

텅스텐 특성에 대한 소결온도의 영향

Effect on Mechanical Properties of Tungsten by Sintering Temperature

박광모¹, 이상필¹, 배동수², 이진경^{1*}

Kwang-Mo, Park¹, Sang-Pill Lee¹, Dong-Su, Bae², Jin-Kyung Lee^{1*}

〈Abstract〉

A tungsten material using a pressure sintering process and a titanium sintering additive was prepared to evaluate the microstructure, and mechanical properties of flexural strength and hardness. In addition, the reliability on each hardness data was evaluated by analyzing the distribution of the hardness of the tungsten material using the Weibull probability distribution. In particular, the optimal manufacturing conditions were analyzed by analyzing the correlation between the sintering temperature and the mechanical properties of the tungsten sintered body. Although the sintering density of the tungsten material was hardly changed up to 1700 °C, but it was increased at 1800 °C. The hardness of the tungsten sintered material increased as the sintering temperature increased, and in particular, the tungsten material sintered at 1800 °C showed a high hardness value of about 1790 Hv. It showed relatively excellent flexural strength at a sintering temperature of 1800 °C.

Keywords : Pressure sintering process, Titanium sintering additive, Flexural strength, Hardness, Weibull probability, Sintering density

1 동의대학교 기계공학과

2 동의대학교 신소재공학부

1* 정희원, 이진경, 동의대학교 기계자동차로봇부품공학부, 1* Division of Mechanical, Automotive, Robot Component Engineering, Dongeui University

조교수, 공학박사, 부산대학교

E-mail: leejink@deu.ac.kr

1 Department of Mechanical Engineering, Dongeui University

2 Division of Advanced Materials Engineering, Dongeui University

E-mail: leejink@deu.ac.kr

1. 서론

핵융합로 부품재료로 기대되는 텅스텐은 용해 온도가 높고 플라즈마 침식율과 삼중수소 감금 효과가 낮은 장점을 가지고 있지만 플라즈마에 대한 안정성이 저하된다는 단점이 있다.[1-4] 이와 같은 텅스텐의 특성에도 불구하고 핵융합로의 핵심부품인 다이버터의 구성 재료로 선정되어 구조용 초고온재료로서 사용하기 위해 제조 조건 및 제조 공정에 대한 많은 연구가 진행되고 있다.[5-7] 한편, 철강 재료와 비교하여 텅스텐은 고융점 재료이므로 용융하여 제조하는 것이 어렵다. 따라서 텅스텐 제조를 위한 소결기술이 필요하고 소결첨가제를 이용하여 소결온도를 저하시킬 수 있는 소결공정기술의 확보가 반드시 필요하다. 일반적인 소결제인 팔라듐, 니켈, 알루미늄 등은 1200 °C 이하의 소결온도에서 98 %이상의 높은 상대밀도의 치밀한 텅스텐 소결재료를 제조할 수 있지만 핵융합로의 플라즈마 대면재료로서 적용되는 경우, 중성자 충돌 및 플라즈마 이온의 높은 침식율로 인해 부품 수명이 감소하는 현상이 발생한다. 한편, 타이타늄은 텅스텐 소결제로서 산화와 침식 저항성을 향상시킬 수 있고 고상 및 액상 확산을 통해 재료 강도를 강화시킬 수 있는 장점을 가지고 있다. 따라서 본 연구에서는 가압소결공정과 타이타늄 소결제를 이용한 텅스텐 재료를 제조하여 미세조직과 경도 및 굽힘강도의 기계적 특성들을 평가하고자하였다. 또한 와이블(Weibull) 확률 분포를 이용하여 텅스텐 재료의 경도에 대한 산포도를 분석함으로써 각 조건에서의 경도 데이터에 대한 신뢰성을 평가하였으며 특히 소결온도와 텅스텐 소결체의 기계적 특성이 어떠한 상관관계를 나타내는지에 대해 분석하여 최적의 제조조건을 도출하고자 하였다.[8-9]

