

## 저변형률속도에서 ARB가공된 무산소동의 미세조직 및 기계적 성질

이성희<sup>†</sup> · 한승전\* · 임차용\*

목포대학교 신소재공학과

\*한국기계연구원 부설 재료연구소

## Microstructure and Mechanical Properties of Oxygen Free Copper Processed by ARB at Low Strain Rate

Seong-Hee Lee<sup>†</sup>, Seung-Zeon Han\* and Cha-Yong Lim\*

Department of Advanced Materials Science and Engineering, Mokpo National University  
Muan-gun, Chonnam, 534-729, Korea, \*Department of Materials Technology, Korea Institute of  
Materials Science, 66 Sangnam-dong, Changwon, 641-010, Korea

(2007년 8월 20일 받음, 2007년 10월 4일 최종수정본 받음)

**Abstract** The microstructure and mechanical properties of an oxygen free copper processed by accumulative roll bonding(ARB) at low strain rate were studied. The copper sheets were highly strained up to an equivalent strain of ~6.4 by ARB process at ambient temperature. The strain rate of the copper during the ARB was  $2.6\text{sec}^{-1}$ . The microstructure and mechanical properties of the ARB-processed copper were compared to those of the specimens processed by ARB at relatively high strain rate ( $37\text{sec}^{-1}$ ). The microstructure and mechanical properties of the copper with ARB process was very similar to each other despite of some differences in recovery.

**Key words** Accumulative roll-bonding, Strain rate, Oxygen free copper, TEM microstructure, Mechanical property.

### 1. 서 론

금속재료의 결정립을 nano-meter 혹은 sub-micron order까지 초미세화시킴으로 기계적 특성을 크게 향상시키는 강소성가공법(Severe Plastic Deformation, SPD)<sup>1-14</sup>이 최근 많은 주목을 받고 있다. 그 중에도, 반복접침접합압연(Accumulative Roll-Bonding, ARB)<sup>3-14</sup>법은 연속공정이 가능한 압연을 이용한 공정이므로 생산성이 높으며 비교적 큰 재료에도 적용이 가능하므로 실용 가능성이 높은 프로세스라 할 수 있다. 그러므로 지금까지 여러 알루미늄 합금,<sup>3,5,6,8</sup> 극저탄소IF강<sup>4,7</sup> 그리고 일부 동합금<sup>11-14</sup> 등에 적용되어 왔으며, 결정립초미세화 및 고강도화가 실현 가능성이 입증되었다.

최근, 전기/전자 산업 및 정보통신 산업이 비약적으로 발달함에 따라 고전도도와 고강도의 특성을 동시에 겸비한 동 소재의 개발이 절실히 요구되고 있다. ARB법은 주로 결정립미세화에 의한 강화법이므로 전기전도도의 큰 저하 없이 동의 고강도화를 달성할 수 있는 효과적인 방법이라 사료된다. 본 연구팀은 높은 전기전도도를 가지

고 있고 가공성도 우수하여 전기/전자용 소재로 각광을 받고 있는 무산소동에 ARB법을 적용하여 ARB 가공된 동의 미세조직 및 기계적 특성,<sup>12</sup> 그리고 초미세립 무산소동의 열적 안정성을 연구하여 보고한 바 있다.<sup>13</sup> 무산소동의 경우, ARB 가공된 다른 Al 합금들과는 달리, 3c(c: 사이클)이후에 거의 모든 영역에서 초미세결정립이 형성되었으며, ARB 사이클 수가 증가함에 따라 결정립의 크기가 오히려 증가하는 경향을 나타내었다.<sup>12</sup> 또한, 강도 및 경도도 저 사이클에서는 사이클 수가 증가함에 따라 증가하나, 3c 이후에는 포화되는 경향을 나타내었다. ARB가공에 따른 이와 같은 무산소동의 미세조직 변화 및 기계적 특성의 변화는 활발한 동적 회복(dynamic recovery)으로 인한 것임을 이전 논문<sup>12</sup>에서 밝혔다. 이와 같은 동적 회복은 압연가공 중에 발생한 열(소성가공열)에 의해 발생한 것으로 재료의 종류, 가공량, 변형 속도 등 여러 인자에 따라 그 정도가 다르다. 그러므로 그와 같은 인자를 잘 제어한다면 소성가공열의 크기를 제어할 수 있고, 나아가서는 대상 금속의 결정립 크기를 제어할 수도 있을 것이다. 특히, ARB 공정 중에 압연 속도(변형률 속도)를 낮추면 압연 중에 발생하는 소성가공열의 크기가 낮아지므로 ARB에 따른 결정립미세화의 효과를 더욱 향상시킬 수 있는 것으로 알려져 있다.<sup>15</sup> 따

