

## 용융가압함침공정을 이용한 세라믹 입자 강화 철강복합재료의 제조성 검증

조승찬\* · 이영환\* · 고성민\* · 박현재\* · 이동현\* · 신상민\* · 조일국\* · 이상관\* · 이상복\*<sup>†</sup>

### Fabrication of Ceramic Particulate Reinforced Steel Composites by Liquid Pressing Infiltration Process

Seungchan Cho\*, Yeong-Hwan Lee\*, Seongmin Ko\*, Hyeon Jae Park\*, Donghyun Lee\*, Sangmin Shin\*, Ilguk Jo\*, Sang-Kwan Lee\*, Sang-Bok Lee\*<sup>†</sup>

**ABSTRACT:** Various ceramic particulate such as TiC, TiB<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> reinforced SUS431 matrix composites were successfully fabricated by a novel liquid pressing infiltration process. Microstructures of the SUS431 composite were analyzed to determine manufacturability of composites. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SUS431 composite had lots of defects due to poor wettability between the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and steel matrix. On the other hand, TiC was uniformly dispersed in the SUS431 matrix than TiB<sub>2</sub> and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> due to good wettability and interfacial properties.

**초 록:** 본 연구에서는 용융가압함침 공정을 이용하여 TiC, TiB<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 세라믹 입자가 분산된 SUS431 금속복합재료를 제조하고 미세조직을 분석하여 세라믹 입자에 따른 제조성에 대해 검토하였다. 젖음성이 나쁜 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 경우 내부에 결함이 다수 존재함을 알 수 있었으며, TiB<sub>2</sub> 및 TiC 입자 강화 복합재의 경우 상대적으로 결함이 적고 강화재가 균일 분산되었음을 확인하였다. 특히, TiC-SUS431 복합재료의 경우 TiC와 Fe계 기지합금의 우수한 젖음성 및 용융가압함침공정 적용으로 우수한 계면 특성을 가지며 결함이 적고 균일한 미세조직을 가지는 것을 확인하였다.

**Key Words:** 금속복합재료(Metal matrix composite), 탄화 티타늄(Titanium carbide), 붕화 티타늄(Titanium boride), 산화 알루미늄(Aluminum oxide), 용융가압함침(Liquid pressing infiltration)

## 1. 서 론

자동차, 항공기 등의 수송기기 및 화력 발전 등 기반 산업의 발전이 지속되기 위해서는 기존 철강 소재와 같은 금속 소재의 성능을 유지하면서 획기적인 경량화 및 내구성 향상이 가능한 소재의 필요성이 증가하고 있으므로, 이를 위한 신소재 기술개발이 요구되고 있다[1]. 세라믹 입자 강화 Fe계 금속복합재료(metal matrix composite; MMC)는 기존 철강소재 대비 가벼우면서, 우수한 고온 강도, 경도, 내

마모성 등을 가지는 소재이다[2-6]. 이러한 세라믹 입자 강화 금속복합재료의 제조에 있어 강화재와 기지금속을 선정할 때, 강화재의 경우 밀도, 경도, 젖음성, 기지금속과의 반응성, 열팽창 계수 등을 고려하고 기지합금의 경우 강화재와의 계면 친화도, 내산화성, 강도 등을 고려하여 후보 구성소재군을 선정하여야 한다. 특히, 제조공정 관점에서는 기지금속과 세라믹 강화재의 반응성을 포함한 젖음성이 함침성에 미치는 영향이 크다. 강화재와 기지금속의 젖음성은 일반적으로 두 소재간의 접촉각을 측정하여 평가하는

Received 8 June 2018, received in revised form 31 July 2018, accepted 23 August 2018

\*Composites Research Division, Korea Institute of Materials Science, Changwon, Korea

<sup>†</sup>Composites Research Division, Korea Institute of Materials Science, Changwon, Korea, Corresponding author (E-mail: leesb@kims.re.kr)

데, 접촉각은 액체와 고체의 접촉에 의하여 계면에 형성된 각으로 정의되며 접촉각이 클수록 젖음성이 나쁘다는 것을 나타내고 접촉각이  $90^\circ$  이상일 경우 자합적 함침이 발생하기 어렵다. 산화물계 세라믹의 경우 Fe계 금속과의 젖음성이 나쁘기 때문에 높은 접촉각을 형성하는 것으로 보고되고 있다[7].