2. 시험방법

텅스텐 소결재료의 제조를 위하여 평균 입경이 2 μm 인 텅스텐 분말을 사용하였다. 텅스텐 분말의 원활한 소결과 사용온도를 낮추기 위하여 소결조제로서 평균 입도가 약 150 μm 인 타이타늄 분말을 사용하였다. 본 연구에서는 텅스텐분말과 소결첨가제인 타이타늄을 혼합 후 고온 가압 소결하여 제조하였다. Fig. 1은 텅스텐 분말의 소결에 사용된 고온 가압 소결공정에 대한 모식도를 나타낸 것이다. 탄소 발열체를 사용하여 각각의 소결온도까지 승온하고 1200 °C까지 열전대로 온도를 측정하며 1200 °C 이후에는 카메라를 이용하여 정확한 온도를 측정하고 유압식 프레스 펀치가 텅스텐 혼합분말이 들어가 있는 흑현 금형을 가압하여 소결재료에 압력을 부하하게 된다. 가압력은 20 MPa로 하였고, 가압소결 전 과정은 진공 분위기에서 실시하였다. 소결 공정에서 1100 °C까지 약 20 °C/min의 승온 속도로 가열하고 1100 °C 이후에는 약 10 °C/min의 승온 속도로 가열하여 각각의 소결온도까지 도달하여 1시간 동안 가압 후 로냉하는 패턴을 사용하였다. Table 1은 텅스

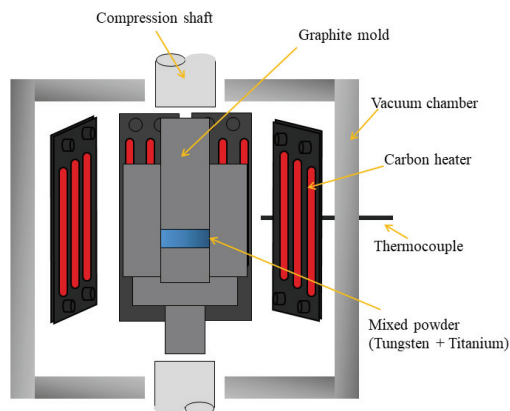


Fig. 1 Schematic diagram of the pressure-assisted sintering process of powder

텐 소결재료의 제조 조건을 나타낸다. 텅스텐 소결재료의 사용온도 저하와 미세조직 치밀화를 위해 소결첨가제인 타이타늄의 함량을 7 wt. % 로 고정하였다.[10]

Table 1. Fabricating condition of tungsten materials

Material	W	W+Ti
Ti content (wt. %)	-	7
Blending condition	Ball-mill, 160 rpm, 6 hr	
Sintering temperature (°C)	1450, 1600, 1700, 1800	
Sintering pressure (MPa)	20	

특히 소결온도의 결정은 텅스텐 함유를 활용한 텅스텐 복합재료의 개발, 소결첨가제의 확산 및 용융에 의한 소결성 향상의 영향과 텅스텐 함유의 재결정 온도를 고려하여 소결조제의 첨가량을 7 wt. %로 해서 소결온도를 1450 °C, 1600 °C, 1700 °C, 1800 °C의 4가지 조건으로 결정하였다.

3. 소결온도에 따른 특성변화

Fig. 2는 소결온도에 따른 텅스텐 재료의 미세조직을 나타낸다. 텅스텐 소결재료는 1450, 1600, 1700, 1800 °C에서 소결하였으며, 텅스텐 소결재료의 타이타늄의 첨가량은 7 wt %로 하였다. 그림에서 보여주는 바와 같이 텅스텐 소결재료의 미세조직은 소결온도가 증가함에 따라 타이타늄의 확산으로 타이타늄 주변 텅스텐 입자의 미세화와 타이타늄 입자의 미세조직이 달라지고 미세기공이 감소하는 것을 알 수 있다. 또한 소결에 사용한 텅스텐 입자가 소결온도 증가와 함께 상대적으로 큰 타이타늄 입자가 1600 °C 에서부터 확산 및

용융하여 텅스텐 내부로 스며드는 것을 확인할 수 있다. 특히, 1800 °C 에서는 텅스텐 입자의 재결정과 소결 첨가제인 타이타늄의 대부분 균질한 액상 현상을 일으켰고 텅스텐 입자 간 치밀화가 발생하여 미세기공이 줄어든 것이 확인된다. 또한 다른 온도에 비해 상대적으로 균질한 소결을 보였다.

