난 공정량은 고체확산이 전혀 없음을 전제로 한 Scheil equation에 의한 것이나 실제로는 고상에서 약간의 확산이 있음을 고려하면 계산값 보다 약간 적은 양을 가질 것으로 생각된다.

3.2. 등온가열실험

3.2.1. 초기조직의 영향

Fig. 1과 같은 세 가지 공정을 거쳐 조건별로 다른 초기 조직을 갖도록 제조하여 등온가열과정 중 반응고 조직의 고상형상이 어떻게 변화되는지를 조사하였다. Fig. 4의 미세조직에서 알 수 있듯이, 압출재나 압연재의 경우에는 주조상태와 비교하여 매우 미세한 결정립을 가진다. 즉, 교선법에 의하여 측정된 압출재, 압연재의 결정립 크기는 약 42, 33 μm로서 주조재의 결정립 크기인 약 420 μm에 비하여 훨씬 작았으며, 이것은 압출과 압연이 400°C의 열간 상태에서 수행되었기 때문에 가공과정 중에 동적 재결정이 일어났기 때문으로 생각된다. 마그네슘은 HCP(hexagonal close-packed) 결정구조를 갖기 때문에 상온에서의 성형가공이 매우 힘들어 대부분 열간에서 가공되며, FCC(face centered cubic) 구조를 갖는 금속에 비하여 동적 재결정이 용이하게 일어나는 특징을 갖는다[9]. Fig. 4(a), (c), (e)의 세 가지 초기조직을 갖는 시편을 615°C에서 30분간 등온 유지하여 변화된 반응고 조직을 (b), (d), (f)에 각각 대응하여 나타내었다. 압출재와 압연재를 비교하면 초기조직 및 반응고 조직에 있어서 큰 차이점을 발견할 수는 없었으며, 두 조건 모두에서 등온가열 동안 결정립의 크기가 상당히 커진 것을 알 수 있다. 주조

