

## 연속 다단 ECAP 공정을 통한 급속응고 Al-20 wt% Si 합금 분말의 고형화 및 특성 평가

윤승채 · 복천희 · 서민홍<sup>a</sup> · 홍순직<sup>b</sup> · 김형섭<sup>\*</sup>

충남대학교 나노공학부, <sup>a</sup>포스코 기술연구소, <sup>b</sup>공주대학교 신소재공학과

### Consolidation and Mechanical Property of Rapidly Solidified Al-20 wt% Si Alloy Powders by Continuous Equal Channel Multi-Angular Pressing

Seung Chae Yoon, Cheon Hee Bok, Min Hong Seo<sup>a</sup>, Soon Jik Hong<sup>b</sup> and Hyoung Seop Kim<sup>\*</sup>

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

<sup>a</sup>POSCO, Technical Research Laboratories, Gwangyang, 545-090, Korea

<sup>b</sup>Kongju National University, Cheonan, Korea

(Received January 11, 2008; Accepted February 14, 2008)

**Abstract** In this study, the bottom-up powder metallurgy and the top-down severe plastic deformation (SPD) techniques for manufacturing bulk nanomaterials were combined in order to achieve both full density and grain refinement without grain growth of rapidly solidified Al-20 wt% Si alloy powders during consolidation processing. Continuous equal channel multi-angular processing (C-ECMAP) was proposed to improve low productivity of conventional ECAP, one of the most promising method in SPD. As a powder consolidation method, C-ECMAP was employed. A wide range of experimental studies were carried out for characterizing mechanical properties and microstructures of the ECMAP processed materials. It was found that effective properties of high strength and full density maintaining nanoscale microstructure are achieved. The proposed SPD processing of powder materials can be a good method to achieve fully density and nanostructured materials.

**Keywords :** Powder compaction, Severe plastic deformation, Consolidation, Equal channel angular pressing, Grain refinement

### 1. 서 론

나노 및 초미세 구조 재료는 기존의 상용 소재와는 달리 그 내부 결정립크기가 작아짐에 따라 입계나 상경계부의 체적 분율이 매우 크다. 따라서 재료 내부에 수많은 결정립의 존재로 인하여 기계적 또는 물리적 특성이 매우 우수하며, 최근에 이를 이용한 실제 적용 사례 또한 많이 발표되고 있다<sup>1-4</sup>). 이러한 나노기술의 응용 효과는 특히, 소재분야에 있어서 큰 기여를 할 것으로 예상되어지며, 여타 분야에의 파급효과 역시 매우 클 것으로 전망된다. 이러한 우수한 특성을 나타내는 나노구조 재료를 효과적으로 제조하기 위해

서 나노 분말 합성 제조 기술을 비롯한 많은 연구가 이루어지고 있는데, 그 중 기상 응축법(Gas Phase Condensation)을 비롯한 고주파 플라즈마에 의한 화학적 합성(High Frequency Plasma Chemical Process), 수열합성법(Hydro Thermal Method) 등이 대표적이라 할 수 있으며, 이러한 공정들을 통해 제조된 분말의 특성을 더욱 효과적으로 얻기 위해 단일상 뿐 아니라 복합상으로 사용되기도 한다<sup>5-7</sup>). 그러나 우수한 특성을 가지는 분말의 실용화를 통해 고부가가치 산업으로의 응용 범위를 넓히기 위해서는 유효 크기를 갖는 분말의 고형화 및 치밀화가 반드시 이루어져야 한다. 현재까지 나노재료의 벌크화를 위한 많은 분말야

\*Corresponding Author : [Tel : +82-42-821-6596; E-mail : hskim@cnu.ac.kr]

금 공정 연구들이 선행되어지고 있으나, 아직도 기술적으로 많은 어려움을 겪고 있는 실정이다. 일반적으로 분말야금 공정에 있어서 제조된 벌크의 밀도를 높이는 동시에 분말의 내부 결정립 성장을 최소화시키려는 연구가 이루어져야 하는데, 특히 나노/초미세 분말의 경우, 이를 효과적으로 이루고자 하는 연구가 더욱 중요해진다<sup>8-9)</sup>. 이러한 문제들을 효과적으로 대처할 수 있는 있는 벌크화 제조 공정의 연구가 다방면으로 수행되고 있는데, 그 대표적인 적용 사례가 강소성 공정(Severe Plastic Deformation: SPD)이다. 기존의 일반적인 강소성 공정은 결정립미세화를 통하여 벌크재료를 나노 및 초미세 결정립 재료로 제조하는 공정에 대부분 적용되어 있으나, 최근 분말을 고형화하는 공정으로 적용된 연구결과들이 발표된 이후 많은 주목을 받고 있다. 대표적인 강소성 공정으로는 등통로각압축공정(Equal Channel Angular Pressing: ECAP), 누적압연접합(Accumulative Rolling Bonding: ARB), 고압비틀림공정(High Pressure Torsion: HPT) 등이 있으며<sup>10-12)</sup>, 이러한 공정을 이용하여 분말의 효과적인 치밀화 및 고형화와 동시에 결정립미세화를 이룬 다양한 사례들이 발표되고 있다<sup>13-14)</sup>.