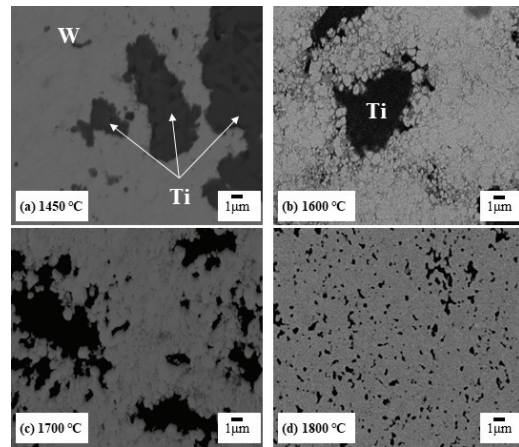


Fig. 2 Microstructures of tungsten materials by different sintering temperatures

Fig. 3은 소결 온도에 따른 텅스텐 재료의 소결 밀도와 상대밀도를 나타낸다. 그림에서 보여주는 바와 같이 텅스텐 분말을 이용한 소결재료의 밀도는 소결온도에 영향을 받는 것을 알 수 있다. 텅스텐 재료의 소결온도가 1700 °C 온도까지는 밀도의 변화가 거의 나타나지는 않지만 1800 °C 에서는 소결밀도가 증가하는 것을 확인 할 수 있다. 이는 미세구조에서 나타나듯이 1700 °C의 소결 온도까지는 타이타늄의 액상 현상이 극히 일부에서만 나타나지만 1800 °C의 소결 온도에서는 대부분의 타이타늄이 액상 현상을 일으키고 그에 따른 영향으로 입자의 치밀화와 미세기공의 감소로 인한 것이다. 특히, 타이타늄의 액상이 형성되는 1600 °C에서 제조된 경우에 측정된 소결밀도는

약 11.06 g/cm³으로 낮은 소결밀도를 나타내었으나 1800 °C의 소결온도에서는 소결밀도가 약 15.34 g/cm³, 상대밀도 약 88.6 %로서 다른 소결온도에 비해 상대적으로 우수하였다.

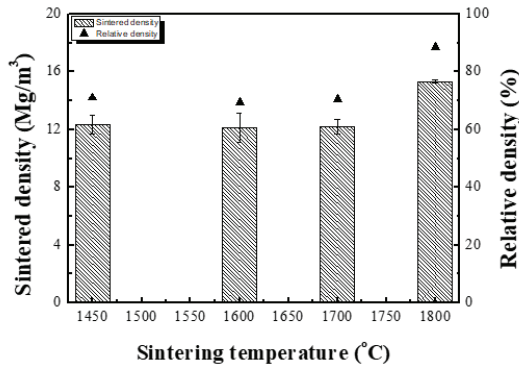


Fig. 3 Effect of sintering temperature on the sintered density and relative density of tungsten materials

Fig. 4는 소결온도에 따른 텅스텐 소결재료의 비커스 경도를 나타낸다. 20회 이상의 비커스 경도 측정을 통하여 평균 경도값을 산출하였다. 텅스텐 소결재료의 소결온도가 증가함에 따라 비커스 경도값이 상승하는 것을 알 수 있다. 이는 소결온도의 상승에 따라 텅스텐 소결재료의 미세기공 감소와 미세조직이 치밀화되기 때문인 것으로 보인다. 즉, 소결온도의 상승은 소결첨가제의 액상 현상과 소결밀도의 증가를 가져오고 텅스텐 입자의 결집 치밀화 및 균질화에 영향을 끼쳐 소결재료의 경도가 상승한 것으로 사료된다. 특히, 소결온도가 1800 °C에서 소결한 텅스텐 소결재료는 1790 Hv의 높은 경도값을 나타내었다.

Fig. 5는 소결 온도에 따른 텅스텐 소결재료의 비커스 경도와 와이블 분포를 나타낸다. 20회 이상의 비커스 경도 측정을 통한 데이터로 와이블 통계분석을 하였다. 소결 재료 모두 산포도가 있기 때문에 자세하게 조사하기 위하여 와이블 통계

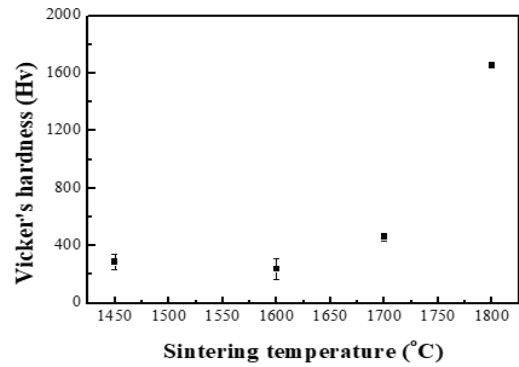


Fig. 4 Effect of sintering temperature on the vicker's hardness of tungsten materials

분석을 하였다. 1700 °C까지는 극히 일부분 타이타늄 입자의 액상화산으로 인하여 입자 간 결합이 균질하지 못하여 와이블 계수가 낮지만 1800 °C에서는 대부분의 타이타늄 입자들이 용융되어 액상소결을 보이고 있고, 입자 간 치밀화가 일어나 다른 소결온도에 비해 상대적으로 균질한 것을 확인할 수 있다. 그로 인하여 소결 온도 1800 °C의 소결재료가 가장 높은 16.39의 와이블 계수를 나타낸다.