한편, 세라믹 입자 강화 금속복합재료는 일반적으로 분말야금공정으로 제조되고 있으나, 제품 크기 및 형상에 한계가 있고 net-shaping을 위해서는 후가공이 필수적이며 난삭 가공으로 인해 제조비용이 높은 단점이 있다. 본 연구에서는 액상의 가압공정으로 공정이 단순하며 저비용으로 제조가 가능할 뿐만 아니라, 대형 및 near-net 형상의 복합재료 제조가 가능한 용융가압함침공정을 이용하여 다양한 세라믹 입자( $Al_2O_3$ ,  $TiB_2$ , TiC)가 강화된 철강복합재료의 제조 가능성을 검증하였다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 세라믹 프리폼(preform)

철강복합재료를 제조하기 위하여 우선 세라믹 프리폼을 제조하였다. 프리폼을 제조하기 위하여 강화재로는  $Al_2O_3$ ,  $TiB_2$ , TiC 분말을 이용하였으며 젖음성을 고려하여  $Al_2O_3$ 의 경우 평균입도  $53 \mu m$ 의 조대한 분말을 사용하였으며,  $TiB_2$  및 TiC의 경우 평균입도  $3 \mu m$ 의 미세한 분말을 사용하였다. 다양한 세라믹 분말을 일축가압 성형기를 이용하여 80 MPa의 압력을 가해 지름 20 mm, 높이 10 mm의 크기의 프리폼을 만들고 Ar 분위기에서  $1200^\circ C$ , 1시간 소결하여, 체적율이 약 60%인  $Al_2O_3$ ,  $TiB_2$ , TiC 프리폼을 제작하였다.

### 2.2 용융가압함침 철강복합재료 제조

본 연구에서는 독자 개발한 용융가압함침장비를 이용하여 다양한 세라믹 입자가 강화된 SUS431 복합재료를 제조하였다. 챔버의 경우 최대 30 bar까지 가압이 가능하게 설계되어 있고, 최대 가열 온도는 약  $1800^\circ C$ 로 고온에서 고압의 압력을 부가할 수 있는 장비이다[2]. SUS431 합금 및 강화재 프리폼을 챔버에 장입한 후 챔버 내부를  $10^{-2}$  torr 수준의 진공 상태로 유지시키면서 분당  $8^\circ C$ 의 승온 속도로  $1600^\circ C$ 까지 가열하였다. SUS431 합금이 용해된 후 Ar 가스를 이용하여 1 MPa의 압력으로 가압 함침하고 일정한 시간을 유지한 후 로냉하였다. 이러한 과정으로 다양한 세라믹 입자가 강화된 용융가압함침 철강복합재료를 제조하고 특성을 평가하였다.

### 2.3 미세조직 및 특성 평가

산화물계 및 탄화물계 세라믹과 철강소재의 젖음성을 평가하기 위하여 고온접촉각 측정장비(DSAHT17-1, KRÜSS GmbH)를 이용하여 대표적인 산화물계 및 탄화물계 강화

재인  $Al_2O_3$ , TiC 분말로 제조된 세라믹 프리폼과 철강소재의 접촉각을 Ar 분위기에서 용융가압함침 온도인  $1600^\circ C$ 까지 가열하면서 측정하였다. 용융가압함침공정으로 제조된 SUS431 금속복합재료의 건전성을 평가하기 위하여 주사전자현미경(JSM-6610LV, JEOL) 및 투과전자현미경(JEM 2100F, JEOL)을 이용하여 미세조직을 분석하였다. 복합재료의 경도는 로크웰 경도기(HR-210MR, mitutoyo)를 사용하여 경도 값을 5회 측정하고 평균값을 계산하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 젖음성 평가

강화재의 경우 밀도, 경도, 젖음성, 기지금속과의 반응성, 열팽창 계수 등을 고려하고 기지합금의 경우 강화재와의 계면 친화도, 내산화성, 강도 등을 고려하여 후보 구성소재를 선정하여 강화재 및 기지합금별 제조성을 검증하였다. Fig. 1의 모식도에 나타난 것처럼 Fe계 용탕과 세라믹 강화재의 접촉각이  $90^\circ$  이상일 경우 자발함침이 일어나지 않으며, 함침을 위해서는 접촉각이 클수록 높은 가압력을 필요로 하며 강화재의 체적율이 증가할수록 함침을 위해 요구되어지는 가압력은 더욱 증가하게 되는 것을 알 수 있다.

