2상 타이타늄 합금의 미세조직 제어를 통한 초소성 특성 향상

박찬희¹·이종수#

Enhanced Superplasticity of Two-phase Titanium Alloys by Microstructure Control

C. H. Park, C. S. Lee

(Received November 24, 2009 / Revised December 9, 2009 / Accepted December 10, 2009)

Abstract

The current understanding for phase/grain boundary sliding and low-temperature/high-strain rate superplasticity of twophase titanium alloys is summarized. The quantitative analysis on boundary sliding revealed increased sliding resistance on the order of $\alpha/\beta \ll \alpha/\alpha \approx \beta/\beta$ boundary, hence, led to the conclusion that approximately 50% alpha(or beta) volume fraction and/or grain refinement is beneficial for obtaining large superplastic elongation at low temperature and/or high strain rate. To predict the temperature for 50% alpha volume in various alpha/beta Ti, artificial neural network was applied. Finally, much enhanced superplasticity was achieved through grain refinement utilizing dynamic globularization.

Key Words : Titanium, Superplasticity, Artificial Neural Network, Severe Plastic Deformation, Dynamic Globularization

1. 서 론

2상(two phase) 타이타늄 합금은 우수한 비강도, 내부식성, 고온강도 등의 특성을 가지고 있기 때 문에 항공기 및 발전설비용 소재로 광범위하게 사용되고 있다. 특히, 높은 고온 연신율을 바탕으 로 한 초소성 성형 및 확산 접합은 부품의 무게 및 제조 비용의 감소를 가능하게 하므로 산업적 잠재력이 크다. 그러나 일반적으로 초소성 성형은 850℃ 이상의 높은 가공온도 또는 10⁻³s⁻¹ 이하의 느린 가공속도에서만 가능하므로[1], 부품 제조의 순환이 느리고 다이(die) 비용과 에너지의 소비가 크다는 단점이 있다. 그러므로 750℃ 이하의 저온 또는 10⁻²s⁻¹ 이상의 고속 초소성 성형 기술이 요 구되고 있다.

한편, 2상 타이타늄 합금은 단상(single phase) 소

교신저자: 포항공과대학교 신소재공학과, E-mail: cslee@postech.ac.kr 재와 달리 α/α, β/β, α/β의 결정립계 또는 상경계의 분율이 결정립 크기 및 온도에 따라 변화하므로, 저온/고속 초소성을 위해서는 우선 이러한 미세조 직적 인자가 초소성의 주 기구인 결정립계 미끄 러짐 현상에 미치는 영향이 규명되어야 한다. 이 를 위해 Kim 등[2]은 2상 타이타늄의 각 계면들 이 상경계/결정립계 미끄러짐(phase/grain boundary sliding, P/GBS)에 미치는 영향을 정량적으로 파악 했다.

한편, Reddy 등[3]은 온도에 대한 상분율의 변화 를 예측했으며, Ko 등[4] 및 Park 등[5]은 강소성 가공 및 동적 구상화를 이용해 결정립을 미세화 시킨 후 저온/고속 초소성 현상을 관찰하였다.

본 논문에서는 2상 타이타늄의 초소성과 관련 하여 기 연구된 내용 중 P/GBS에 미치는 각 계면 의 영향, 미세조직 제어를 통한 초소성 특성 향상

한국소성가공학회지/제19권 제1호, 2010년/5

^{1.} 포항공과대학교 신소재공학과

및 이와 관련된 결정립 성장거동을 체계적으로 요약하고자 하였다.

2. 본 론

2.1 P/GBS에 대한 각 계면의 영향

2상 타이타늄 합금은 그 특성상 α/α, β/β의 결정 립계(grain boundary) 및 α/β의 상경계(phase boundary) 를 가지고 있는데, 초소성 구간에서는 온도의 증가 에 따라 β 상분율이 증가하므로 이에 따라 각 계 면의 분율도 변화한다. 그러므로 초소성 특성 향 상을 위해서는 초소성의 주 기구인 P/GBS에 유리 한 계면을 파악하는 것이 중요하다.