ECAP 공정의 경우, 소재의 단면 형상 변화 없이 심한 전단소성변형을 주어 초미세/나노 소재를 얻을 수 있는 간단한 공정으로서 각광을 받고 있다. 또한 1회의 공정에서 다단의 반복 전단변형을 통해 소재에 부과하는 변형률의 양을 제어할 수 있으므로, 이를 효과적으로 이루기 위해 Lui 등<sup>15)</sup>과 Nakashima 등<sup>16)</sup>에 의하여 연속 공정이 제안되었으나, 공정 및 변형 변수에 대한 연구는 미흡한 실정이며, 이에 Kim 등<sup>17-18)</sup>에 의해 다단 공정에 대한 변형 및 기계적 특성에 영향을 미치는 공정 이력 및 변수에 대한 연구가 수행된 바가 있다. 공정의 산업화를 극대화하기 위해서는 연속 공정의 개발 및 최적의 공정 설계는 그 의미가 대단히 크다고 할 수 있다.

한편, 본 연구에서 사용된 재료는 급속응고 공정으로 제조된 Al-20 wt% Si 합금 분말로서, 구조성 및 내마모성이 우수하고 열팽창계수가 낮아 자동차 및 전자 산업에 응용되고 있다. 특히 급속응고 기술을 이용하면 조직 미세화가 수반된 과공정 Al-Si 합금의 제조가 가능하여 내마모 특성을 향상시킬 수 있을 뿐만 아니라 고온에서도 안정된 급속간 화합물을 균일하게 분포시킴으로서 높은 고온강도를 유지할 수 있

는 큰 장점이 있다. 제조 방법으로는 상임용 순금속을 흑연 도가니에 넣고 고주파 유도로를 이용하여 Al-20 wt% Si의 모합금을 제조한 후, 흑연 도가니 및 고주파 유도로에서 액상 온도로부터 200 K 이상으로 재용해하여 합금 용탕 온도와 동일한 온도로 유지된 텀디쉬에 주입하였다<sup>13)</sup>. 용탕은 텀디쉬 바닥에 설치된 지름 3 mm의 오리피스를 통하여 흐르다가 그 주위를 둘러싼 에어노즐로부터 분사되는 기체에 의해 분무되어 합금 분말로 제조되었다. 이 때 분무 기체로는 0.8 MPa 압력의 질소를 사용하였으며, 용탕 유속은 약 0.8 Nm<sup>3</sup>/min이었고, 제조된 분말의 입도는 약 106~145 μm를 선택하였다. 얻어진 분말 중 26 μm이하의 미세한 분말은 비정질상이 많이 형성되므로 기계적 성질이 매우 우수하지만 기체분무공정에서의 수율이 좋지 않으므로 본 연구에서는 사용하지 않았다. 본 연구에 사용된 입도 106~145 μm 분말 수율이 높은 반면에 초기 분말상태의 기계적 특성은 미세한 분말보다는 좋지 않지만, ECMAP 공정을 통해 특성 향상을 시도하였기 때문에 공학적으로 매우 의미가 있다<sup>19)</sup>. 본 연구 수행에 사용된 연속 다단 ECMAP(Continuous Equal Channel Multi-Angular Pressing: C-ECMAP) 공정의 모식도는 그림 1과 같으며, 성공적인 공정의 수행을 위해서 최적의 금형 설계가 필요하게 되는데, 이를 위해 그림 1에 나타난 바와 같이 상부 램(upper ram)과 하부 램(lower ram)을 독립적으로 작동할 수 있는 복동식 구조를 제안하였고, 특히 하부 램은 지지대에 고정되어 금형을 직접 구동할 수 있도록 설계되었다<sup>19-21)</sup>. 본 연구에서 제안된 ECMAP 공정은 통상의 ECAP 공정에서의 경로 C에 해당하며, 다단 채널로 인해 효과적인 분말 결합을 위한 압력을 높일 수 있는 사항을 고려할 때, 기존 공정과 차별화를 두고 있다. 이에 연속 공정이 가능한 연속 다단 ECMAP 공정을 통해 분말 치밀화를 달성하며, 또한 ECMAP 공정으로 제조된 소재의 기계적 특성을 고찰하고자 한다.