<sup>†</sup>Corresponding author  
E-Mail : shlee@mokpo.ac.kr (S. H. Lee)

라서 본 연구에서는 무산소동의 ARB를 이전 연구에 비해 저변형률 속도에서 실시함으로써 변형률 속도의 크기 변화가 무산소동의 미세조직 및 기계적 성질에 끼치는 영향을 조사하였다.

## 2. 실험 방법

본 연구에 사용된 동은 이전 연구에서 사용한 것과 동일한 시판용 무산소동(99.99%)으로 그 화학조성을 Table 1에 나타내었다. ARB전에 시편을 440°C에서 5시간 동안 완전 어닐링하여 내부의 잔류변형을 제거하였다. ARB공정을 위해 두께 1 mm, 폭 30 mm, 길이 300 mm의 무산소동 판재를 준비하였다. ARB공정은 이전 논문<sup>12)</sup>과 동일한 방법에 의해 상온, 무윤활 조건에서 8사이클까지 진행하였다. 단지 압연시의 변형률 속도(strain rate)를  $2.6\text{sec}^{-1}$ 로 하여 저변형률 속도의 조건에서 실시하였다. 이하 본 연구를 저속ARB라 칭하기로 한다. 이전 연구에서 변형률 속도는  $37\text{sec}^{-1}$ 이었으며 이번 연구에 비해 약 10배 큰 조건에서 실시하였다. 이하 이전 연구를 이번 연구와 구별하기 위해 고속ARB라 칭하기로 한다.

ARB전후의 무산소동의 미세조직은 광학현미경 및 투과전자현미경(TEM)으로 관찰하였다. 광학현미경조직은  $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 의 10%수용액에서 화학부식한 후 종단면(TD면)에서 관찰하였다. TEM관찰용 시편은 253K온도에서  $\text{CH}_3\text{COOH} : \text{HNO}_3 = 2 : 1$ 의 비율로 혼합한 에칭액으로 jet-polishing하여 준비하였으며, TEM 관찰은 JEOL-2000FX로 200 kV의 전압에서 행하였다. 기계적 성질은 상온에서의 인장시험 및 경도시험으로 평가하였다. 인장시험을 위한 시편은 인장 방향이 압연 방향과 평행하도록 방전 가공기로 잘라서 준비하였다. 인장시험은 평행부의 길이가 32 mm, 폭이 6 mm의 인장 시편을 사용하여 Instron type의 인장 시험기를 사용하여  $10^{-3}\text{s}^{-1}$ 의 일정한 변형률 속도로 행하였다. 경도시험은 마이크로 비커스 경도계를 사용하여 300 g의 하중에서 10초간의 압입시간으로 행하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 미세조직

Fig. 1은 ARB 사이클 수에 따른 무산소동의 광학현미경 조직사진의 변화를 보여준다. ARB 전의 조직은 완전 어닐링된 상태이므로 평균입경이  $60\ \mu\text{m}$ 의 전형적인 재결정 조직을 나타낸다(Fig. 1a). 1c후는 결정립들이 압연방향으로 연신된 전형적인 압연가공조직을 나타내며, 4c

