

## 고압비틀림 성형 공정에 의한 Al 분말의 초미세결정 벌크화 및 특성 평가

주수현 · 윤승채<sup>a</sup> · 이종수 · 김형섭\*  
포항공과대학교 신소재공학과, <sup>a</sup>현대 HYSCO 기술연구소

### Microstructure and Mechanical Behavior of Ultrafine Grained Bulk Al Processed by High Pressure Torsion of the Al Powders

Soo-Hyun Joo, Seung Chae Yoon<sup>a</sup>, Chong Soo Lee, and Hyong Seop Kim\*

Department of Materials Science and Engineering,

POSTECH (Pohang University of Science and Technology), Pohang, 790-784, Korea

<sup>a</sup>Automotive Steel Research & Development Team, Hyundai HYSCO, Dangjin-gun, 343-831, Korea

(Received January 18, 2010, Revised February 3, 2010, 2009; Accepted February 17, 2010)

**Abstract** Bulk nanostructured metallic materials are generally synthesized by bottom-up processing which starts from powders for assembling bulk materials. In this study, the bottom-up powder metallurgy and High Pressure Torsion (HPT) approaches were combined to achieve both full density and grain refinement at the same time. After the HPT process at 473K, the disk samples reached a steady state condition when the microstructure and properties no longer evolve, and equilibrium boundaries with high angle grain boundaries (HAGBs) were dominant. The well dispersed alumina particles played important role of obstacles to dislocation glide and to grain growth, and thus, reduced the grain size at elevated temperature. The small grain size with HAGBs resulted in high strength and good ductility.

**Keywords** : Severe plastic deformation, High pressure torsion, High angle grain boundaries, Tensile behavior

## 1. 서 론

최근 나노미터 크기의 극미세 영역에서 재료의 새로운 물리적 현상과 향상된 특성을 나타내는 많은 연구결과가 보고됨에 따라, 나노 과학/기술이 새로운 영역으로 많은 각광을 받고 있다. 이러한 영향은 소재 분야에서도 파급되고 있으며, 나노소재의 제조에 대한 많은 연구 성과들이 발표되고 있다[1-4]. 이에 나노결정립 구조 재료를 얻기 위해 분말을 이용한 벌크 소재를 제조하는 Bottom-up 방식의 공정에 대한 관심이 높아지고 있다[5-7]. 기계적 합금화 분말, 나노 분말과 같은 고기능, 우수 분말들을 제조하여 기존에 상용된 재료의 물성을 뛰어넘는 새로운 재료를

얻을 수 있으며, 이에 따른 새로운 분말 성형법이 필요하게 되었다. 고상에서 분말의 고형화는 소성변형에 의하여 주로 이루어짐으로 응력, 온도, 가공시간, 응력/온도의 비율 등의 공정조건을 적절히 고려해야만 우수한 부품 소재를 얻을 수 있다[8-10].

최근 수십년간 나노결정립 상태의 미세조직을 유지하면서 진밀도의 벌크 재료를 얻으려는 시도가 많이 진행되어 왔으며, 고형화 공정 중에 결정화 및 결정립 성장 억제를 이루는 동시에 높은 치밀화를 얻을 수 있는 가공 공정에 대한 연구가 요구되었다. 이에 강소성(Severe Plastic Deformation: SPD) 공정을 통한 분말고형화가 적합한 분말성형법으로 평가되어 많은 연구가 진행되어 왔다[7, 9, 10]. 강소성 공

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

정중의 하나인 고압비틀림(High Pressure Torsion: HPT) 성형 공정에서는 높은 변형량과 정수압을 통해 고경각계를 가지는 균일한 나노결정립 구조재료를 얻을 수 있으므로, 최근 연구가 활발히 되고 있다[11].