또한, 용융가압함침공정에서 적용하고 있는 프리폼의 경우 기공율이 약 40% 정도로 문헌에서 보고되는 완전히 치밀화된 강화재와의 접촉각과는 다른 양상을 나타낼 수 있기 때문에 실제 제조한 TiC,  $Al_2O_3$  프리폼과 Fe계 기지합금을 이용하여 접촉각을 측정된 결과를 Fig. 2에 나타내었다. TiC 프리폼과  $Al_2O_3$  프리폼의 평균 기공율은 약 40% 정도로 동일 하였음에도 불구하고 TiC 프리폼의 경우 Fe계 합

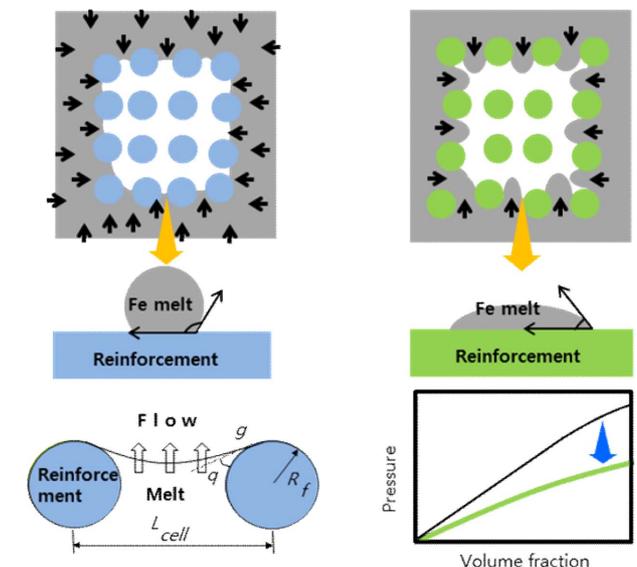


Fig. 1. Schematics of infiltration of liquid metal into the ceramic preforms according to wettability between ceramic particle and liquid metal

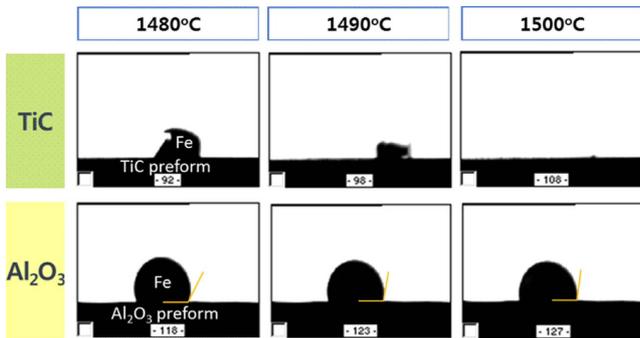


Fig. 2. Images of wetting angle measurement between steel alloy and ceramic (TiC,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) preforms in Ar atmosphere

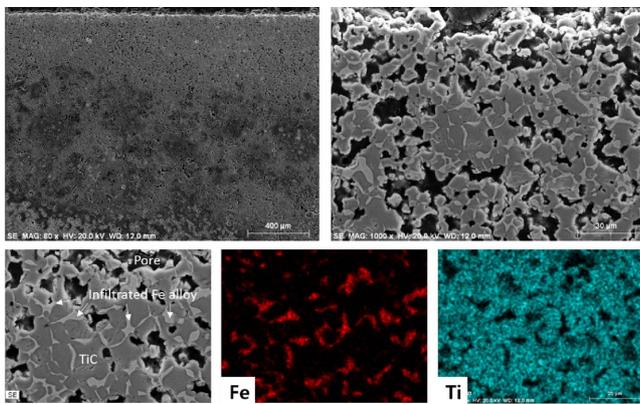


Fig. 3. Cross-sectional SEM-EDS images of infiltrated TiC preform during wetting angle measurement between TiC preform and molten steel

금이 용융된 후  $1500^\circ\text{C}$ 에서 완전히 사라지는 것이 확인된 반면,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  프리폼의 경우 온도가 증가할수록 접촉각이 소폭 감소하였지만 온도에 상관없이 전체적으로  $90^\circ$  이상의 높은 접촉각을 유지하는 것을 확인하였다. 따라서 산화물계 강화재의 경우 낮은 젖음성(높은 접촉각)으로 인하여 액상의 철강이 프리폼내에 자발적으로 함침되기 어렵기 때문에 물리적인 가압이 필요하다는 것을 알 수가 있다.