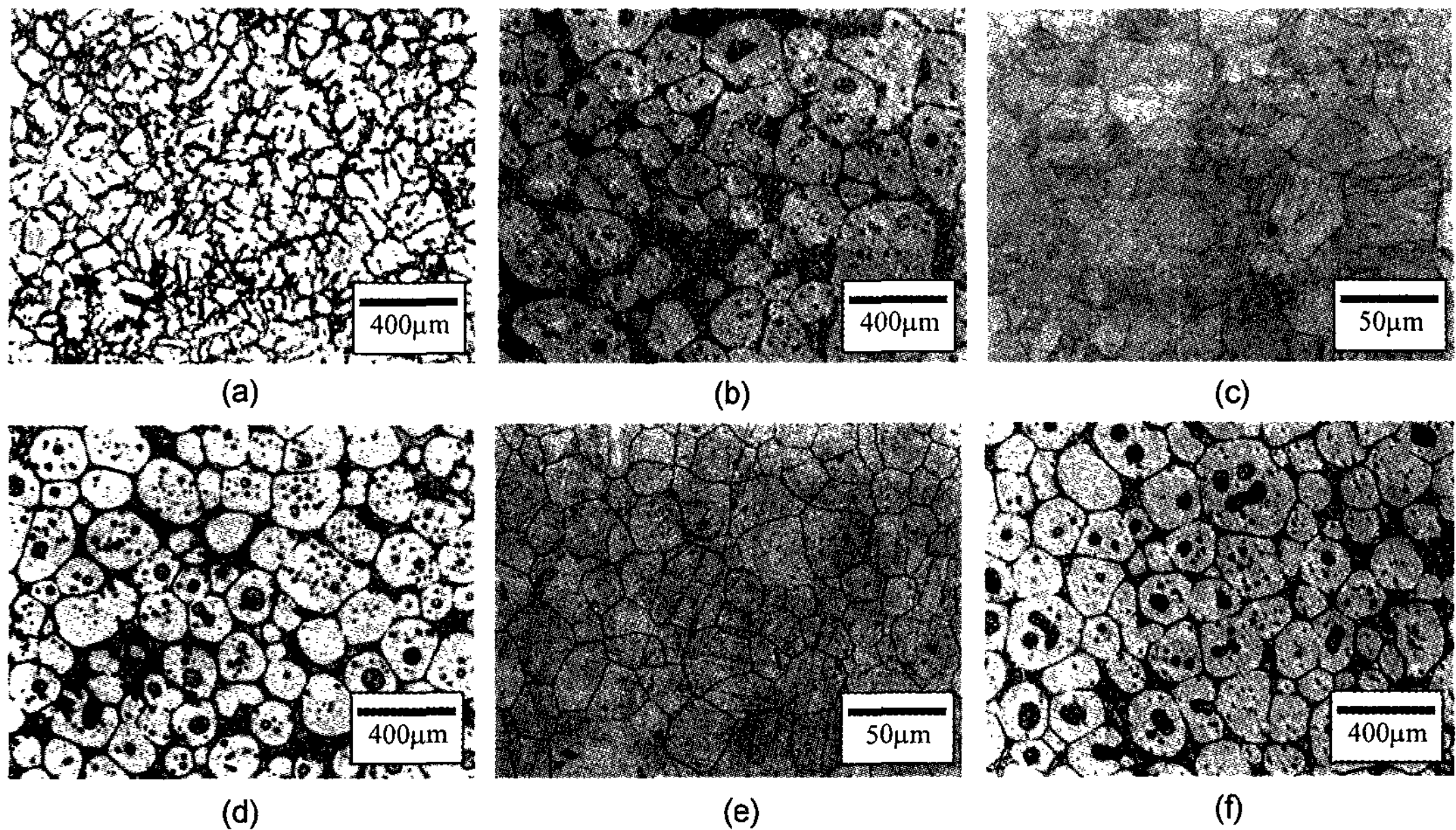


Fig. 4. Initial microstructure and its effect on the characteristics of isothermally heated semi-solid alloys : (a) as-cast (b) 615°C, 30 min., cast ingot (c) as-extruded (d) 615°C, 30 min., extruded ingot (e) as-rolled (f) 615°C, 30 min., rolled ingot.