## 2. 실험 방법

ECMAP 공정은 크게 2단계로 나누어지는데, 1단계의 분말 장입과 2단계의 연속가공 공정 단계로 나눌 수 있다. 1단계에서 하부 램에 의해 금형을 내린 상태에서 시편을 장입하고 적당한 압력을 작용하게

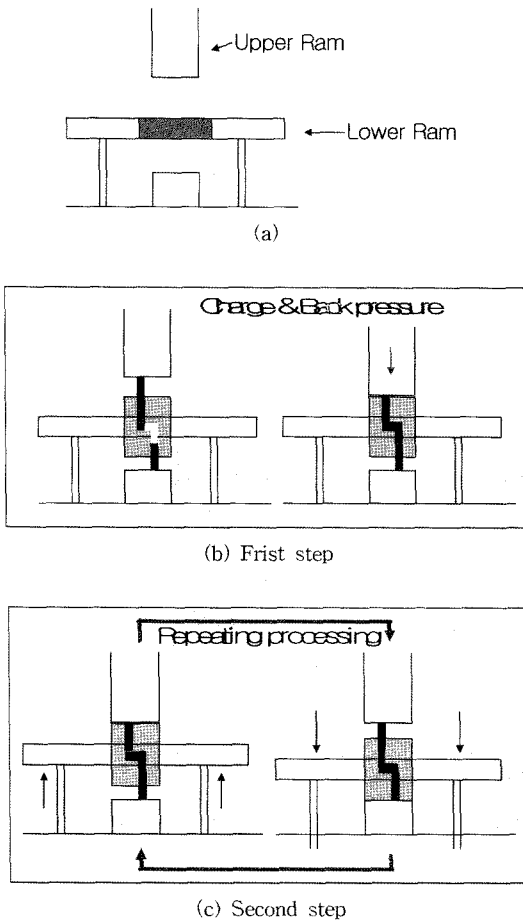


Fig. 1. Schematic of continuous equal channel multi-angular pressing process.

함으로써 상부 램(upper ram: 그림 1(a))의 이송거리를 조절하게 된다(그림 1(b)). 분말 장입의 경우 냉간 정수압 공정으로 통해 얻어진 분말 고형체를 사용하게 되며, 그 초기 상대밀도는 약 70% 정도를 얻도록 하였다<sup>9)</sup>. 2단계 연속 가공 공정은 하부 램(lower Ram: 그림 1(a))을 상하로 반복 구동시켜 장입된 시편에 대변형을 가하는 공정으로써, 분말 압분의 경우 가공 속도를 적절히 제어하여 분말 소재의 냉간 소결을 유도한다(그림 1(c)). 이는 기존의 ECAP 공정의 플러저를 통한 압축 공정과 달리 금형의 채널이 상하 구동함으로 소재에 대변형을 주게 된다. 또한 효과적인 정밀 조절을 위해 일반 PC를 사용하여 제어 뿐 아니라 각종 자료를 계측할 수 있도록 그림 2와 같이 자동화 설비를 구축하였다<sup>21)</sup>.

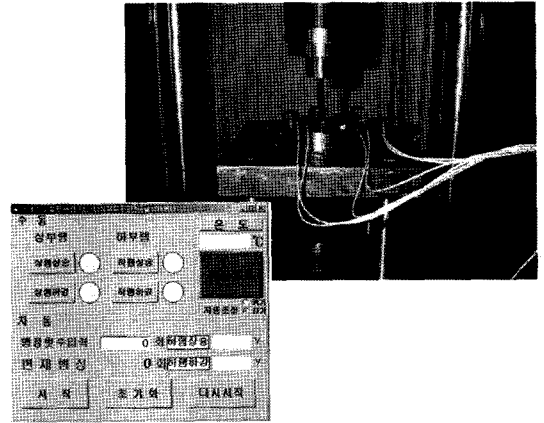


Fig. 2. Continuous equal channel multi-angular pressing system and automatic control program.