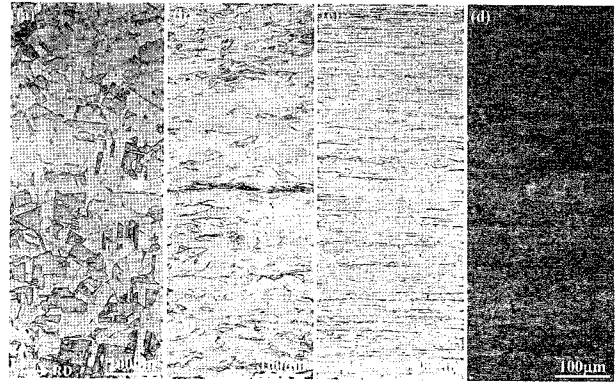


Fig. 1. Optical microstructural evolution with accumulative roll bonding of oxygen free copper under low strain rate conditions(TD plane) (a) Before ARB, (b) after 1 cycle, (c) after 4 cycles and (d) after 8 cycles, respectively.

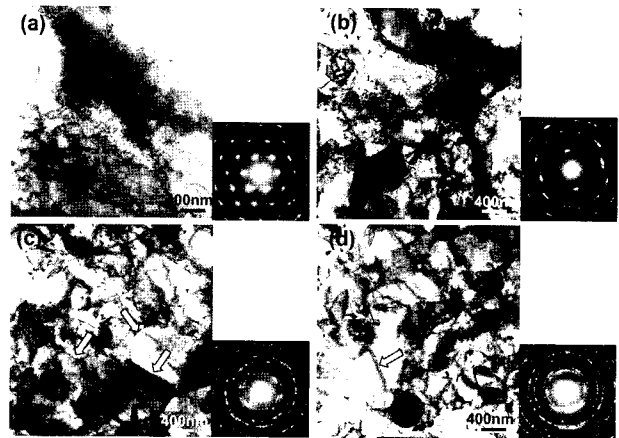


Fig. 2. The variation of TEM microstructures and the corresponding SAD patterns of oxygen free copper with accumulative roll bonding under low strain rate conditions. Observed from ND plane after 1 cycle(a), 3 cycles(b), 6 cycles(c) and 8 cycles(d), respectively.

및 8c 후에는 결정립의 형상을 거의 식별할 수가 없을 정도로 결정립이 미세화됨을 알 수 있다. 이와 같은 ARB에 따른 매크로(macro) 조직변화는 이전의 고속ARB의 연구결과<sup>12)</sup>와 매우 유사하였다.

Fig. 2는 ARB 후에 시편의 두께방향에 수직인 면(ND면)에서 관찰된 TEM 조직사진을 나타낸다. 각 조직사진의 우측하단에 있는 회절도형은 각 조직의 중심에서 직경  $3\ \mu\text{m}$  범위에 조리개를 삽입하여 찍은 제한시야회절(selected area diffraction, SAD) 도형을 나타낸다. 1c후의 시편(Fig. 2(a))은 전형적인 가공조직인 전위셀 조

Table 1. Chemical composition of oxygen free copper studied.(wt%)