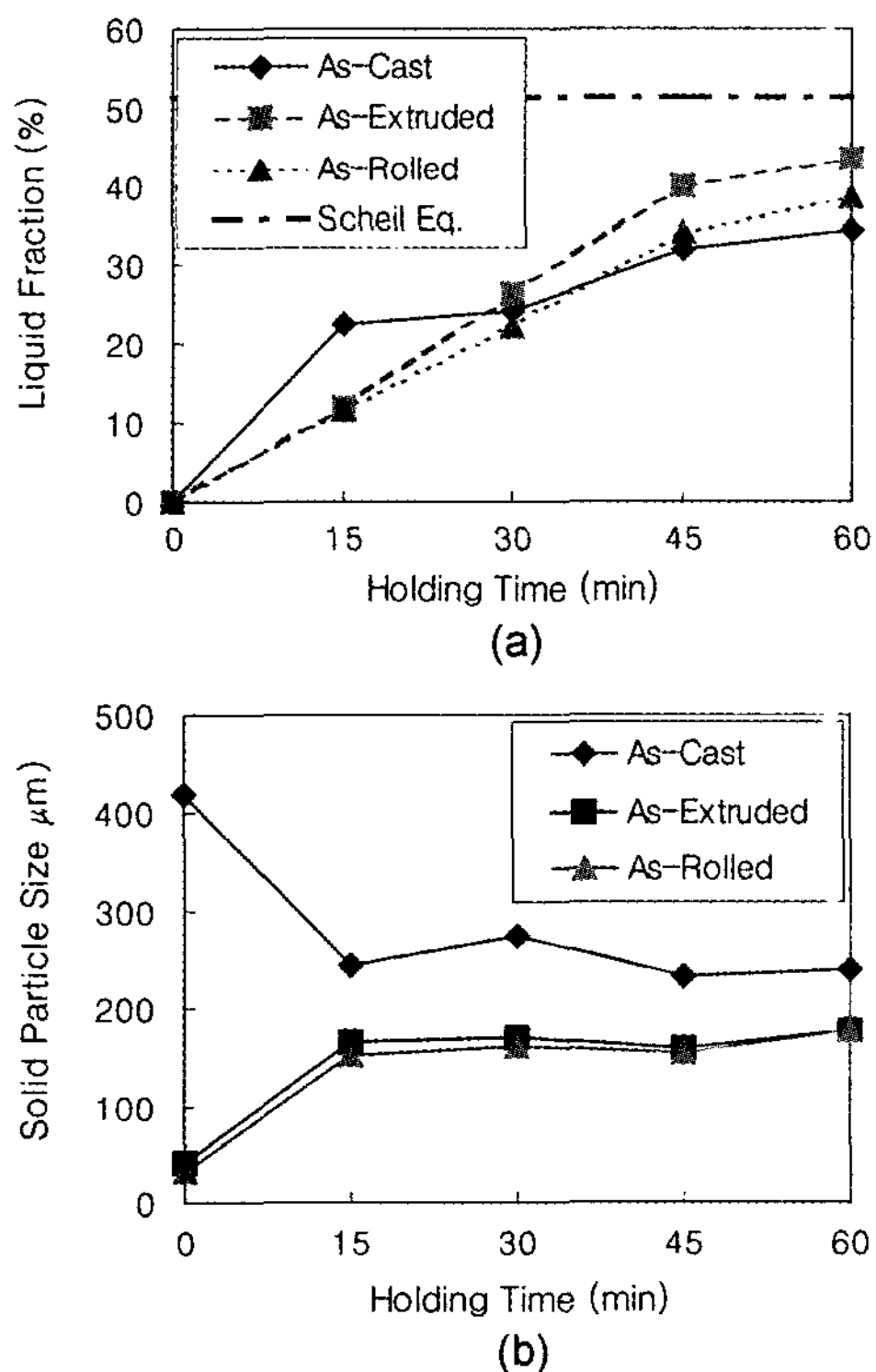


Fig. 5. Influence of initial microstructure on the variation in liquid fraction and solid particle size of semi-solid alloy during isothermal holding at 615°C.

재는 초기에 dendrite 구조였던 것이 압출재나 압연재와 마찬가지로 구형의 입자들로 변화된 것을 볼 수 있지만, 상대적으로 고상 입자의 크기가 조대하고 불균일 하였다.

Fig. 5에는 등온가열 중 일어나는 미세 조직의 변화에 미치는 초기조직의 영향을 정량적으로 나타내었다. Fig. 5(a)에서는 가열온도를 615°C로 일정하게 하였는데, 시간이 지남에 따라 액상율이 초기조직에 상관없이 지속적으로 증가하여 Scheil equation으로 구한 평형값에 가까워지는 것을 알 수 있다. 그러나 그 증가 속도에는 다소 차이가 났는데, 주조재의 경우 초기 15분까지는 상대적으로 더 빠른 용융이 일어났으나 이후 속도가 느려지는 거동을 보인 반면, 압출재 및 압연재의 경우에는 45분까지 액상율이 지속적으로 증가하다 이후 속도가 감소하였다. 압출 및 압연 공정 전 400°C에서 균질화 열처리를 해주었으므로 압출재나 압연재에서는 주조재에 비하여 합금원소의 농도가 위치별로 비교적 균등할 것으로 예상하며, 따라서 주조재의 경우 용질원소가 고농도로 존재하는 영역이 많아 초기의 액화속도가 빠른 것으로 생각된다. 그러나 주조재의 결정립은 압출재, 압연재에 비하여 조대하므로 액상이 생기는 계면의 넓이가 더 좁을 것이며, 그래서 15분 이후의 액상율 증가속도는 더 작은 것으로 사료