Kim 등[2]은 Ti-6Al-4V 합금에 대해 Peters 등[6] 이 제안한 열처리법(교차압연을 이용한 부분적 동 적 구상화 이후 어닐링을 통한 완전한 정적 구상 화)을 사용하여 결정립 크기를 3μm로 미세화 시 키고 875, 900, 925°C에서 추가 열처리를 통해 β 상분율을 34, 48, 64%로 제어 했으며 이때 각각 α/α, α/β, β/β의 계면이 우세했다. 800°C에서 응력이 완 및 인장 실험을 실시해 각 계면이 P/GBS에 미 치는 영향을 분석했는데 응력이완 실험결과를 Ha 등[7]이 제안한 내부변형변수 이론을 바탕으로 분 석한 결과 48%의 β 상분율을 가지는 경우 계면 미끄러짐 현상에 대한 마찰 저항력이 가장 낮은 것으로 밝혀졌고 이는 α/β 상계면이 P/GBS에 가 장 유리함을 의미한다. 또한 인장 실험 후 각 계 면에서의 P/GBS를 측정한 결과 역시 α/β의 상계 면 미끄러짐이 α/α, β/β의 결정립계 미끄러짐보다 우세함을 보였다(Fig. 1).



Fig. 1 The amount of boundary sliding measured in the specimens elongated up to 30%[2]

6/한국소성가공학회지/제19권 제1호, 2010년

결론적으로 Kim 등[2]의 연구에 의하면 P/GBS 를 위해서는 α/β 계면의 분율이 높을수록 유리하 다는 것을 알 수 있다. 이를 근거로 판단할 때 초 소성 특성을 향상시키기 위해서는 다음의 2가지 방법이 효과적이다. 첫 번째는 동일한 결정립 크 기에서 α와 β 상분율을 5:5로 제어하는 것이고, 두 번째는 동일한 상분율에서 결정립 크기를 미 세화시켜 α/β 계면적을 증가시키는 것이다.

2.2 인공신경망기법을 이용한 상분율 예측 Reddy 등[3]은 2상 타이타늄 합금의 온도에 대 한 상분율 변화가 α 및 β 안정화 원소의 화학적 조성에 의해 결정된다는 사실에 기인하여 인공신 경망기법(artificial neural network)을 이용해 2상 타 이타늄 합금의 상분율 변화를 예측하는 방법을 제시했는데 이는 다양한 합금조성, 열처리 온도, 상분율 등의 데이터베이스를 입력값으로 하여 각 변수에 가중치를 부여한 후 출력값을 최적화시켜 특정한 조성 및 온도에서 상분율을 예측하는 것 이다. 본 연구에서는 제시된 기법의 유효성을 검 토하고 이를 통한 초소성 성형 최적화 방법을 소 개하고자 한다. 앞서 Kim 등[2]의 결과에 따르면 동일한 결정립 크기에서는 α와 β의 상분율이 5:5 인 온도에서 α/β 계면적이 가장 커지므로 초소성 에 유리하다. 그러나 2상 타이타늄 합금의 종류는 다양할 뿐만 아니라 Ti-6Al-4V 합금과 같은 동일 한 합금을 제조할지라도 정확한 합금원소 첨가량 은 달라지므로 5:5의 상분율을 얻을 수 있는 온도 를 파악하기 위해서는 열처리 및 미세조직 관찰 등의 소모적인 분석이 필수적이었다.

이러한 불편을 해소하기 위해 개발된 상분율 예측 프로그램의 유효성을 검토했다. Fig. 2에 5.83 Al, 3.87 V, 0.09 Fe, 0.11 O, 0.013 C, Bal. Ti의 화학조 성을 가지는 Ti-6Al-4V 합금에 대한 상분율 예측 값과 측정값을 온도변화에 따라 표시했으며 오차 5% 이내의 비교적 정확한 결과를 보였다. 이를 바탕으로 판단할때 본 소재의 경우 875°C에서 가 장 높은 초소성 연신율을 나타낼 것으로 예상된 다. 이를 확인하기 위하여 동일한 소재에 대해 10⁻³s⁻¹에서 인장 실험을 실시했고 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 인장 실험을 실시했고 결과를 Fig. 3에 나타내었다. 인장 실험결과 850, 875, 900, 950°C에서 각각 806, 914, 778, 517%의 연신율을 나타내었으며 α와 β의 상분율이 5:5인 875°C에서 최대의 초소성 연신율이 얻어짐을 확인했다. 이로써 인공신경망기 법을 활용할 경우 기존의 방법에 비해 효과적