고순도(99.99%) AI 분말을 상온에서 HPT 공정을 통해 결정립 크기가 ~500 nm이며, 진밀도를 이룬 재료가 보고되었다[11]. 이 결과는 초기에 벌크재료를 이용한 다른 실험보다 더 미세한 결정립 크기와 우수한 경도값을 가지는 것으로, 분말재료를 이용한 HPT 공정의 우수성을 설명하였다. 공정온도에 따라 재료는 상이한 미세조직을 보이며, 이 미세조직적 차이에 의해 공정 후 재료의 기계적 성질이 달라지는 것은 이미 널리 알려진 사실이다. 하지만, 아직 상온 이외의 다른 온도에서 AI 분말을 이용한 HPT 공정 후 얻은 벌크재료의 미세조직적 분석은 아직 보고된 바 없다. 이에 본 연구에서는 AI 분말을 473K에서 HPT 공정을 통해 분말의 고형화를 이루면서, 나노결정립 벌크재료를 제조하고, 제조된 재료의 미세조직과 기계적 성질을 고찰하고자 한다.

## 2. 실험방법

본 연구에서는 473K 온도에서 조대한 순수한 AI(CP, commercially pure) 분말을 이용하여 HPT 공정을 진행하였다. 그림 1은 분말 HPT 공정의 개략적인 모식도이다. 하부 다이에 존재하는 0.25 mm 깊이의 원형 홈에 분말을 넣고, 하부 다이를 올려 하부다리와 같은 모양으로 대칭인 상부 다이에 분말이 접촉하게 될 때 압력은 6 GPa를 가하였다. 10 초 후, 하부 다리가 1 rpm의 속도로 6 GPa 압력상태를

유지하면서 회전하고, 10 회전을 끝낸 후 실험을 종료하였다.

HPT공정 후 제조된 벌크 디스크의 기계적 성질을 실험하기 위해 디스크를 Sand paper와 0.25  $\mu\text{m}$  다이아몬드 분말을 이용해 표면을 매끄럽게 처리하여, 광학현미경을 통해 재료내부에 존재하는 잔류기공의 유무를 측정하였다. 비커스 경도는 300 g의 압력과 10 초간 유지시간으로, 디스크의 중심에서 가장자리로 Future-Tech FM-700 테스트기를 사용하여 측정하였다.

인장 특성 평가를 위해 Dog-bone 모양의 인장시편을 HPT 디스크의 중심부에서 2.5 mm 벗어난 지점에서 Wire cutting을 이용해 준비하였고, 이 때 시편의 Gauge length는 1.25 mm 그리고 폭은 1 mm 였다. 각 인장시편의 두께는 HPT 디스크의 두께와 같다. 인장실험은 상온에서 초기 변형속도 값이  $8.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 로 시작되었고, 실험이 진행되는 동안 아주 작은 인장 시편(Gauge length=1.25 mm)의 정확한 변형량이 ARAMIS 5M을 통하여 측정되었다. ARAMIS 5M는 변형중인 시편의 3차원 좌표와 변형량을 디지털 이미지를 통해 측정하는 Vision strain gauge system이다.

결정립 크기와 결정립 방위분포(Misorientation distribution) 등 미세조직의 특징을 EBSD(Electron Backscatter Diffraction)와 투과전자현미경(Transmission Electron Microscope)을 이용하여 관찰하였다. 두 실험시편 모두 초기 기계연마를 통해 HPT 디스크의 두께를 150  $\mu\text{m}$ 로 기계연마로 가공한 후, 가공 중 변형을 최소화 하기 위하여 0.25  $\mu\text{m}$  다이아몬드를 이용한 최종 연마를 통해 거울면을 만들었다.