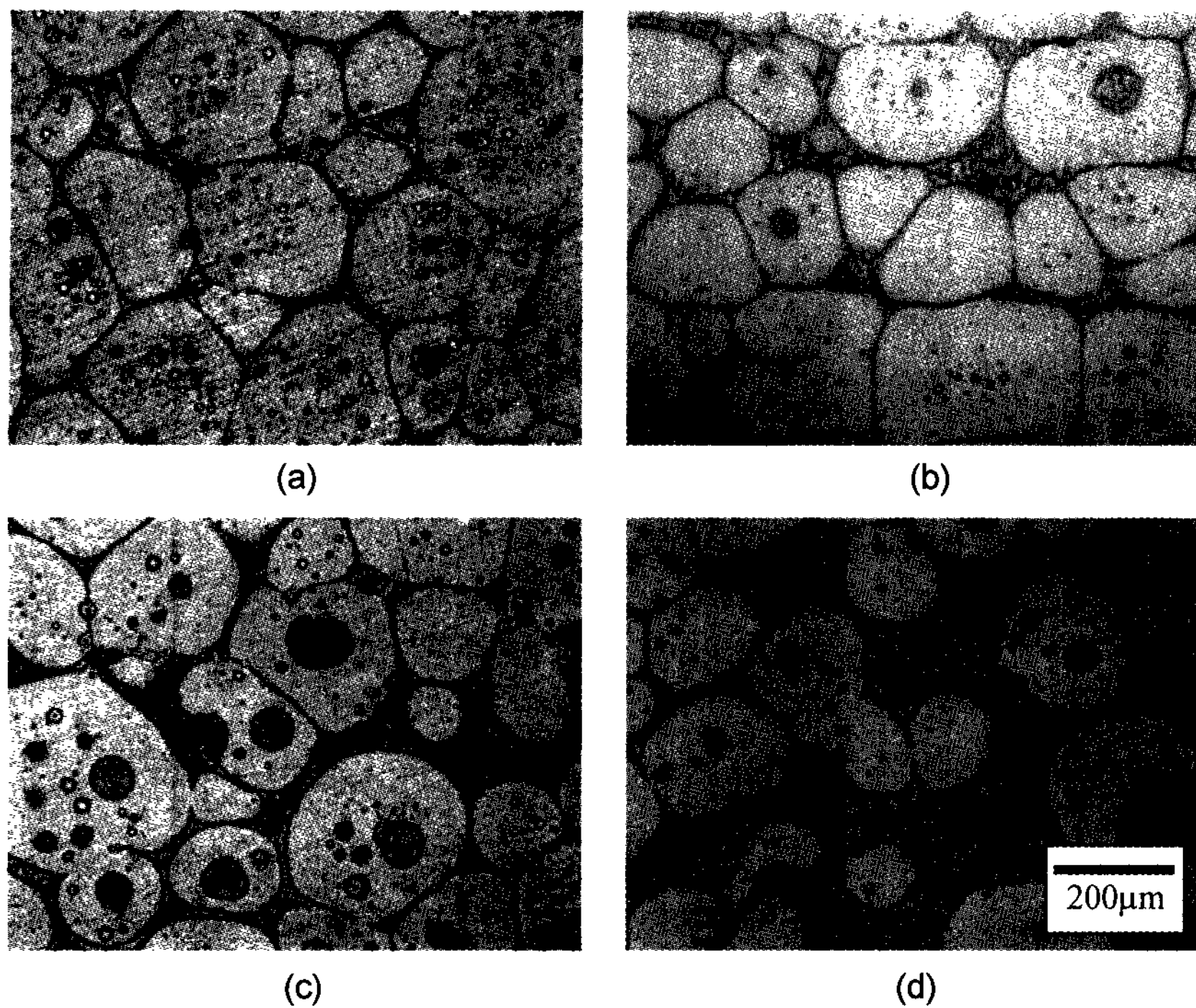


Fig. 6. Effect of isothermal holding temperature on the characteristics of semi-solid alloy (extruded and heated for 60 min.) : (a) 600°C (b) 605°C (c) 610°C (d) 615°C.

된다.