Cu	O	Pb	Bi	Fe	P	S
Bal.	2	1	< 1	1	2	7

직(dislocation cell structure)을 나타낸다. SAD 도형도 단순하고 규칙적인 모양을 나타내고 있으며, 이것은 전위셀 간에 방위차(misorientation)가 거의 존재하지 않음을 의미한다. 3c 후의 시편은(Fig. 2(b)) 1c 후의 시편과 유사하게 전위셀조직을 나타내지만, 셀의 크기가 작아졌으며 전위밀도가 다소 증가한 것을 알 수 있다. 또한, SAD도형은 1c 후의 시편과 유사하게 단순하고 규칙적인 모양을 나타낸다. 이것은 여전히 전위셀 간에 방위차가 거의 존재하지 않음을 암시해 준다. 그러나 6c 후의 시편(Fig. 2c)은 3c 후의 시편과 달리 전위밀도가 크게 감소하였으며 전위셀조직이 국부적으로 존재하지만 화살표로 표시한 것과 같이 가늘고 선명한 경계(boundary)를 가진 아결정립(subgrain) 또는 결정립(grain)이 많이 형성되어 있음을 알 수 있다. SAD도형도 1c과 3c 후의 시편들과는 달리 정규 회절 반점들의 퍼짐 이외에도 여분의 회절 반점들이 많이 관찰되어 결정립 간에 큰 방위차가 존재함을 알 수 있다. 8c 후의 시편(Fig. 2d)에서는 전면에 걸쳐 초미세결정립 조직을 나타내었으며, 전위밀도의 감소, 결정립 크기의 감소 이외에도 결정립계가 더욱 선명해진 것들의 변화가 있음을 확인할 수 있다. SAD도형도 거의 환상(ring pattern)의 회절도형을 나타내고 있으며, 이것은 초미세결정립들 간에 방위차가 크게 존재함을 암시해 준다. 또한 국부적으로 종래의 재결정(conventional recrystallization)이 발생하여 화살표로 나타낸 것과 같이 내부에 전위가 거의 존재하지 않는 결정립의 형성도 관찰이 되었다. 이상과 같은 ARB 공정에 따른 무산소동의 TEM미세조직의 형성과정은 고속 ARB의 경우<sup>13)</sup>와 매우 유사하다고 할 수 있으나, 다음과 같은 점에서 다소 차이가 존재했다. 첫째, 저속ARB에서 초미세결정립의 형성이 다소 지연되는 경향이 있었다. 고속ARB의 경우 3c 후의 시편에서 이미 초미세결정립의 형성이 상당 부분 진척된 반면 본 연구에서는 여전히 전위셀조직을 나타내었다. 이와 같은 차이는 변형률 속도 차이에 의해 초미세립 형성의 메카니즘으로 작용하는 회복의 정도가 달라지기 때문인 것으로 사료된다. 일반적으로 변형률 속도를 증가시키면 소성가공열을 상승시키고 이로 인해 회복은 더욱 활발하게 발생한다.<sup>14)</sup> 그러므로 본 연구의 경우보다 약 10배 변형률 속도가 높았던 이전 연구에서 회복이 다소 활발히 발생하여 초미세립의 형성에 유리하게 작용했으리라 사료된다. 둘째, ARB의 8c 후에 형성된 초미세결정립의 크기는 고속ARB에 비해 저속ARB에서 더 미세한 경향을 나타내었다. Fig. 3은 저속 및 고속ARB의 8c 후의 TEM조직의 암시야상을 각각 나타낸 것이다. 그림에서와 같이 저속ARB에서 더 미세한 결정립이 형성되어 있음을 확인할 수 있다. 이 차이 또한 변형률 속도 차이로 인한 회복의 정도 차이에 기인한 것으로 사료된다.

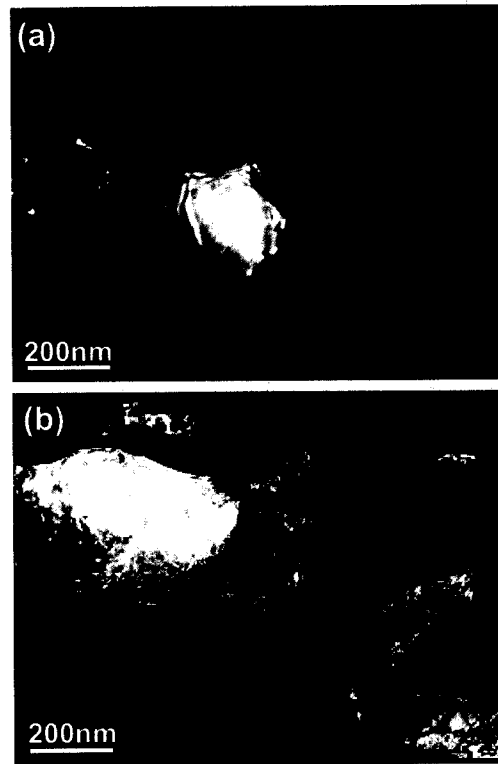


Fig. 3. Dark field images of ultrafine grains formed by 8-cycle ARB under low strain rate conditions(a) and high strain rate conditions(b).