EBSD 시편은 기계연마 된 HPT 디스크 중심, 그

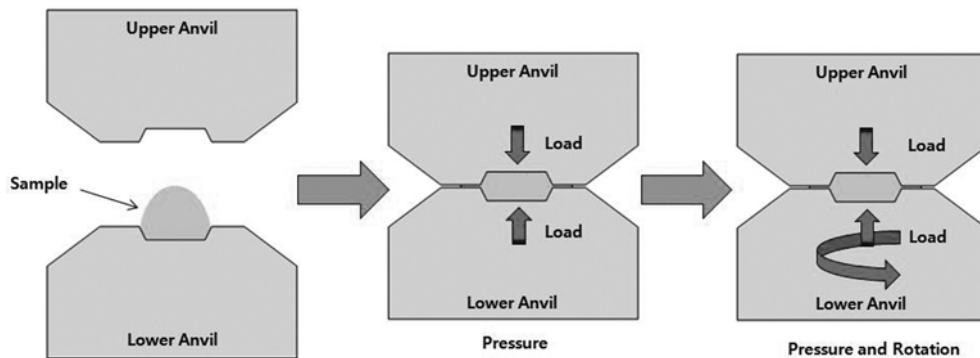


Fig. 1. Schematic illustration of HPT facility and operation with a pressure.

리고 중심에서 2.5 mm, 5 mm 떨어진 3 부분에서 기계적 펀칭 방법으로 얻은 후, 전해연마를 통해 변형층을 제거해 주었다. EBSD 측정장비는 POSTECH의 NCNT(National Center for Nano Technology)에 있는 3D Total Analysis(Dual FIB: Helios Nanolab) 장치에 부착된 Hikari EBSD detector를 사용하였다. 분말 HPT 공정에서 얻어진 Al 벌크재료의 결정립 크기가 아주 미세할 것으로 예측되어, 보통 일반적으로 사용하는 ~80 nm의 분해능 보다 더 정확한 20 nm의 분해능으로  $5.76 \times 17.11 \mu\text{m}^2$  면적이 자동 빔 스캔으로 결정립 방위가 측정되었다[12]. EBSD의 결과값의 신뢰성을 높이기 위해 Confidence index(CI) 값이 0.1 보다 작은 값들은 Clean-up 과정이 이용되었고, EBSD의 각분해능의 한계 때문에 두 결정립 사이 경계각이  $2^\circ$  이하인 경우는 분석에서 제외하였다[13].

투과전자현미경 시편은 EBSD 시편과 동일한 방법으로, 디스크의 중심에서 2.5 mm 떨어진 부분에서 3 mm 원형시편을 얻었다. 이 3 mm 원형시편에 마지막으로 Focused Ion Beam(FIB) 기술을 이용하여 시편준비를 완료 후, NCNT에 있는 JEOL JEM-2100F장치에서 200 KeV로 TEM 미세조직 측정을 하였다.

### 3. 결 과

HPT 공정 중 시편이 받는 변형량은 간단하게 다음 식으로 계산된다: Shear strain  $\gamma = 2\pi rN/t$ , 여기서 N은 회전 수, t는 원통형시편의 높이 그리고 r은 회전축(HPT 디스크의 중심)에서의 거리를 뜻한다. HPT 공정에서 회전 수 값이 10인 경우 이 식에 의해 계산된 Shear strain은 393으로 다른 SPD 공정에서 보통 얻어지는 5~10 값에 비하면 굉장히 높은 값을 보인다[14-15]. 그림 2는 HPT 공정 후 디스크의 광학현미경 이미지로 내부에 잔류 기공이 없는 상태를 보여준다. 이것은 이번 HPT 공정 중에 작용했던 정수압이 6 GPa로 Al의 항복강도 보다 훨씬 높았기 때문이다.

비커스 경도를 HPT 벌크 디스크의 중심에서부터 거리에 따라 그림 3에 도시하였다. 비커스 경도는 디스크 중심에서 1 mm 떨어진 지점까지 각각 70 Hv에서 85 Hv로 조금 증가하는 경향을 보였다. 이후

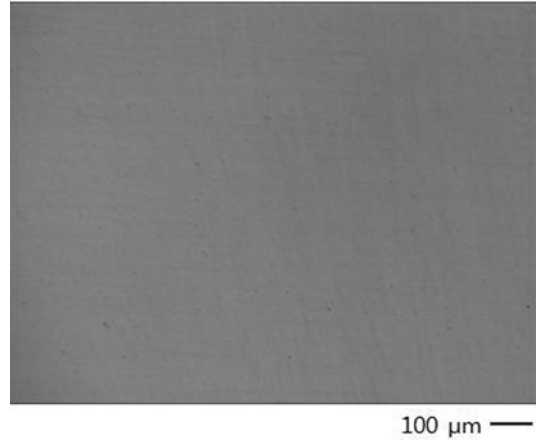


Fig. 2. Optical microscope image of the HPT processed bulk Al disk.