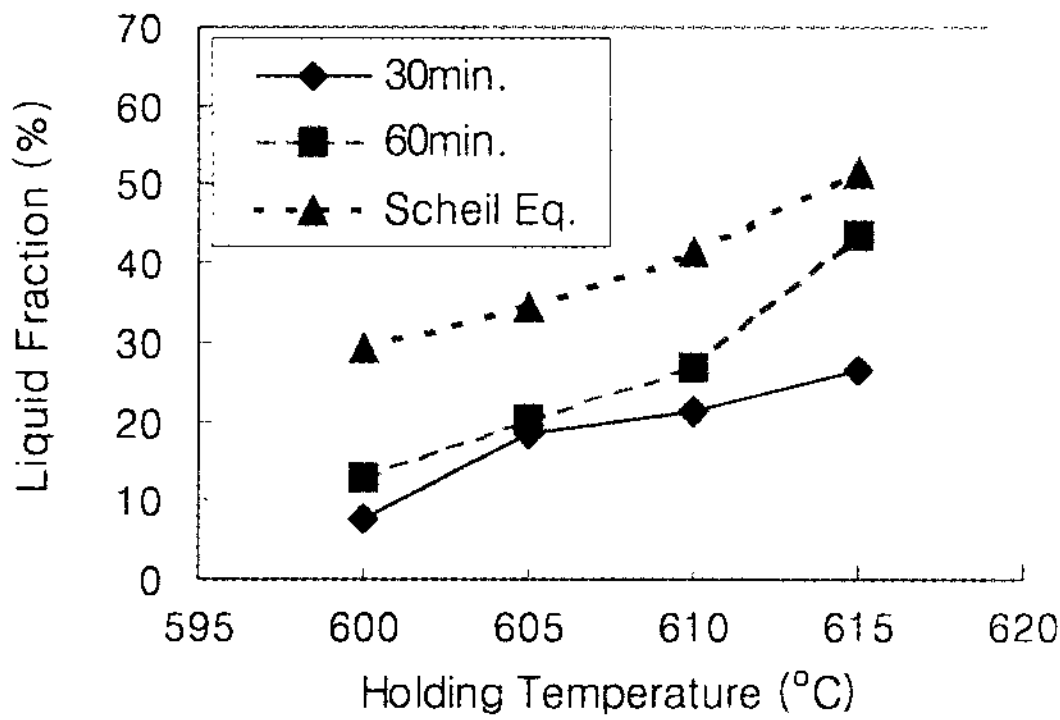
Dendrite 조직과 구형의 고상을 갖는 조직이 반응고 온도구간에서 변화하는 거동은 서로 다르다고 한다 [3,4]. Dendrite 조직의 경우에는 한 개의 초기 결정립이 여러 개의 구형입자로 분리되는 과정을 겪으며, 따라서 가열 초반부에는 동일 체적 당 고상 입자의 개수가 오히려 증가한다. 그러나 초기 결정립이 비교적 구형의 형태를 가지면 이러한 결정립의 분리 없이 입자의 조대화가 일어나게 된다. Fig. 5(b)는 Mg-5%Al합금의 등온가열시 고상입자의 크기 변화를 관찰한 결과이다. 주조재의 경우 가열시작 후 약 15분이 경과하면 초기 결정립 보다 작은 크기의 고상 입자로 변화하였으며, 다른 보고에서와 마찬가지로 한 개의 결정립이 여러 개로 분리된 것으로 보인다. 15분 이후로는 입자의 크기에 큰 변화가 관찰되지 않았다. 한편, 압출재 및 압연재는 미세하였던 결정립이 등온가열 후 15분 안에 급격히 성장하였으며, 이후에는 서서히 증가하여 60분 후에는 압연재와 압출재에서 입자크기가 거의 동일하였다. 입자의 조대화는 가열 속도가 빠르면 초반에 급격히 일어난 후 서서히 진행된다고 보고된 바 있

어 가열 속도가 빠른 본 실험의 결과와 일치하고 있다 [8].

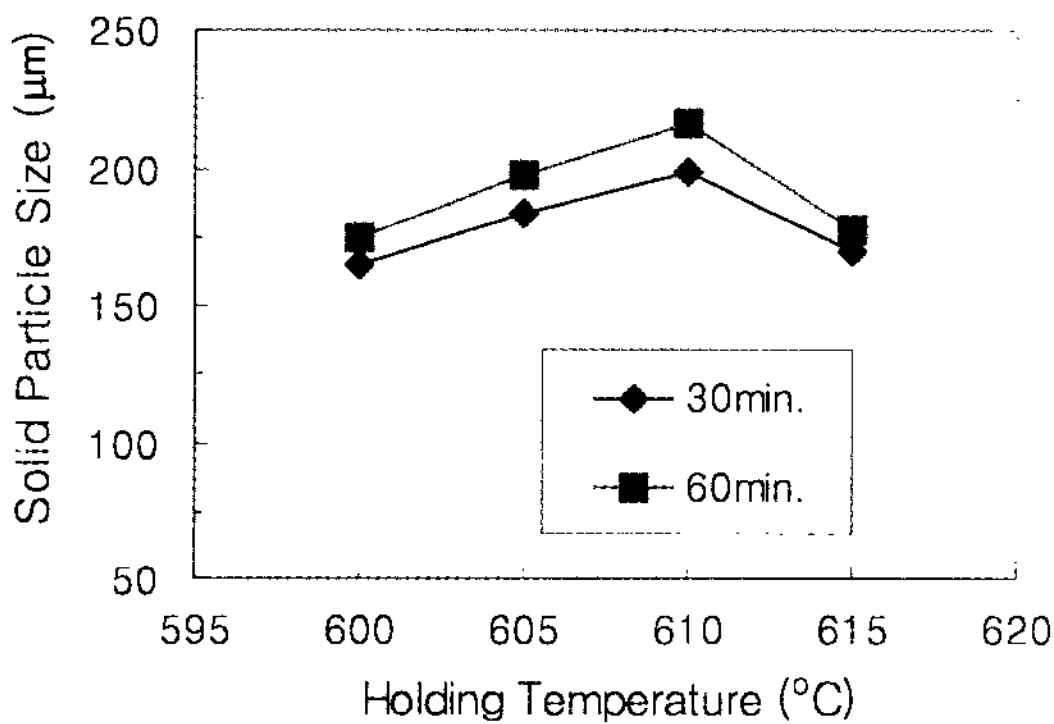
Ostwald ripening에 대한 수정 LSW이론에 의하면 결정립 크기는 유지시간의 1/3승에 비례하여 증가한다 [2,5,8]. 본 실험에서 조대화가 느리게 일어나는 구간인 등온가열 후 15분부터 60분까지의 유지시간에 따른 입자의 부피 증가, $D^3 - D_0^3$ (D_0 : 초기직경, D : 최종직경)를 계산해 보면 압연재의 경우 약 $760 \mu\text{m}^3/\text{sec}$ 였다. 참고로 25% 냉간 압연한 Al-7%Si- 0.6%Mg합금을 45%의 고상율을 갖는 온도에서 장시간 가열한 실험결과에서 얻어진 입자성장 속도 기울기($D^3 - D_0^3$ vs. time)는 $723 \mu\text{m}^3/\text{sec}$ 로 보고된바 있어서 본 실험에서 얻어진 값과 유사한 범위에 있다[2].