연속 ECMAP 공정에서 사용된 윤활재로는 MoS<sub>2</sub>를 채택하였으며, 변형속도는 4 mm/s로 일정하게 유지하여 40회 반복 공정을 진행하였고, 분말간의 효과적인 결합을 위해 약 100°C에서 가공 공정을 수행하였다. 미세조직은 시편을 증류수 190 ml, 질산 5 ml, 염산 3 ml, 불산 2 ml인 Dix-Keller를 사용하여 30 초간 에칭 하였고, 주사전자현미경(ESI-SX-40)을 사용하여 관찰하였다. 미세비커스경도기(HM-122 Akashi)를 사용하여 100 g, 부하시간 10초의 조건에서 기계적 특성을 평가하였다<sup>13,19)</sup>.

### 3. 결과 및 고찰

그림 3은 초기 급속응고 공정을 통해 얻은 Al-20 wt% Si 분말 형상으로서, 분말의 크기는 대략 106~145 μm이다. 초정 Si 입자의 크기가 약 4~5 μm이며, 공정 Si의 경우는 1 μm이하의 크기를 가지고 있음을 알 수 있다. 그림 4(a)는 100°C에서 경로 C를 이용하여 8회 가공한 기존의 분말 ECAP 결과를 나타낸 것으로<sup>13)</sup>, ECAP 공정을 수행한 결과 분말 결합이 매우 효과적으로 이루어지고 있음을 관찰할 수 있다. 이와 관련하여 그림 4(b)는 본 연구에서 ECMAP 공정을 40 사이클 진행한 결과로서, Kim 등의<sup>17-18)</sup> 연구 결과에 따르면, 변형률이 약 84에 해당한다. ECMAP 가공된 시편의 미세조직을 분석 결과 초정의 크기가 약 1 μm이하, 공정 Si는 대략 0.2 μm이하로 미세화된 조직을 얻을 수 있었다. 이는 그림 4(a)에서 나타나는 초정 Si 입도가 3 μm, 공정

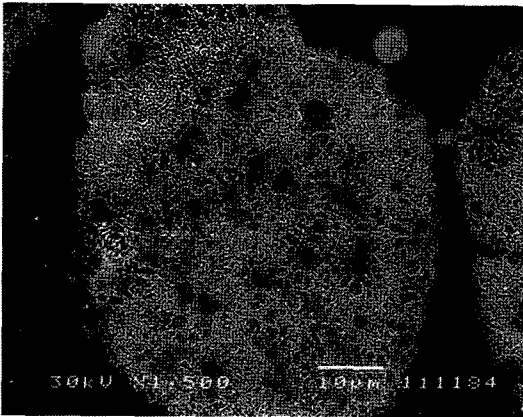
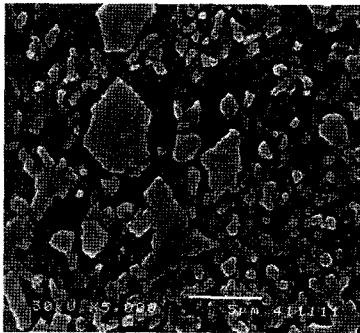
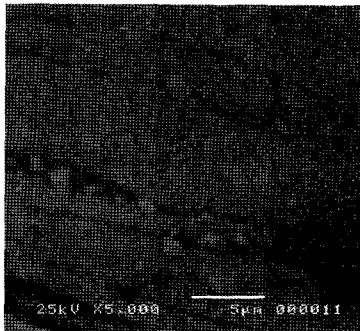


Fig. 3. Scanning electron micrograph of gas atomized Al-20 wt% Si powders.



(a) Equal channel angular pressing: 8 passes route C



(b) Continuous equal channel multi-angular pressing: 40 cycles

Fig. 4. Scanning electron micrographs of longitudinal section of 100°C severe plastic deformed Al-20 wt% Si work-piece.

Si 입도가 1 μm임을 고려할 때<sup>13)</sup> 매우 미세한 결정립이 얻어짐을 알 수 있다. 또한 아르키메데스 법을

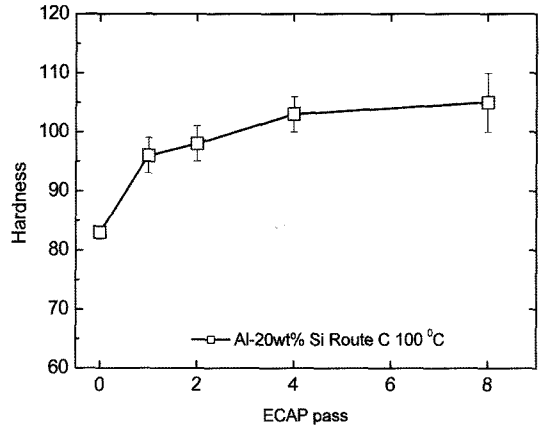


Fig. 5. Microvickers hardness as a function of the number of equal channel angular pressing passes at 100°C.