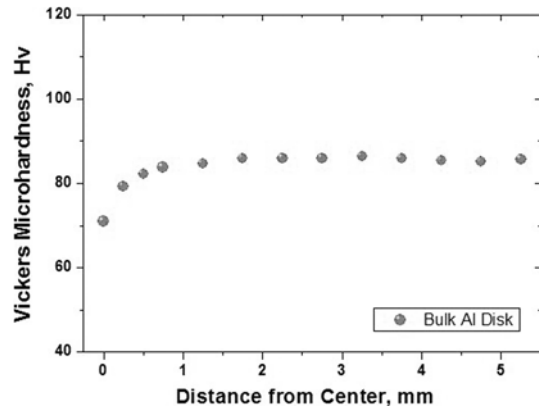


Fig. 3. Vickers microhardness results of bulk Al disk from the disk center to the edge with respect to the distance.

1 mm에서 5 mm사이에는 특별한 변화를 관찰할 수 없었다. 비커스 경도가 거리에 따라 크게 변하지 않는 경향은 Harai *et al.*[16]에 의해 설명되었다. 초기 단계(적은 변형량)에서는 디스크 중심(Center)은 결정립 미세화가 이루어지지 않아서, 변형량이 상대적으로 큰 가장자리(Edge)부분보다 낮은 경도를 가진다. 하지만, HPT 공정 10 회전을 통해 디스크 중심에도 높은 변형량이 가해져, 미세조직이 균일한 Steady state 상태에 도달한다. 이러한, 벌크 디스크 내부의 균일한 미세조직에 의해, 디스크 중심에서의 거리에 따라 정도 값 차이는 없게 된다.

HPT 디스크가 미세조직적으로 Steady state 상태(미세조직적 균일 상태) 인지 명확하게 확인 하기 위해 EBSD 측정을 실시 하였다. 디스크의 중심

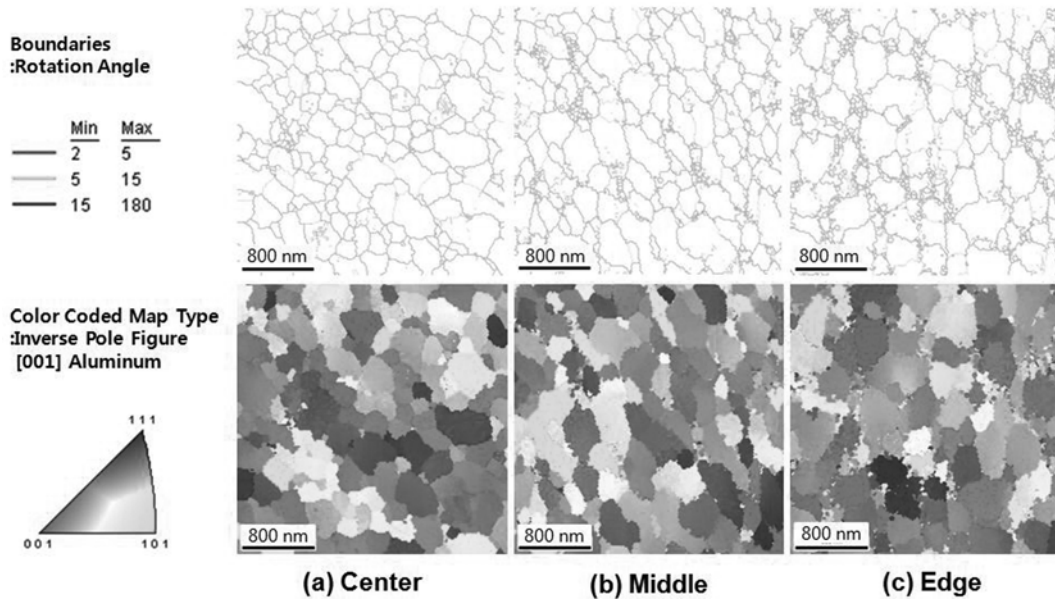


Fig. 4. Orientation images and image quality maps for the Al powder HPT sample. (a) Center, (b) Middle and (c) Edge