Fig. 6은 소결온도에 따른 텅스텐 소결재료의 굽힘강도를 나타낸다. 텅스텐 소결재료는 최대 굽

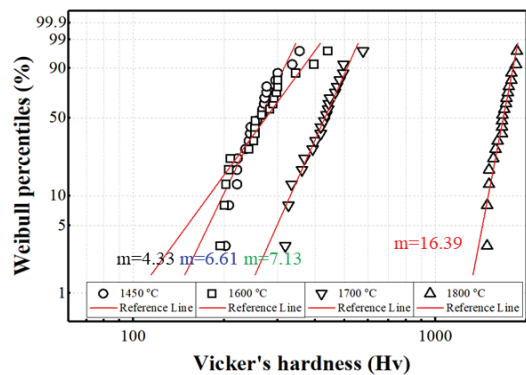


Fig. 5 Weibull distribution for the hardness of tungsten materials depending on the different sintering temperatures

힘하중에 도달 후 하중이 급격히 감소하면서 파단하는 취성파괴거동을 나타내었다. 이는 일반적으로 세라믹스 재료의 취성파괴 현상과 동일하게 전형적인 취성파괴 거동을 나타내었다. 텅스텐 소결 재료의 굽힘강도는 소결온도가 1450 °C, 1600 °C, 1700 °C, 1800 °C로 증가함에 따라 각각 291 MPa, 231 MPa, 422 MPa 및 586 MPa을 나타내었다. 소결온도 1800 °C에서는 다른 조건의 소결온도에 비하여 상대적으로 우수한 굽힘강도를 나타내고 있는데 이는 텅스텐의 소결 첨가제인 타이타늄이 대부분의 액상소결현상을 일으켜 텅스텐 입자 간 치밀화와 미세기공 감소의 영향으로 강도 증가효과를 가져오는 것으로 사료된다.

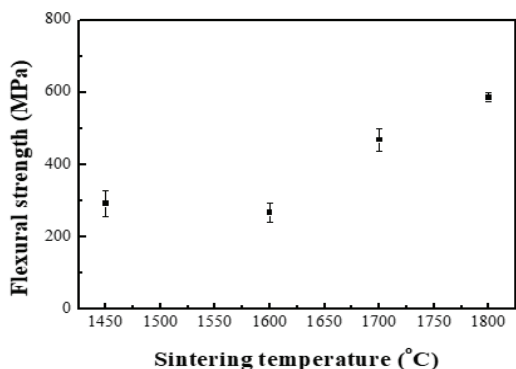


Fig. 6 Effect of sintering temperature on the flexural strength of tungsten materials

Fig. 7은 소결온도에 따른 텅스텐 소결재료의 소결 밀도와 굽힘강도의 상관관계를 나타낸다. 텅스텐 소결재료의 굽힘강도는 소결밀도에 대한 의존성을 보이고 있다. 텅스텐 소결재료의 소결밀도가 증가함에 따라 굽힘강도는 증가하는 것을 알 수 있다. 따라서 소결밀도 14 g/cm³ 이하에서는 고상소결현상으로 입자간 치밀화가 적고 다수의 미세기공과 낮은 소결밀도, 굽힘강도를 나타낸다. 소결밀도 12 g/cm³ 이상에서는 미세구조에서도

나타났듯이 텅스텐과 타이타늄의 액상화산 소결 현상이 나타나며 특히 일부분의 타이타늄 주위에 액상현상이 진행된 부분으로 인하여 미세기공이 일부 감소하여 굽힘강도가 증가하였다. 특히 1800 °C의 소결온도에서 대부분의 타이타늄이 액상소결 현상으로 인하여 충분한 액상이 형성되어 텅스텐 입자 간 미세기공이 감소하게 되고 텅스텐 입자의 재결정으로 치밀한 미세조직이 형성되어 다른 소결온도에 비해 상대적으로 우수한 굽힘강도를 나타내었다.