접촉각 측정중 용융된 Fe계 기지합금이 자발 함침된 TiC 프리폼의 단면 SEM 분석 결과를 Fig. 3에 나타내었다. TiC 프리폼은 다공체 구조를 형성하고 있는 것을 알 수 있으며, 확대한 SEM 이미지에서 일부 TiC 입자 주위로 Fe계 기지합금이 함침된 듯한 형상을 관찰할 수 있었다. SEM-EDX 분석 결과 Fe 성분이 확인되어, Fe계 기지합금이 TiC 프리폼내로 자발함침 된 것으로 예상된다. 기존 문헌에서 보고된 TiC와 Fe계 합금의 접촉각의 경우 기지 합금의 조성이나 측정 방법에 따라 다소 차이가 있긴 하지만  $90^\circ$  미만으로 젖음성이 우수한 것을 알 수 있었다[8]. 다만, 산화분위기에서는 TiC도 Fe와  $90^\circ$  이상의 접촉각을 형성하여 분위기 제어가 중요하다고 보고되고 있다[9]. 따라서 강화재 프리폼과 기지합금의 접촉각을  $90^\circ$  미만으로 낮출 수 있다면

자발함침도 가능하다는 것을 확인할 수 있었으며,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 의 경우 금속 표면코팅 등의 표면 처리나 복합 프리폼 제조 등의 공정 개선이 필요함을 알 수 있었다. 또한 자발함침의 경우에도 결함이 다수 존재하는 것으로보아 결함이 없는 건전한 TiC 강화 철강복합재료의 개발을 위해서는 가압이 필수적이라는 것을 알 수가 있다.

상기의 결과로부터 본 실험에서는 용융가압함침공정을 이용하여 10 atm의 가압력을 이용하여 다양한 세라믹 입자 강화 SUS431 복합재료의 제조 가능성에 대해 검토하였다.

### 3.2 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -SUS431 복합재료

$\text{Al}_2\text{O}_3$ 는 밀도가 낮고 ( $3.98 \text{ g/cm}^3$ ), 내산화성 및 고온 기계적 성질이 우수한 장점을 가지고 있으나 Fe계 기지합금과의 젖음성이 나쁜 단점이 있다[7]. 본 연구에서는 평균 입도가 약  $53 \mu\text{m}$ 인  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 와 SUS431을 강화재와 기지합금으로 하는 용융가압함침 복합재료를  $1600^\circ\text{C}$ , 10 atm 조건에서 제조하였다.

Fig. 4의 SEM 이미지에서 알 수 있듯이  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 가 기지내에 균일하게 분산되어 있는 것을 확인할 수 있으나, 미함침으로 생각되는 결함부위가 다수 확인되었다. 보고되어지는 Fe와  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 의 접촉각은  $100^\circ$  이상으로 젖음성이 나쁘에도 불구하고 용융가압함침공정을 통한 가압 효과로 함침 가능성을 확인하였으나, 젖음성을 개선하고 공정을 최적화하지 않을 경우 결함이 없는 균일한  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -SUS431 복합재료를 제조하는데 한계가 있는 것으로 판단된다.

### 3.3 $\text{TiB}_2$ -SUS431 복합재료

$\text{TiB}_2$ 는 전기 및 열전도성이 우수하고 고온 안전성이 뛰

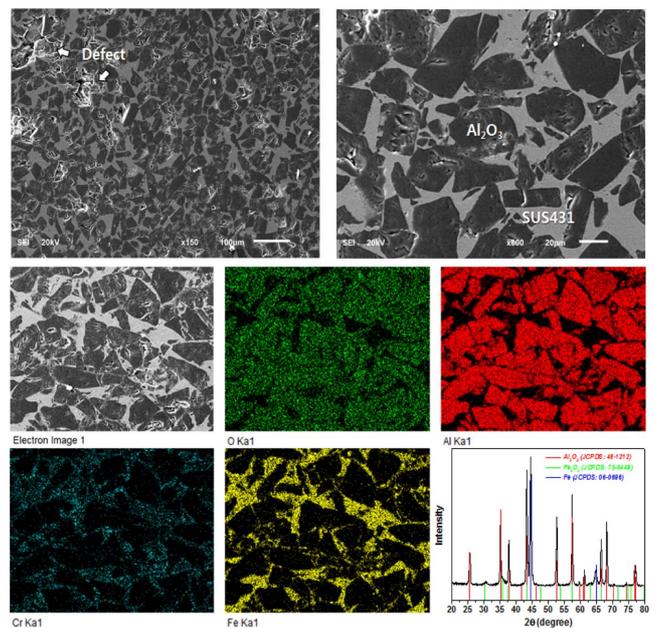


Fig. 4. SEM-EDS and XRD results of  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -SUS431 composite