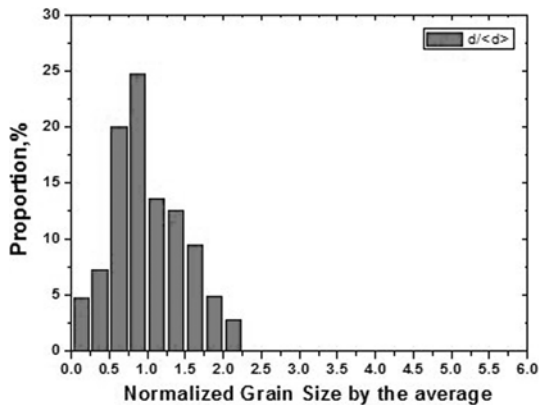


Fig. 5. Normalized grain size distribution.

(Center), 그리고 중심에서 2.5 mm(Middle), 5 mm (Edge) 떨어진 부분에서 EBSD로 미세조직을 측정 한 결과를 그림 4에 나타내었다. 측정된 3 부분에서 모두 균일한 등축 결정립이 관찰되었고, 평균 결정립 크기는 중심에서부터 290 nm, 310 nm 그리고 295 nm로 측정되었다. 그림 5에는 각 결정립 크기( $d$ )를 평균 결정립 크기( $\langle d \rangle$ )로 나눈 정규화된 분포도( $d/\langle d \rangle$ )를 나타내었으며, 평균 결정립 크기 값과 2 배 이상 큰 결정립이 거의 없이 균일 하였다. 재료의 연 성을 결정하는 중요한 인자인 결정립 방위 분포

(Misorientation distribution)를 나타낸 그림 6에서는, 평균 결정립 방위차가 중심에서부터 21.7°, 20.7° 그리고 18.9° 값을 가졌다. 이 결과에서, Bottom-up 방식으로 Al 분말을 이용해 473K에서 HPT 공정으로 초미세 벌크 재료를 제조할 때, 내부 결정립에 HAGBs(High Angle Grain Boundaries: misorientation angle $>15^\circ$ )가 지배적임을 알 수 있다.

그림 7은 HPT 디스크의 중심에서 2.5 mm 떨어진 지점의 투과전자현미경 bright field image와 SAED 패턴이다. TEM 분석 결과 평균 결정립 크기는 ~300 nm이었으며, 이 결과는 위의 EBSD 결과와 잘 일치 한다. TEM 이미지 분석에서 473K에서 HPT 공정 후 벌크 재료의 결정립계는 평형상태(Equilibrium boundary)로 관찰됐다. SAED 패턴에서 회절무늬가 방위각 방향으로 퍼짐 현상이 나타나지 않는 것은 결정립계가 평형상태(Equilibrium boundary)라는 것을 증명한다.

그림 8은 ARAMIS 5M으로 변형량이 측정된 Stress-Strain 커브와 파괴직전 시편의 변형량 분포 디지털 이미지를 나타낸다. HPT 벌크 디스크는 Stress-Strain 커브에서 최대응력 255 MPa과 파괴연성이 25%로 아주 좋은 물성값을 보였으며, ARAMIS 디지털 이미지 분석결과 높은 강도값을 가지는 동시에 인장시편 중심에서 Necking 현상이 관찰되었다.