이용한 상대밀도 측정치가 약 98%이상을 얻을 수 있으므로 연속 ECMAP 공정이 분말 치밀화에 매우 효과적임을 알 수 있다.

그림 5에서 관찰할 수 있는 바와 같이 초기 분말이 가지는 미세경도의 경우 약 84 Hv 이었으며<sup>13)</sup>, 기존의 ECAP 공정은 공정이 증가함에 따라 미세경도가 상당히 증가된 결과를 얻을 수 있었다. 이는 ECAP 공정이 진행됨에 따라 전단변형으로 인한 재료 내부에서 지속적인 전위 증식이 발생하여 결정립이 미세화 되었으며, 낮은 온도의 온간가공이므로 결정립성장 및 재결정이 큰 영향을 미치지 못한 것으로 사료된다. 본 연구에서 사용된 연속 ECMAP 공정은 공정 완료 후 평균 약 130 Hv를 얻을 수 있었고(그림 6), 이는 기존의 ECAP 경로 C를 이용하여 8회 공정된 결과가 약 100 Hv에 해당한 것임을 고려할 때<sup>13,19)</sup>, 대단히 높은 값이라 할 수 있으며, 본 공정이 연속적인 공정임으로 고려할 때, 짧은 공정 시간 내에 높은 변형률을 제공함으로써 기존의 ECAP 공정에 비하여 효율성이 매우 크다고 할 수 있다. 또한 그림 6에서 나타나듯이 상하좌우의 미세경도의 분포를 측정한 결과에서도 내부적으로 매우 균일한 경도값을 얻을 수 있었다. 반면 윗부분의 경도가 낮게 나타나는 것은 분말 충진을 수행할 경우, 1단계에서 램프 급형에 의해 고형화가 이루어지나 2단계 공정에서 이 윗부분은 ECMAP 채널을 통과하지 않는 비정상상태 구간이기 때문에 다른 부위에 비해 경도가 낮게 측정된 것으로 사료된다. 변형이 균일한 정

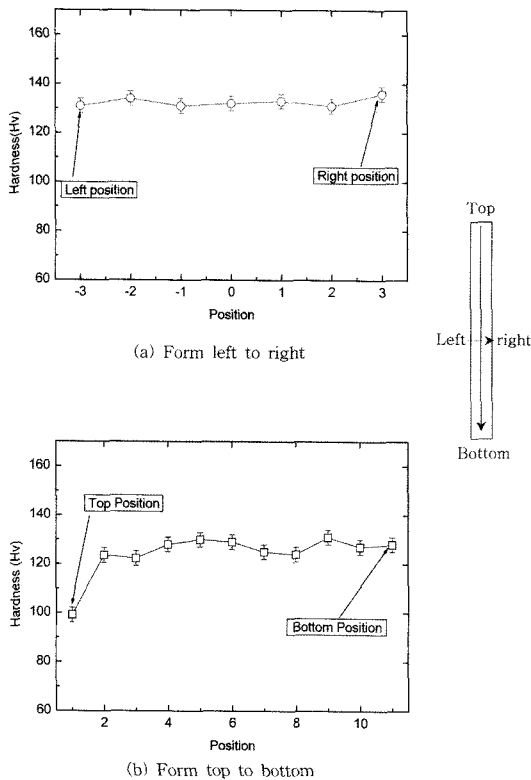


Fig. 6. Path plot of the microvickers hardness of continuous equal channel multi-angular pressed samples.

상상태 영역을 고려할 때, Kim<sup>17-18)</sup>등이 제안한 바와 같이 연속 ECMAP 공정은 소재의 균일 대변형에 매우 효과적임을 알 수 있다. 이상의 실험으로부터 연속 ECMAP 공정은 온간 공정에서 분말 결합에 필요한 높은 압력 유지와 동시에 지속적인 전단변형으로 인한 전위 증식 및 분말 표면의 산화막을 깨트림으로서 결정립 성장을 최소화하고 분말 고형화 및 치밀화를 이룰 수 있었다. 특히 열적 에너지에 민감한 나노/초미세 분말의 경우 벌크화를 이루는데 유용한 공정으로 사료된다.