### 3.2 기계적 성질

#### 3.2.1 인장 특성

Fig. 4는 ARB 전과 후의 무산소동의 공칭응력-공칭변형률(s-s) 곡선을 나타낸다. ARB전의 재료는 완전 어닐링된 상태이므로 강도가 낮고 비교적 큰 균일 연신율(uniform elongation)을 나타낸다. 그러나 1c 후의 재료에서는 강도의 증가와 연신율의 감소가 두드러지게 나타난다. 2c 후의 재료도 1c 후의 재료와 유사한 형태의 곡선을 나타내지만, 1c 재료에 비해 강도의 증가가 현저하다. 3c 후의 재료는 2c 후의 재료에 비해 강도가 증가하지만 유사한 형태의 곡선을 나타낸다. 그러나 3c 이후에는 사이클 수가 증가해도 강도가 거의 증가하지 않고 포화되거나 혹은 다소 감소하는 경향을 나타낸다. 이것은 3c 이후에는 동적 회복이 활발히 발생했기 때문이다. 이와 같은 ARB에 따른 s-s 곡선의 형태 변화는 고속ARB가공된 무산소동의 그것과 매우 유사하다.<sup>12)</sup> Fig. 5는 ARB에 따른 기계적 성질의 변화를 상당변형량으로 정리한 것이다. 여기서 상당변형량의 크기는 압연시 롤과 재료사이의 마찰로 인해 도입되는 부가적 전단변형량의 크기를 고려하지 않은 값이며 그 계산식은 다음과 같다.

$$\bar{\epsilon} = \frac{2}{\sqrt{3}} \ln \left( 2^n \frac{h_n}{h_0} \right)$$

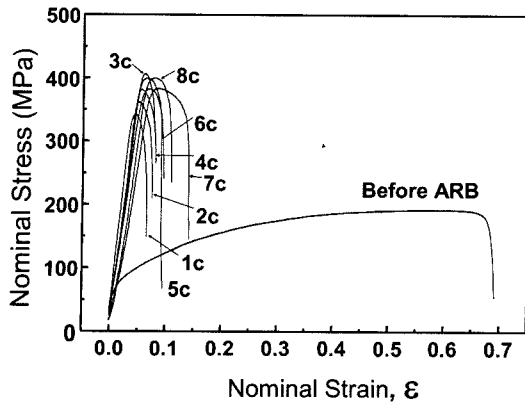


Fig. 4. Nominal stress-nominal strain curves of oxygen free copper processed by ARB under low strain rate conditions.

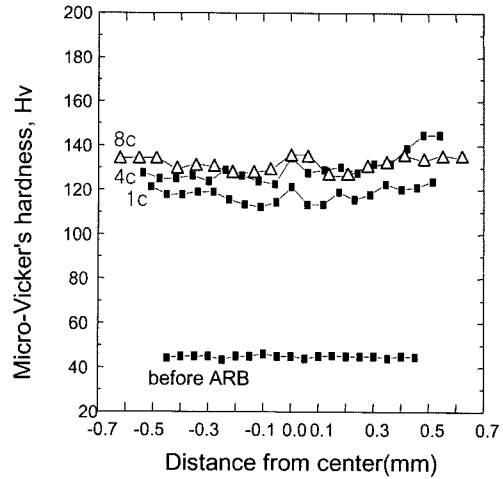


Fig. 6. The variation of Micro-Vicker's hardness distribution in thickness direction of the oxygen free copper with ARB.