Fig. 2 Predicted and measured phase volume fraction of Ti-6Al-4V alloy



Fig. 3 Total elongation of Ti-6Al-4V alloy with the variation of test temperature

으로 초소성 성형을 최적화시킬 수 있을 것으로 기대된다.

2.3 강소성 가공을 활용한 초소성 향상

Ti-6Al-4V 또는 Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo-0.1Si와 같은 대표적인 2상 타이타늄 합금들은 700°C 이하에서 약 90%의 일정한 α 상분율을 가진다. 이러한 경 우 계면 미끄러짐에 유리한 α/β 계면적을 증가시 키기 위해서는 결정립 미세화가 효과적이다.

Ko 등[4]은 대표적인 강소성 가공법의 하나인 ECAP(equal-channel angular pressing)를 사용하여 초 기 결정립 크기가 11µm인 상용급 Ti-6Al-4V 합금 을 0.3µm까지 미세화시킨 후 초소성 특성을 분석 하였다. 이를 위해 초기조직과 미세화된 조직에 대하여 600~700°C의 온도구간에서 변형률속도를 변화시켜가며 대기 분위기에서 인장실험을 실시 했고 결과를 Fig. 4에 요약했다. 초기조직의 경우 모든 조건에서 164% 이하의 연신율을 기록한 반 면 미세화된 조직의 경우 600~700°C의 비교적 낮 은 온도구간에서 변형률속도가 10⁻⁴~10⁻³s⁻¹일 때 239~477%의 연신율을 보였다. 미세화된 조직의



Fig. 4 Tensile elongation of initial(coarse-grained, CG) and ECAPed(ultrafine-grained, UFG) Ti-6Al-4V alloy[4]

Fig. 5 Relative contribution of dislocation glide and GBS to deformation of Ti-6Al-4V at 10⁻²s⁻¹[4]

초소성 결과는 동일한 온도 및 변형률속도하에서 초기조직과 비교할 때 2~3.5배 향상된 것으로 이 는 계면 미끄러짐현상 시 삼중점에서 발생하는 응력집중이 결정립 미세화에 의해 원활히 수용되 기 때문이다.

한편, 변형률속도 민감도지수(strain rate sensitivity, m)를 계산한 결과 초기조직은 변형률속도에 관계 없이 0.11의 동일한 값을 보인 반면 미세화된 조 직은 구간 I, II, III의 3부분으로 확연히 구분되었 으며 높은 연신율을 보이는 구간 II에서의 m 값은 0.34였다. 일반적으로 초소성 영역에서 m값은 0.3 이상을 나타내며 본 연구결과는 ECAP 이후 미세 화된 소재의 저온 초소성 특성을 잘 반영한다. 또 한 P/GBS에 대한 정량적인 연구 결과, 초기 소재 의 경우 전체 변형량에 대해 P/GBS로 인한 변화 가 10% 이하인 반면 미세화된 소재의 경우 그 비 율이 45 %로 크게 증가했다(Fig. 5).

한국소성가공학회지/제19권 제1호, 2010년/7

2.4 동적 구상화를 활용한 초소성 향상

동적 구상화는 타이타늄 합금의 대표적인 결정 립 미세화 방법 중 하나로 초기조직을 충상조직 으로 유도한 다음 변형을 가하여 충 구조를 미세 한 등축조직으로 분절시키는 방법이다. Peters 등 [6]은 마르텐사이트 조직의 부분적인 동적 구상화 이후 추가적인 어닐링을 통하여 미세한 등축조직 (3μm)을 제어한 바 있다.