#### 4. 결 론

기존의 벌크 나노/초미세 구조 소재 제조 공정으로 각광을 받던 강소성 공정을 통해 분말 고형화 및 특성 평가를 시행하였다. 일반적으로 사용된 Equal Channel Angular Pressing(ECAP) 공정으로부터 연속적 다단 공정이 가능한 Continuous Equal Channel

Multi-Angular Pressing(C-ECMAP) 공정을 설계하였으며, 이를 이용하여 분말 고형화 공정을 수행하였다. 연속 ECMAP 공정은 기존의 ECAP 경로 C 공정을 재구성한 것으로써 단시간의 연속 공정으로 많은 유효변형률을 얻을 수 있는 큰 장점이 있다.

미세조직의 경우, ECAP 공정에서 경로 C 8회 가공한 소재의 초정 Si 크기는 약 3 μm에 해당하였으나, 40 사이클의 ECMAP 공정을 통해서 1 μm이하의 크기를 얻을 수 있었으며, 공정 Si 크기는 기존의 약 1 μm에서 0.2 μm이하의 값을 얻을 수 있었다. 또한 경도값에 있어서도 기존의 ECAP 경로 C 8회 공정의 경우, 초기 분말에 비교하여 약 30%의 증가를 나타내었으나, 40 사이클 ECMAP 공정의 경우, 약 60%에 해당하는 증가를 얻을 수 있을 뿐만 아니라 위치에 상관없이 매우 균일한 경도값을 얻을 수 있었다. 이를 통해 ECMAP 공정은 분말의 고형화 및 치밀화 뿐만 아니라 균일 대변형을 이루는데 매우 효과적임을 알 수 있다.

#### 감사의 글

이 논문은 2007년도 과학기술부의 재원으로 한국 과학재단의 국가지정연구실 사업으로 수행된 연구입니다(No. R0A-2007-000-20104-0).

#### 참고문헌

1. R. W. Siegel and G. E. Fougere: Nanostruct. Mater., **6** (1995) 205.
2. R. Birringer: Mater. Sci. Eng. A, **117** (1989) 33.
3. R. W. Siegel: Nanostruct. Mater., **3** (1993) 1.
4. H. S. Kim, M. B. Bush and Y. Estrin: Acta Mater., **48** (2000) 493.
5. B. H. Kear and P. R. Strutt: Acta Mater., **6** (1995) 227.
6. J. G. Park: J. Korean Ceramic Society., **10** (2007) 1.
7. H. Gleiter: Nanostruct. Mater., **4** (1994) 121.
8. H. S. Kim, Y. Estrin, E. Y. Gutmanas and C. K. Rhee: Mater. Sci. Eng. A, **307** (2001) 67.
9. S. C. Yoon, H. S. Kim and C. K. Rhee: J. Korean Powder Metall. Inst., **11** (2004) 341.
10. S. Ohsaki, S. Kato, N. Tsuji, T. Ohkubo and K. Hono: Acta Mater., **55** (2007) 2885.
11. H. S. Kim, M. H. Seo and S. I. Hong: Mater. Sci. Eng. A, **291** (2000) 86.
12. R. Z. Valiev, R. K. Islamgaliev and I. V. Alexandrov: Prog. Mater. Sci., **45** (2000) 103.

13. S. C. Yoon, S. J. Hong, M. H. Seo, Y. G. Jeong and H. S. Kim: J. Kor. Powder Metall. Inst., **11** (2004) 233.
14. S. Y. Chang, K. S. Lee, S. H. Choi and D. H. Shin: J. Alloys Comp., **354** (2004) 216.
15. Z. Y. Liu, G. X. Liang, E. D. Wang and Z. R. Wang: Mater. Sci. Eng. A, **242** (1998) 137.
16. K. Nakashima, Z. Horita, M. Nemoto and T.G. Langdon, Mater. Sci. Eng. A, **281** (2000) 82.
17. M. H. Seo and H. S. Kim: J. Korean Inst. Met. Mater., **39** (2001) 360.
18. H. S. Kim: Mater. Sci. Eng. A, **328** (2002) 317.
19. S. C. Yoon: Chungnam National University, Master's Thesis (2004).
20. M. H. Seo: Chungnam National University, Doctor's Thesis (2005).
21. H. S. Kim, M. H. Seo, B. S. Moon, Y. S. Jang, W. S. Ryu, S. C. Yoon, Y. G. Jeong: Korea Patent, **0587536** (2004).