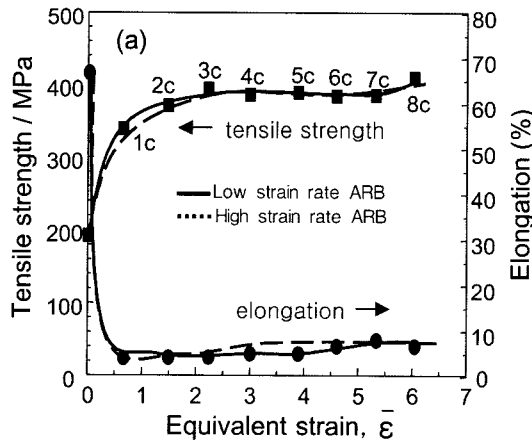


Fig. 5. The variation of mechanical properties of oxygen free copper with equivalent strain during ARB.

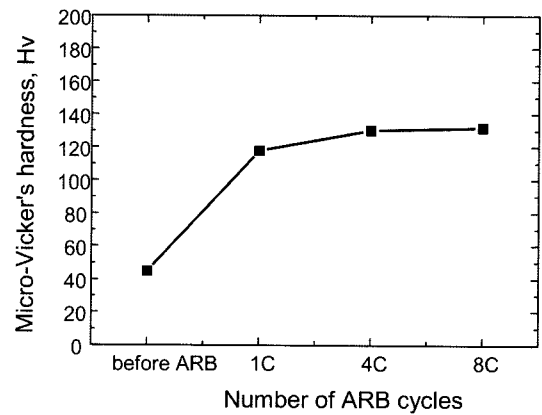


Fig. 7. The variation of average hardness value with the number of ARB cycles.

여기서,  $n$ 은 ARB사이클 수,  $h_0$ 는 ARB전의 시편의 두께,  $h_n$ 는  $n$  사이클 후의 시편의 두께를 각각 나타낸다. 참고를 위하여 그림 내에 ARB사이클 수를 기입하였으며 이전 연구에서 발표한 고속ARB의 결과도 점선으로 나타내었다. 그림과 같이 인장강도는 상당변형량이 ~2.4(3c)까지는 변형량이 증가함에 따라 점차적으로 증가하지만 그 이후는 변형량이 증가해도 강도가 증가하지 않고 포화된다. 이와 같은 ARB에 따른 기계적 특성의 변화 고속ARB의 경우와 매우 유사한 것을 알 수 있다. 다만, 상당변형량이 2이하인 낮은 변형량에서는 저속ARB의 경우가 고속ARB의 경우보다 다소 인장강도가 높은 값을 나타내었다. 이것은 앞에서 언급한 바와 같이 저속ARB인 경우 회복의 정도가 낮아 가공경화에 의한 강도 증가 효과가 컸기 때문인 것으로 사료된다.

3.2.2 경도

Fig. 6에 ARB 전과 후의 두께방향으로의 경도시험 결과를 나타내었다. ARB전의 시편은 두께방향으로 약 45 Hv

의 균일한 경도 값을 나타내지만 1c 후에는 중심부위와 표면부위에서 다소 큰 값을 나타내는 불균일한 경도분포를 나타내며, 4c 후에는 1c 후의 재료에 비해 모든 부위에서 경도가 증가하지만 부위에 따른 경도의 불균일성은 여전히 존재한다. 8c 이후에는 4c 후와 거의 같은 경도값을 나타내며 여전히 부위에 따른 경도의 불균일성이 다소 존재한다. 여기서 중심부위에서 나타나는 큰 경도값은 wire-brushing으로 인해 생긴 가공경화층과 산화물에 기인한 것이며 표면부위의 큰 경도값은 불과 재료사이의 마찰로 인해 도입되는 부가적 전단변형에 기인한 것이다.<sup>5)</sup> Fig. 7에 ARB에 따른 경도값의 평균치의 변화를 나타내었다. 1c의 ARB에 의해 경도가 크게 증가하지만 4c 이후에는 더 이상 증가하지 않고 포화되는 것을 알 수 있다. 이와 같은 ARB에 따른 경도의 변화는 인장강도의 변화(Fig. 5)와 잘 대응한다. 또한, 고속ARB의 결과와 매우 유사하였다.<sup>12)</sup>