3.2.2. 온도의 영향

압출재에서 등온가열온도에 따른 조직변화의 차이를 관찰한 결과는 Fig. 6에 나타내었다. 이때의 가열시간은 60분이었으며, 비록 평형 액상율에 도달하지는 못했지만 주어진 온도마다 평형 액상율이 다르므로 측정된 액상의 양에도 뚜렷한 차이가 있었다. 용융된 부분을 관찰하면 입계에서 뿐만 아니라 입내에서도 액상이



(a)

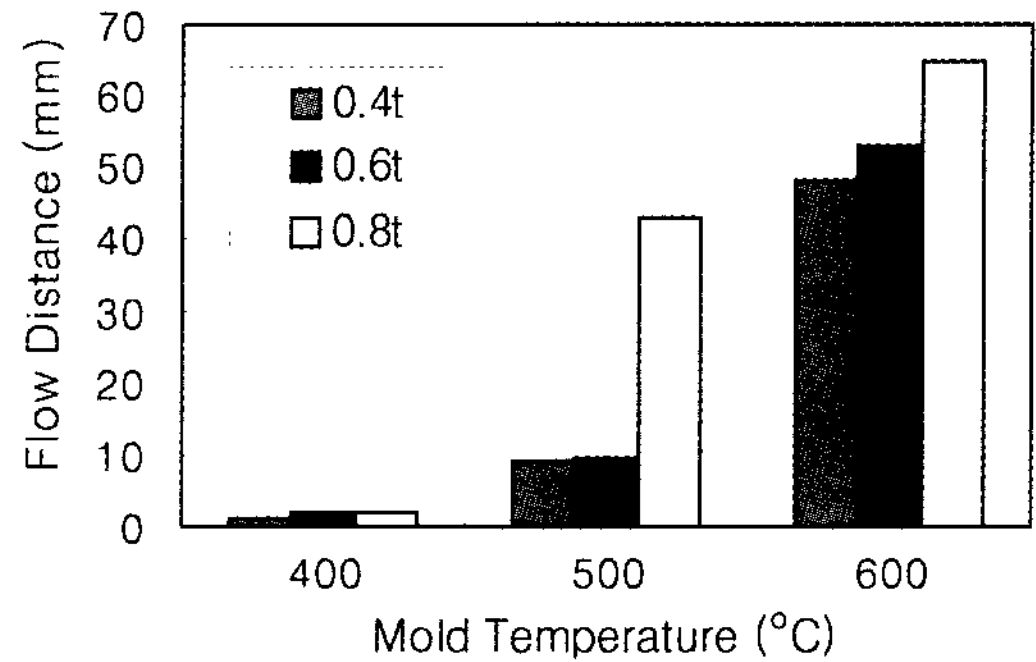


(b)