한편, Park 등[5]은 ELI급 Ti-6Al-4V 합금을 마르 텐사이트 조직으로 유도한 다음 동적 구상화 분 율 및 동적 구상화 후 결정립 크기에 미치는 변 형량, 변형률속도, 변형온도 등의 영향을 정량적 으로 파악한 후 동적 구상화를 위한 최적의 가공 조건을 변형온도 800℃, 변형률속도 10⁻¹s⁻¹, 변형 량 1.4로 보고했다. 최적의 가공 조건에서 동적 구상화를 시킬 경우 추가 어닐링이 생략되므로 Peters 등[6]에 의한 이전의 방법(3.5µm)보다 2배 가량 미세한 1.8μm의 결정립크기를 갖는 ELI급 Ti-6Al-4V 합금의 제조가 가능함이 보고되었다. 동 일 연구에서 상기의 두 미세조직에 대해 875°C, 10⁻³~10⁻¹s⁻¹구간에서 산화방지제를 시편에 도포한 후 인장실험이 실시되었으며 결과를 Fig. 6에 요약 했다. 3.5µm의 결정립크기를 갖는 소재의 경우 최 대 942%의 연신율을 보였고 변형률속도가 증가함 에 따라 연신율이 감소하여 10⁻¹s⁻¹에서는 334%를 기록했다. 반면 1.8μm의 결정립 크기를 갖는 소재 의 경우 10⁻¹s⁻¹의 빠른 변형률속도하에서 1058%의 3배 향상된 연신율을 기록했다. 동적 구상화된 소 재의 초소성 향상은 2배 정도의 결정립 미세화 효과뿐만 아니라 동적 구상화 이후 높은 분율 (~90%)의 고경각경계 형성, 미세하게 분절된 베타 상에 의한 알파/베타 계면의 증가, 알파상 주위에 생성된 높은 전위밀도에 의한 확산계수 증가 등 이 그 원인이다[5]. 또한 Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo-0.1Si 합금에 대해서도 상기와 동일한 조건(800°C, 10⁻¹s⁻¹, 변형량 1.4)에서 동적 구상화를 통한 결정립 미세 화가 보고되었으며[8], 동적 구상화 후 어닐링이 생략된 미세조직(2.2µm)은 650~750°C의 비교적 낮 은 온도구간에서 초기조직(13μm)과 비교하여 최 대 4.7배 향상된 저온 초소성을 보였다(Fig. 7). 또한 응력이완 실험결과를 비탄성 변형이론을 통해 분석한 결과 전체 변형량에 대한 결정립계 미끄러짐 현상의 분율이 초기조직은 20% 미만인 데 반해 동적 구상화된 조직은 40% 정도의 높은 값을 나타내었다(Fig. 8).

8/한국소성가공학회지/제19권 제1호, 2010년

Fig. 7 Tensile elongation of initial(coarse-grained, CG) and dynamically globularized(fine-grained, FG) Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo-0.1Si alloy[8]

Fig. 8 Relative contribution of dislocation glide and GBS to deformation of Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo-0.1Si at 10⁻²s⁻¹[8]

2.5 초소성 변형 중 결정립 성장 거동
 초소성 성형 시 발생할 수 있는 결정립 성장은
 P/GBS를 방해할 뿐만 아니라 초소성 성형 후 부
 품의 강도를 떨어뜨리는 원인이 된다. 일반적으로

결정립 성장은 식 (1)과 같이 표현되며[9] \overline{r}_{α} 와 $\overline{r}_{\alpha 0}$ 는 각각 특정한 시간(t)과 초기시간(t_0)에서 α 상 의 반지름, K는 결정립 성장속도 상수, n은 결정립 성장 기구와 관련된 지수이다.

 $\overline{r}_{\alpha}^{n} - \overline{r}_{\alpha 0}^{n} = K(t - t_{0})$ (1)

Park 등[8]은 Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo-0.1Si 합금의 초소성 변형 시 결정립 성장을 고찰하여 시간 변 화에 대한 결정립 성장 결과를 Fig. 9와 같이 나타 내었다. 정적 및 동적인 상태에서 동일하게 n이 3 인 경우 직선적인 관계와 가장 잘 일치했으며 이 는 결정립 성장의 주 기구가 격자 확산임을 의미 한다. 이때 기울기는 결정립 성장속도 상수(K)를 의미하는데 동적인 상태(초소성 변형 중)에서는 1.43µm³/h, 정적인 상태에서는 0.12µm³/h였다. 이는 동적인 상태에서 결정립 성장이 더욱 활발히 발 생함을 의미하며 변형 중 형성된 전위구조에 의 해 확산계수가 증가했기 때문인 것으로 판단된다.