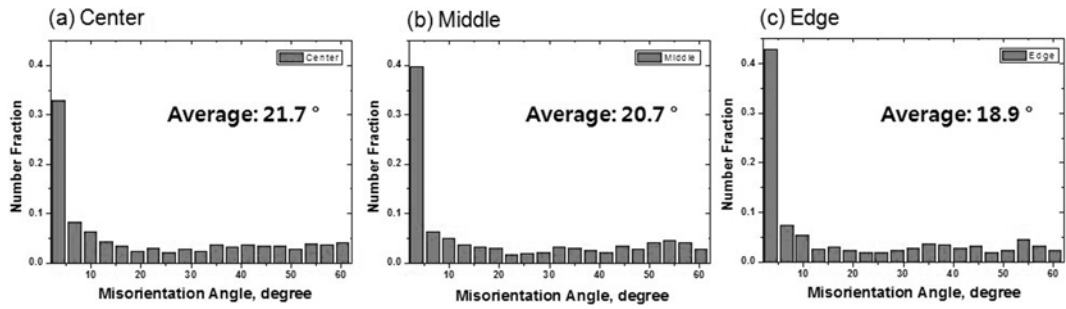


Fig. 6. Misorientation angle distribution of the Al powder HPT sample in number fraction. (a) Center, (b) Middle and (c) Edge

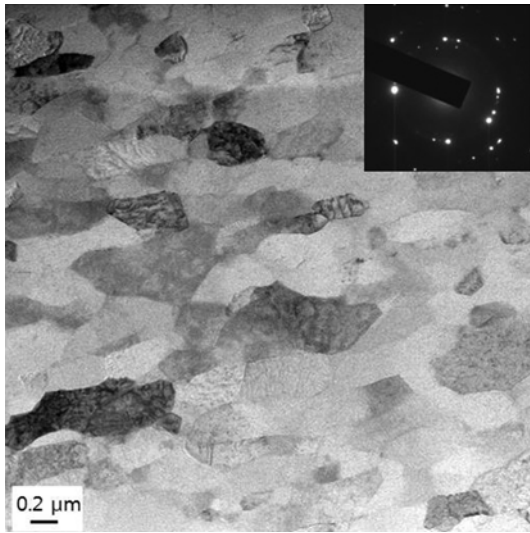


Fig. 7. TEM image with SAED patterns.

#### 4. 고찰

본 연구에서 조대한 순수한 Al 분말을 이용한 473K에서 HPT 공정으로, 초미세결정 벌크 디스크를 제조하였다. HPT 디스크의 중심에서부터 거리에 따라 측정된 비커스 경도값과 디스크의 3 부분(Center, Middle, Edge)의 미세조직을 EBSD로 분석하여, HPT 10 회전 공정 후 HPT 디스크가 미세조직이 균일한 Steady state 상태가 됨을 확인하였다. EBSD 측정 결과 등축 결정립이 관찰되었으며, 결정립 크기는 균일하였다. 조대한 Al 분말을 이용해 Bottom-up 방식으로 벌크재료를 제조하여 300 nm의 초미세 결정립을 얻을 수 있었으며, 이 결과는 다른 SPD 공정에서 얻은 결정립 크기 결과보다 더 미세하였다. 473K 온도에서 12 passes ECAE 공정 후 0.9 μm