#### 4. 결 론

무산소동에 저변형률 속도로 ARB 가공을 수행한 결과 다음과 같이 요약할 수 있다. 저속ARB공정에 따른 미세조직의 형성과정은 고속ARB와 대체로 유사한 미세조직의 형성과정 및 기계적 특성 변화를 나타내었다. 다만, 변형률속도 차이에 의한 다소의 회복 정도의 차이로 인하여 저속ARB에서 초미세결정립의 형성이 다소 지연되었으며 형성된 결정립의 크기도 다소 미세하였다. 인장강도는 상당변형량이 ~2.4(3c)까지 변형량이 증가함에 따라 증가하지만 그 이상의 변형량에서는 강도가 포화된다. ARB에 따른 경도의 변화도 이전 연구의 고속ARB의 경우와 매우 유사하게 나타났다. 그러므로 ARB공정에서 변형률 속도 10배의 차이는 피가공재료의 미세조직 및 기계적 특성 변화에 크게 영향을 주지 않는다고 결론지을 수 있다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부 21세기 프론티어 연구개발사업인 '나노소재기술개발사업단'의 지원(과제번호: 07K1501-00231)으로 수행되었습니다.

#### 참 고 문 헌

1. R. Z. Valiev, N. A. Krasilnikov and N. K. Tsenev, *Mater. Sci. Eng.*, **A137**, 35 (1991).
2. R. Z. Valiev, F. Chmelik, F. Bordeaux, G. Kapwlski and B. Baudalet, *Scripta Metall. Mater.*, **27**, 855 (1992).
3. Y. Saito, N. Tsuji, H. Utsunomiya, T. Sakai and R. G. Hong, *Scripta Mater.*, **39**, 1221 (1998).
4. N. Tsuji, Y. Saito, H. Utsunomiya and S. Tanigawa, *Scripta Mater.*, **40**, 795 (1999).
5. S. H. Lee, Y. Saito, N. Tsuji, H. Utsunomiya and T. Sakai, *Scripta Mater.*, **46**, 281 (2002).
6. S. H. Lee, Y. Saito, T. Sakai and H. Utsunomiya, *Mater. Sci. Eng.*, **A325**, 228 (2002).
7. S. H. Lee, Y. Saito, K. T. Park and D. H. Shin, *Mater. Trans.*, **43**, 2320 (2002).
8. S. H. Lee, H. Inagaki, H. Utsunomiya, Y. Saito and T. Sakai, *Mater. Trans.*, **44**, 1376 (2003).
9. Y. Saito, H. Utsunomiya and H. Suzuki, *Proc. Inst. Mech. Eng. Ser. B*, **215**, 947 (2001).
10. J. Y. Huang, Y. T. Zhu, H. Jiang and T. C. Lowe, *Acta Mater.*, **49**, 1497 (2001).
11. Y. H. Jang, S. S. Kim, S. Z. Han, C. Y. Lim, C. J. Kim and M. Goto, *Scripta Mater.*, **52**, 21 (2005).
12. S. H. Lee, J. Cho, S. Z. Han and C. Y. Lim, *Kor. J. Mater. Res.*, **15**, 240 (2005).
13. S. H. Lee, J. Cho, C. H. Lee, S. Z. Han and C. Y. Lim, *Kor. J. Mater. Res.*, **15**, 555 (2005).
14. S. H. Lee, C. S. Kim, S. S. Kim, S. Z. Han and C. Y. Lim, *Kor. J. Mater. Res.*, **17**, 361 (2007).
15. N. Tsuji, T. Toyota, Y. Minamino, Y. Koizumi, T. Yamane, M. Komatsu and M. Kiritani, *Mater. Sci. Eng.*, **A350**, 108 (2003).