어나며 높은 강도와 고용점 특성을 가지고 있기 때문에 철강 제련용 재료(각종 노즐 및 필터), 단결정용 도가니, 온도 측정용 보호관, 알루미늄 전해용 전극, 절삭공구 등 전기·전자 공업, 엔지니어링 세라믹, 고급 내화물 분야 등에 폭넓은 응용되고 있는 세라믹 재료이다[10-12].  $TiB_2$  입자 강화 철강복합재료의 제조성을 검증하기 위하여 약  $3\ \mu m$  크기의  $TiB_2$  분말과 SUS431 합금을 기지로 하여 용융가압침공정으로  $1600^\circ C$ ,  $10\ atm$  조건에서 제조한  $TiB_2$ -SUS431 복합재료의 미세조직 분석 결과를 Fig. 5에 나타내었다.

SEM 이미지로부터  $TiB_2$  입자가 SUS431 기지내에 균일하게 분산되어 있는 복합재료 제작에 성공한 것을 확인하였지만 부분적인  $TiB_2$  입자의 응집 및 결합 부위가 관찰되어 추가적인 공정개선이 필요한 것으로 판단된다. TEM-EDS 분석 결과  $TiB_2$  입자 표면에 미세한 Ti 산화물이 형성된 것이 확인되었으나  $TiB_2$ /SUS431 계면에서 반응상이나 불순물은 관찰되지 않았으며, 깨끗한 밀착 계면을 형성하고 있음을 확인하였다(Fig. 6). 또한, 측정된 HRC 경도는 약 62.3

으로 양호한 경도 특성을 나타내어 철강복합재료의 강화 재료로서의 적용 가능성을 확인하였다.

### 3.4 TiC-SUS431 복합재료

TiC는 높은 경도, 탄성을 등의 우수한 특성과 함께 Fe계 금속과의 젖음성이 좋아 Fe계 복합재료의 강화재로 기대되고 있다. 용융가압침공정으로 제조한 TiC-SUS431의 SEM

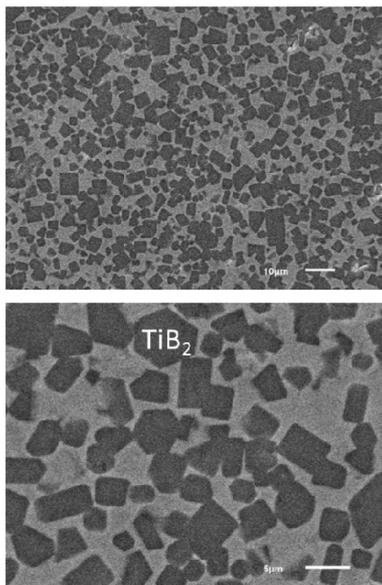


Fig. 5. SEM images of  $TiB_2$ -SUS431 composite fabricated by liquid pressing infiltration process

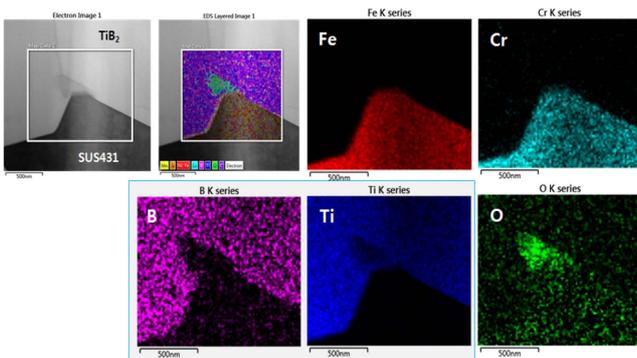


Fig. 6. TEM-EDS mapping images of  $TiB_2$ -SUS431 composite

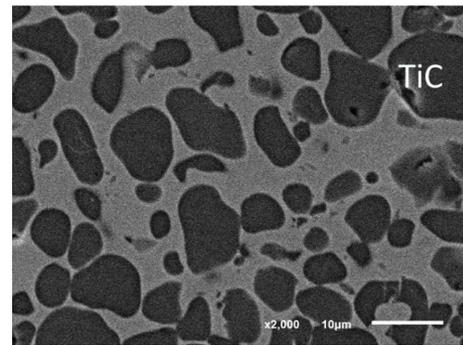


Fig. 7. SEM images of TiC-SUS431 composite fabricated by liquid pressing infiltration process