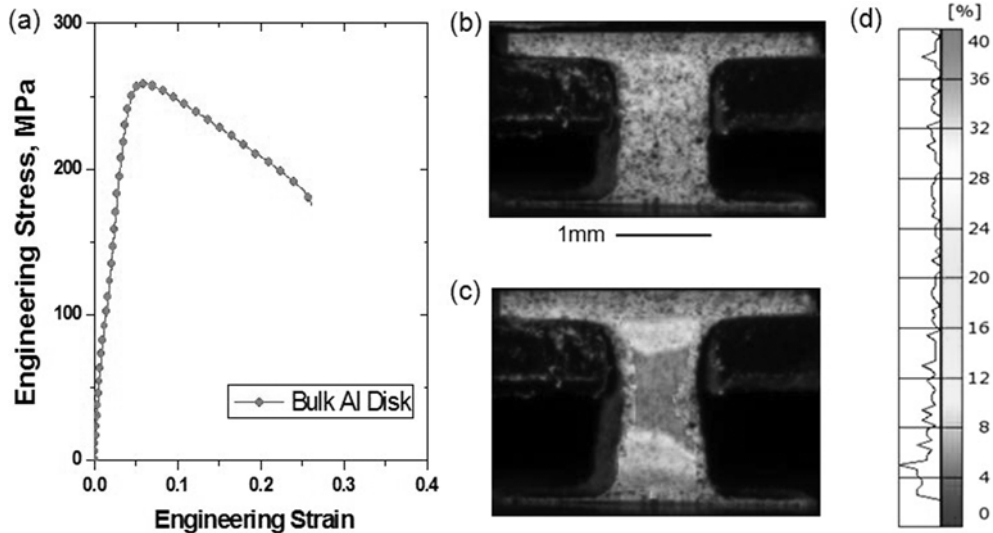


Fig. 8. Tensile test results. (a) Stress-Strain curve (b) Initial specimen image (c) Major strain overlay of Al powder and (d) Strain contour and distribution of Al powder

[17], 상온에서 8 passes ECAE 공정 후 473 K에서 1시간 동안 annealing으로 얻어진 0.47  $\mu\text{m}$ [18]. 위에 언급된 AI 샘플의 경우 초기 SPD 공정에서 분말이 아닌 벌크 시편을 이용해 얻은 결과이다. 이번 실험에 나타난 고온(473K)에서 분말을 이용해 Bottom-up 방식으로 제조된 벌크재료가 더 작은 결정립을 가지는 경향은, 상온에서 AI 분말과 벌크를 이용한 공정 비교에서 나타난 경향과 같다[11]. 상온에서 분말을 이용한 공정의 가장 큰 차이점은 AI 분말의 표면에 존재하는 알루미늄 층이 공정 중에 분쇄되어 입자 형태로 존재하게 되어, 이 입자들이 전위의 이동에 영향을 주어 더욱 결정립이 미세화를 이루는 동시에 결정립 성장을 억제 한다고 설명되었다[11]. 따라서 고온(473K)에서도 알루미늄 입자들이 결정립 미세화에 영향이 있음을 예측할 수 있다.

순수한 AI(CP, commercially pure)의 경우 어닐링 시 548K와 573K 온도 사이에서 비정상 입자성장(Abnormal grain growth)이 일어난다고 보고되어 있다[18]. 이번 연구에서 결정립 크기의 정규화된 분포도( $d/\langle d \rangle$ )를 통해 HPT 공정에서 473K 온도는 순수한 AI(CP, commercially pure)의 비정상 입자성장이 일어나지 않음을 확인 하였다. 미세조직학 적으로 결정립을 자세히 분석해 보면, EBSD와 TEM 측정결과 결정립계는 대부분 고경각계(HAGBs)로 평형(Equilibrium)상태임을 알 수 있었다. 상온에서, 높은 변형량을 주는 SPD 공정은 결정립이 내부 응력(Internal stress)이 크게 존재하는 비평형(Non-equilibrium)상태가 관찰되며, 샘플의 온도를 높여 어닐링 후 평형(Equilibrium)상태의 고경각계로 변하게 된다[19]. 이러한 어닐링 공정 이후에 보이는 결정립의 미세조직 상태와 같은, 고경각계를 가지는 평형상태 결정립계가 473K 온도의 HPT 공정 이후 관찰이 되었다. 이러한 결과는 EBSD 측정에서 얻은 결정립 방위분포와 TEM 측정에서 얻은 회절무늬가 방위각 방향으로 퍼짐 현상이 일어나지 않은 SAED 패턴을 통해 설명될 수 있다. 결정립 방위차는 SPD 공정 이후 재료의 연성을 결정하는 중요한 요인이며, 결정립 방위차가 커질수록 연성은 좋아진다[20-21]. 따라서 고온에서 AI 분말 HPT 공정을 통해 얻은 초미세결정 벌크 디스크시편이 좋은 연성과 강도를 가지는 것은, HPT 공정을 통해 고경각계를 가지는 미세한 결정립 얻었기 때문이라는 미세조직적 분석을 결

론으로 내릴 수 있다.