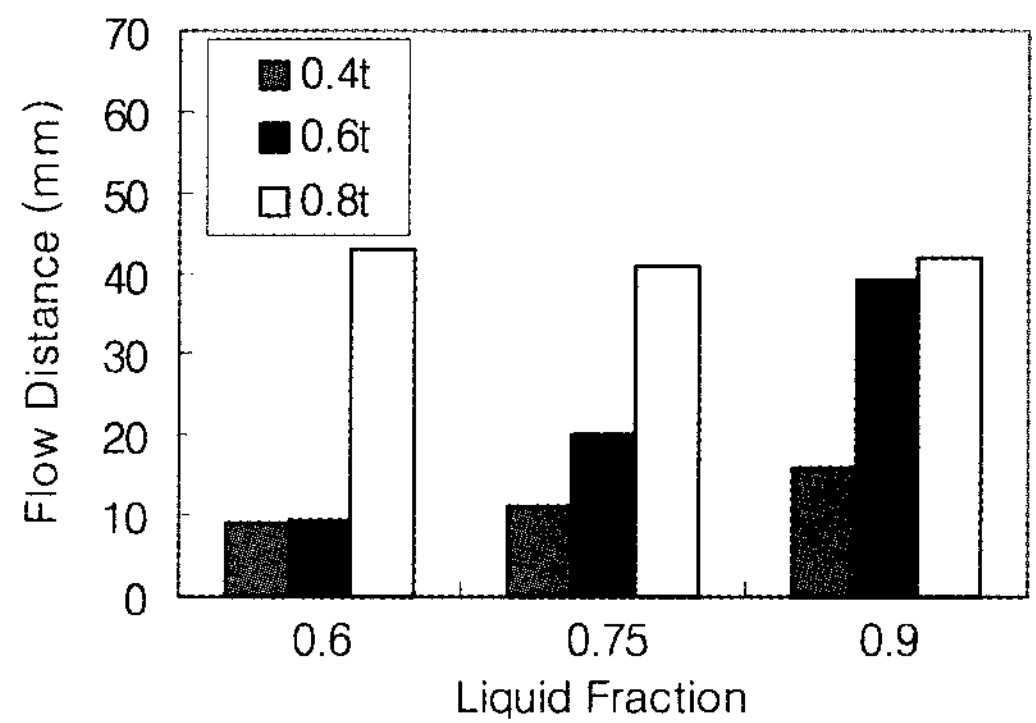
Fig. 7. Variation in the liquid fraction and solid particle size of specimens during isothermal holding at different temperatures.

존재하였으며, 고온일수록 입내에서 더욱 심각하게 용융이 일어나 일정 시간이 지나면 결정립 외부로까지 용융이 진행되고 결정립은 결국 내부와 외부의 액상이 연결된 반달모양의 형태로 바뀌기도 하였다.

Fig. 7에는 가열온도에 따른 액상율 및 입자크기의 차이를 정량적으로 나타내었다. 강력한 교반이 수반되는 반응고 슬러리 제조법과는 다르게 단순히 등은 가열하는 본 실험과 같은 경우에는 용질원소의 자발적 확산에만 의존하기 때문에 평형 액상율에 도달하기까지 비교적 장시간이 소요된다. 온도에 따른 측정 액상율을 Scheil equation으로 구한 평형치와 비교하면 예상처럼 상당한 차이가 있음을 알 수 있으며, 60분 유지시간을 기준으로 보면 고온인 경우에 그 차이가 약간 감소하는 경향을 보인다. Fig. 7(b)의 고상 입자크기와 가열온도와의 관계를 보면 온도가 상승함에 따라 점차 조대해 지다가 고온에서는 다시 감소하는 것으로



(a)



(b)

Fig. 8. Mold fillability of semi-solid slurry, isothermally heated at 615°C for 45 min : (a) effect of mold temperature (liquid fraction; 0.6) (b) effect of liquid fraction (mold temperature; 500°C).

나타났으며, 이처럼 615°C에서 고상 입자의 크기가 오히려 감소하는 현상은 고상의 용융에 의한 것으로 생각된다.

3.3. 금형 충전성 실험

반응고 슬러리의 성형성 평가를 위해서 주로 얇은 공간을 갖는 금형을 사용하며[10,11], 본 실험에서는 Fig. 3에 나타낸 금형을 열간 프레스에 장착하여 금형 충전성을 실험하였다. 시편은 로에서 45분 동안 등은 유지되어 반응고 상태가 된 후 금형으로 즉시 이송되고 프레스에 의해 성형되었다. 프레스의 압력이 너무 크면 공정조건별로 영향을 파악하는데 변별력이 작아 지므로 40 kg/cm²로 일정하게 하고 금형의 온도와 액상율에 따라 충전성이 어떻게 변화하는 지를 조사하였다. Fig. 8(a)에서는 슬러리의 충전성이 금형 온도에 의하여 크게 영향을 받는 것을 보여주고 있으며, 특히 400°C에서는 모든 두께의 공간이 거의 충전되지 않았

으나 500°C가 되면 두께 0.8 mm의 경우 급격히 충전성이 향상되는 것으로 나타났다. 이것은 금형에 비하여 상대적으로 부피가 작은 반응고 슬러리를 금형에 장입하여 성형할 때 온도저하가 매우 급격하게 일어나기 때문으로 사료된다. 두께 0.4나 0.6 mm의 매우 얇은 공간을 충분히 충전하기 위해서는 금형 온도가 반응고 슬러리의 온도와 큰 차이가 없는 600°C에 도달해야 하는 것을 알 수 있으나, 실제 제조공정에는 적용하기 어려운 온도이므로 프레스 압력이나 슬러리의 액상율 등 다른 방안으로 충전성을 높이는 방안이 강구되어야 할 것으로 생각된다.