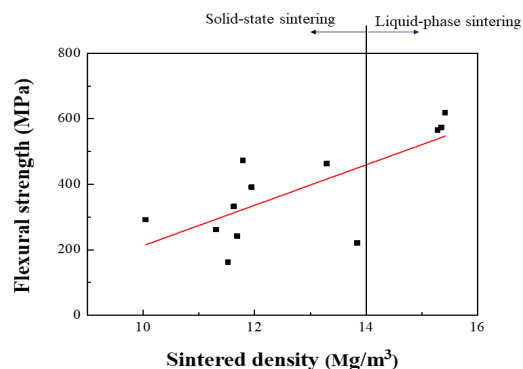


Fig. 7 Relationship between the sintered density and the flexural strength in the tungsten

4. 결론

- (1) 텅스텐 소결재료의 미세조직은 1450 °C, 1600 °C, 1700 °C, 1800 °C로 소결온도가 증가함에 따라 타이타늄의 확산으로 타이타늄 주변 텅스텐 입자의 미세화와 타이타늄 입자의 미세조직이 변화하고 미세기공이 감소하였다.
- (2) 소결온도가 1700 °C 온도까지는 밀도의 변화가 거의 나타나지는 않지만 1800 °C에서는 소결밀도가 증가하였다. 특히, 타이타

늄의 액상이 형성되는 1600 °C에서 소결밀도는 11.06 g/cm³으로 낮지만 1800 °C에서는 소결밀도가 15.34 g/cm³, 상대밀도 88.6 %로서 다른 소결온도에 비해 높은 값을 나타내었다.

- (3) 텅스텐 소결재의 경도는 소결온도가 증가함에 따라 비커스 경도값이 증가하였으며 특히, 1800 °C에서 소결한 텅스텐 소결재료는 1790 Hv의 높은 경도값을 나타내었다. 와이블 통계분석 결과 1700 °C까지는 입자간 결합이 균질하지 못하여 와이블 계수가 낮지만 1800 °C에서는 대부분의 타이타늄 입자들이 용융되어 액상소결에 의한 입자간 치밀화에 의해 가장 높은 16.39의 와이블 계수를 나타내었다.
- (4) 텅스텐 소결재료의 굽힘강도는 1450 °C, 1600 °C, 1700 °C, 1800 °C의 소결온도에 따라 각각 291 MPa, 231 MPa, 422 MPa 및 586 MPa을 나타내어 소결온도 1800 °C에서는 상대적으로 우수한 굽힘강도를 나타내었다.

참고문헌

- [1] Pitts, R.A., Carpentier,S., Escourbiac,F., Hirai,T., Komarov,V., Lisgo,S., Kukushkin,A.S., Loarte,A., Merola,M., Naik,A.S., Mitteau,R., Sugihara,M., Bazylev,B., and Stangeby,P.C. J.Nucl.Mate., 48-56, (2013)
- [2] Ye, X.B., and Pan, B.C. J.Nucl. Mate., 544, 152687, (2021)
- [3] Matsuda, Y., Yamashita, S., Miyamoto, Y., Motoi, D., Okita, T., Hoashi, E., Imano, K., and Ueda, Y. Fusion Eng. and Desi., 161, 112042, (2020)
- [4] Rowcliffe, A.F., Garrison, L.M., Yamamoto, Y., Tan,L., and Katoh, Y. Fusion Eng. and Desi., 135, 290-301, (2018)
- [5] Tan, L., Snead, L.L., and Katoh, Y. J. Nucl. Mater. 478, 42-49, (2016)
- [6] Noce, S., Flammini, D., Mariano, G., Mazzone, G., Moro, F., Romanelli, F., Villari, R., and You, F.H. Fusion Eng. and Desi., 169, 112428, (2021)
- [7] Tillack, M.S., Raffray, A.R., Wang, X.R., Malang, S., Khalik, S.A., Yoda, M., Youchison,D. Fusion Eng. and Desi.. 86, 71-98, (2011)
- [8] Chu, K.H. J. Hazarkous Mater. Letters, 2, 100022, (2021)
- [9] Lei, W.S., Yu, Z., Zhang, P., Qian, G. Ceramics International, 47, 4972-4993, (2021)
- [10] 이문희, 김성원, 이종호, 황승국, 이진경, 이상필, 한국산업융합학회논문집, 23,4,669-674, (2020)

(접수: 2021.04.08. 수정: 2021.05.11. 게재확정: 2021.05.12.)