## 5. 결 론

고온에서(473K) 고압비틀림 공정을 통해 AI 분말의 고형화와 결정립 미세화를 얻을 수 있었다. 10회 전 후, HPT 디스크는 미세조직이 균일한 Steady state 상태에 도달 하였다. 최종 벌크 디스크의 결정립은  $\sim 300$  nm로 미세화 되었으며, AI 분말 표면의 알루미늄이 공정 중 입자형태로 분쇄되어 전위의 이동을 방해하였기 때문에 초기에 벌크를 이용한 공정보다 더 미세한 결정립을 얻을 수 있었다고 설명될 수 있다. 이렇게 미세화된 결정립들은 대부분 고경각계의 평형(Equilibrium) 결정립계를 가졌으며, 이것은 상온 공정 이 후 관찰되는 비평형(Non-equilibrium) 결정립계와 차이가 있다. 이러한 초미세 & 고경각계 결정립의 미세조직적 특성에 의해, HPT 디스크는 우수한 연성과 높은 강도값의 인장 특성이 관찰되었다.

## 참고문헌

- [1] H. S. Kim and Y. Estrin: Appl. Physics Lett., **79** (2001) 4115.
- [2] R. Z. Valiev and I. V. Alexandrov: Ann. Chim. Sci. Mat., **27** (2002) 3.
- [3] H. Gleiter: Nanostruct. Mater., **6** (1995) 3.
- [4] R. Z. Valiev, R. K. Islamgaliev and I. V. Alexandrov: Prog. Mater. Sci., **45** (2000) 103.
- [5] S. C. Yoon, S. J. Hong, M. H. Seo, Y. G. Jeong and H. S. Kim: J. Kor. Powder Metall. Inst., **11** (2004) 233.
- [6] H. S. Kim and D. N. Lee: Mater. Trans., **45** (2004) 1829.
- [7] J. Robertson, J. T. Im, I. Karaman, K. T. Hartwig and I. E. Anderson: J. Non-Cryst. Solids., **317** (2003) 114.
- [8] H. S. Kim: Mater. Sci. Eng., **A251** (1999) 100.
- [9] S. C. Yoon and H. S. Kim: Mater. Sci. Forum., **503-504** (2006) 221.
- [10] Y. G. Jeong, M. H. Seo, S. C. Yoon, S. I. Hong and H. S. Kim: J. Metastable Nanocryst. Mater., **24-25** (2005) 383.
- [11] T. Tokunaga, K. Kaneko and Z. Horita: Mater. Sci. Eng., **A490** (2008) 300.
- [12] A. A. Gazder, W. Q. Cao, C. H. J. Davies and E. V. Pereloma: Mater. Sci. Eng., **A497** (2008) 341.
- [13] F. J. Humphreys: Scripta. Mater., **51** (2004) 771.
- [14] H. S. Kim: Mater. Sci. Eng., **A315** (2001) 122.
- [15] B. S. Moon, H. S. Kim and S. I. Hong: Scripta. Mater.,

- 46** (2002) 131.
- [16] Y. Harai, Y. Ito and Z. Horita: *Scripta. Mater.*, **58** (2008) 469.
- [17] Y. Y. Wang, P. L. Sun, P. W. Kao and C. P. Chang: *Scripta. Mater.*, **50** (2004) 613.
- [18] C. Y. Yu, P. L. Sun, P. W. Kao and C. P. Chang: *Mater. Sci. Eng.*, **A366** (2004) 310.
- [19] R. Z. Valiev, N. A. Krasilnikov and N. K. Tsenev: *Mater. Sci. Eng.*, **A137** (1991) 35.
- [20] H. S. Kim and Y. Estrin: *Appl. Phys. Lett.*, **79** (2001) 4115.
- [21] Y. H. Zhao, T. Topping, J. F. Bingert, J. J. Thornton, A. M. Dangelewicz, Y. Li, W. Liu, Y. T. Zhu, Y. Z. Zhou and E. L. Lavernia: *Adv. Mater.*, **20** (2008) 3028.