Fig 8(b)에서는 금형 온도를 500°C로 일정하게 한 상태에서 반응고 슬러리의 액상율이 충전성에 미치는 영향을 나타내었다. 상대적으로 두꺼운 0.8 mm에서는 액상율의 영향이 거의 없었으나, 0.4나 0.6 mm에서는 충전성이 개선되는 것을 관찰할 수 있었다. 반응고 슬러리가 금형과 처음 접촉할 때 상당한 온도저하가 일어나지만, 금형의 얇은 공간을 채우는 동안에 일어나는 온도저하에 비해서는 작을 것으로 예상된다. 따라서 금형 온도가 충분히 높지 않은 상태에서는 액상율을 증가시켜도 어느 길이 이상의 충전(두께 0.6이나 0.8 mm의 경우 길이 약 40 mm)은 어려운 것으로 나타났다.

4. 결 론

Mg-5%Al합금의 주조상태, 압출 후, 압연 후 각각 시편을 채취하여 등온가열실험을 하였고 금형 충전성을 조사하여 다음과 같은 결과를 얻을 수 있었다.

1. 주조재를 등온가열하면 초기의 dendrite 조직이 분해되어 초기 결정립 보다 작은 구형의 입자로 변화하는 현상을 관찰하였다. 그러나, 형성된 입자들의 크기가 약 240 μm로서 여전히 조대하고 분포가 불균일하였다.

2. 압출재와 압연재의 두 경우에는 초기의 재결정립이 가열을 통해 크기 약 180 μm의 구형으로 변화하였으며, 비교적 균일한 반응고 조직을 얻을 수 있었다.

3. 교반 없이 등온 가열하는 경우에는 용질원소의 자발적 확산에만 의존하여 액상율이 증가하므로 평형값에 도달하기까지 비교적 장시간이 소요되는 것을 알 수 있었다.

4. 반응고 슬러리의 충전성은 금형 온도에 매우 민감하여 600°C까지 가열하면 0.4 mm의 얇은 두께를 길이 50 mm 가까이 충전할 수 있었으며, 금형 온도를 약간 낮추더라도 액상율을 증가시킴으로써 일부 충전성을 개선할 수 있었다.

참 고 문 헌

- [1] M. C. Flemings, Metallurgical Trans. A, vol.22 (1991) 957.
- [2] W. R. Loue and M. Suery, Materials Sci. & Eng. A, vol.203 (1995) 1.
- [3] E. J. Zoqui and M. H. Robert, J. of Materials Process. Technology, vol.109 (2001) 215.
- [4] J. L. Wang, Y. H. Su and C. Y. A. Tsao, Scripta Materialia, vol.37, No.12 (1997) 2003.
- [5] G. Wan and P. R. Sahm, Proceedings of the 2nd International Conf. on the Semi-Solid Porcess. of Alloys and Composites, MIT, Cambridge, Ma (1992) 328.
- [6] E. M. Gutman, A. Eliezer, Y. Unigovski and E. Abramov, Mater. Sci. & Eng. A, vol.302 (2001) 63.
- [7] W. J. Jung, K. T. Kim and C. P. Hong, J. of Korean Foundrymen's Society, vol.16, No.6 (1996) 556.
- [8] S. K. Kim and Y. J. Kim, J. of Korea Inst. Met. & Mater., vol.38, No.12 (2000) 1620.
- [9] T. Mohri, M. Mabuchi, M. Nakamura, T. Asahina, H. Iwasaki, T. Aizawa and K. Higashi, Mater. Sci. & Eng. A, vol.290 (2000) 139.
- [10] W. Lapkowski, J. of Materials Process. Technology, vol.80-81 (1998) 463.
- [11] S. K. Kim and Y. J. Kim, J. of Korea Inst. Met. & Mater., vol.38, No.12 (2000) 1626.