Sargent 등[10]에 의하면 Ti-6Al-4V 합금의 경우 775°C에서 K값은 정적인 경우 0.48µm³/h이고 동적 인 경우 3.25µm³/h인데 역시 동적인 경우 그 값이 더 크다. 그러나 Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo-0.1Si 합금의 K와 비교할 경우 Ti-6Al-4V 합금이 2.3~4배 더 큰 값을 보이는데 이는 초소성 변형 시 Ti-6Al-4V 합 금에서 결정립 성장이 더 빠르다는 것을 의미한 다.

식 (1)에서 결정립 성장속도 상수(K)는 α상의 분율, 율속되는 용질의 확산계수, 율속되는 용질 의 평형상태농도 등에 의해서 결정되는데 앞서 언급한 바와 같이 두 합금의 경우 750°C에서 α상 분율은 10% 내외로 동일하므로 상분율의 영향은 미미하다. 또한 두 소재의 평형상태농도와 관계있 는 농도인자(식 (2)) 역시 Ti-6Al-4V의 경우 10.07, Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo-0.1Si의 경우 11.40으로 거의 동일하다[11,12].

한편, Ti-6Al-4V 및 Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo-0.1Si 합 금의 확산은 각각 V과 Mo의 확산에 의해 율속되 고 각 용질의 확산계수는 식 (3), (4)로 표현된다 [11,13].

$$C_{\beta}(1-C_{\beta})/(C_{\alpha}-C_{\beta})^{2}$$
⁽²⁾

$$D_V^\beta(\mu m^2/s) = 77000 \exp\{-17460/T(K)\}$$
(3)

$$D_{Mo}^{\beta}(\mu m^2/s) = 52500 \exp\{-18520/T(K)\}$$
(4)

이에 의하면 V의 확산계수가 Mo에 비해 5배 정도 크므로 Ti-6Al-4V 합금의 빠른 결정립 성장 속도는 빠른 확산계수 때문이라고 판단된다.

Fig. 9 The coarsening behavior of fine-grained specimen(2.2 μ m) in dynamic($\dot{\varepsilon} = 10^{-4}$ s⁻¹) and static conditions at 750°C. The experimental data were fitted with different n values: (a) n=2, (b) n=3 and (c) n=4[8]

한국소성가공학회지/제19권 제1호, 2010년/9

3. 결 론

(1) 초소성 변형의 주 기구인 P/GBS는 α와 β의 상분율이 5:5인 경우 가장 활발하게 발생했으며 이로부터 α/β 상계면이 α/α나 β/β의 결정립계면 보 다 초소성에 유리하다는 결론을 내릴 수 있었다. 그러므로 초소성 특성 향상을 위해서는 동일한 결정립 크기에서 α와 β 상분율을 5:5로 제어하거 나 동일한 상분율에서 결정립 크기를 미세화시켜 α/β 계면적을 증가시키는 것이 유리하다.

(2) 특정한 Ti-6Al-4V 합금에 대해 인공신경망기 법의 상분율 예측 신뢰성을 재검토 한 결과 소모 적인 실험없이 화학조성의 정보만으로 온도에 따 른 상분율 변화를 5%의 오차 내에서 예측할 수 있었고 875℃에서 5:5의 상분율을 보였다. 또한 고온 인장 실험결과 875℃에서 914%의 최대 연신 율을 보였으며 이를 바탕으로 초소성 성형 온도 최적화가 가능했다.

(3) ECAP 및 동적 구상화를 통해 Ti-6Al-4V 및 Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo-0.1Si 합금의 결정립 미세립화 가 가능했으며 저온/고속 초소성 특성을 얻었다. 이는 결정립 미세화의 효과 및 동일한 상분율에 서 α/β 상계면의 증가에 의한 것으로 판단된다. 또한 비탄성 변형이론에 근거한 응력이완 실험을 실시한 결과 저온/고속 초소성 변형 시 활발한 P/GBS 현상이 관찰되었다.

(4) Ti-6Al-4V 및 Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo-0.1Si 합금 의 저온 초소성 변형 시 결정립 성장속도는 정적 인 상태와 비교하여 10배 정도 빨랐다. 또한 Ti-6Al-4V의 경우 결정립 성장속도 상수가 Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo-0.1Si와 비교해 4배 정도 컸으며 이는 확산을 지배하는 V의 확산계수가 Mo의 확산계수 보다 크기 때문이다.

참 고 문 헌

- M. T. Cope, D. R. Evetts, N. Ridley, 1986, Superplastic deformation characteristics of two microduplex titanium alloys, J. Mater. Sci., Vol. 21, pp. 4003~4008.
- [2] J. S. Kim, Y. W. Chang, C. S. Lee, 1998, Quantitative analysis on boundary sliding and its accommodation mode during superplastic deformation of two-phase Ti-6Al-4V alloy, Metall. Mater. Trans., Vol. 29A, pp. 217~226.

10 / 한국소성가공학회지/제19권 제1호, 2010년

- [3] N. S. Reddy, C. S. Lee, J. H. Kim, S. L. Semiatin, 2006, Determination of the beta-approach curve and beta-transus temperature for titanium alloys using sensitivity analysis of a trained neural network, Mater. Sci. Eng. A, Vol. A434, pp. 218~226.
- [4] Y. G. Ko, C. S. Lee, D. H. Shin, S. L. Semiatin, 2006, Low-temperature superplasticity of ultrafine-grained Ti-6Al-4V processed by equal-channel angular pressing, Metall. Mater. Trans., Vol. 37A, pp. 381~391.
- [5] C. H. Park, Y. G. Ko, J.-W. Park, C. S. Lee, 2008, Enhanced superplasticity utilizing dynamic globularization of Ti-6Al-4V alloy, Mater. Sci. Eng. A., Vol. A 496, pp. 150~158.
- [6] M. Peters, G. Lutjering, G. Ziegler, 1983, Control of microstructures of (alpha plus beta)-titanium alloys, Z. Metall., Vol. 74, pp. 274~282.
- [7] T. K. Ha, Y. W. Chang, 1998, An internal variable theory of structural superplasticity, Acta Mater., Vol. 46, pp. 2741~2749.
- [8] C. H. Park, B. Lee, C. S. Lee, 2009, Proc. 23rd Conf. on Adv. Struc. Mater. (eds. Y.-S. Kim, B.-S. Lee), Korean Inst. Metals & Mater., Daejeon, Korea, p. 8.
- [9] I. M. Lifshitz, V. V. Slyozov, 1961, The kinetics of precipitation from supersaturated solid solutions, J. Phys. Chem. Solids, Vol. 19 pp. 35-50.
- [10] G. A. Sargent, A. P. Zane, P. N. Fagin, A. K. Ghosh, S. L. Semiatin, 2008, Low-temperature coarsening and plastic flow behavior of an alpha/beta titanium billet material with an ultrafine microstructure, Metall. Mater. Trans., Vol. 39A, pp. 2949~2964.
- [11] S. L. Semiatin, T. M. Lehner, J. D. Miller, R. D. Doherty, D. U. Furrer, 2007 Alpha/beta heat treatment of a titanium alloy with a nonuniform microstructure, Metall. Mater. Trans., Vol. 38A, pp. 910~921.
- [12] S. L. Semiatin, T. M. Brown, T. A. Goff, P. N. Fagin, D. R. Barker, R. E. Turner, J. M. Murry, J. D. Miller, F. Zhang, 2004, Diffusion coefficients for modeling the heat treatment of Ti-6Al-4V, Metall. Mater. Trans., Vol. 35A, pp. 3015~3018.
- [13] S. L. Semiatin, B. C. Kirby, G. A. Salishchev, 2004, Coarsening behavior of an alpha-beta titanium alloy, Metall. Mater. Trans., Vol. 35A, pp. 2809~2819.