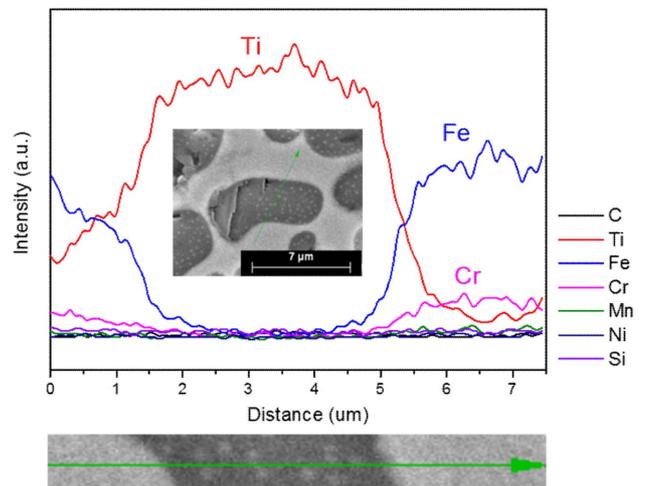
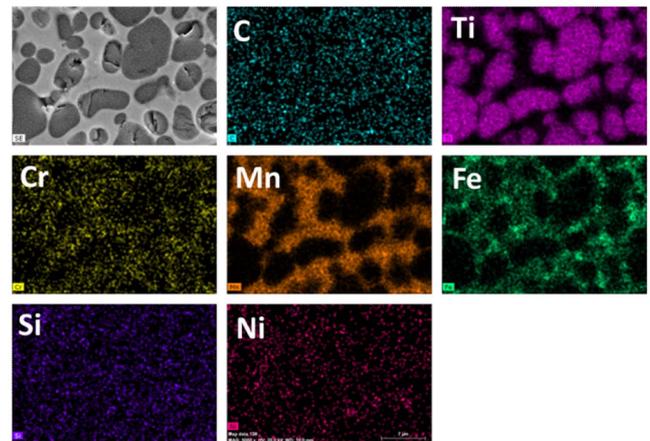


Fig. 8. SEM-EDS images of TiC-SUS431 composite

이미지에서 알 수 있듯이 TiC 입자가 기지금속 내에 균일하게 분포되어 있고, 계면 결합이 없는 복합소재가 제조되었다(Fig. 7). 또한, 구형의 입자형상이 관찰되는데, 고온에서 TiC 표면부가 SUS431 용탕내에 고용되었다가 재석출되면서 구형의 형상을 띠는 것으로 판단된다.

측정된 HRC 경도 역시 69.8로 우수한 값을 나타냄을 확인하였다. 따라서 계면 특성이 우수한 것을 알 수가 있어 강화재중에서 TiC가 Fe계 복합소재의 강화재로서 가장 적절한 것으로 판단된다. 또한, 그림8의 SEM-EDS 분석 결과에서도 알 수 있듯이 SUS431 기지내에 크롬 탄화물과 같은 석출물이 형성되지 않았음을 확인하였다. 기지합금내에 탄소 함량이 높은 TiC-SKD11 복합재료의 경우 계면에 다량의 크롬 탄화물이 형성되어 파괴시 응력집중에 의한 크롬 탄화물에서의 조기 파단이 관찰되었다. 따라서 개발된 TiC-SUS431 복합재료의 경우 탄화물 제어 및 양호한 계면특성으로 우수한 기계적 물성을 나타낼 것으로 판단된다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 용융가압침공정을 이용하여 고체적용의  $Al_2O_3$ ,  $TiB_2$  및 TiC 입자가 균일하게 분산된 SUS431 복합재료를 제조하고 미세조직을 분석하여 경량 고강도 철강 복합재료의 제조 가능성을 검증하였다. 용융가압침공정을 이용하여 Fe계 금속과 젖음성이 나쁜  $Al_2O_3$  입자가 강화된 SUS431 복합재료 제조에 성공하였으나 결합 제어 및 미세입자 강화 복합재료 제조를 위한 추가적인 연구가 필요할 것으로 판단된다. 또한, 평균입도 3  $\mu m$ 의 미세  $TiB_2$ 가 균일 분산된 SUS431 복합재료 제조에 성공하였으며 국부적인 결합 및  $TiB_2$  입자간 응집을 개선한다면 TiC와 함께 철강복합재료의 물성 향상을 위한 강화재로 사용이 가능할 것으로 판단된다. TiC 입자 강화 SUS431 복합재의 경우 다른 산화물, 붕화물계 강화재보다 함침성이 우수하여 결합이 적고 강화재가 균일 분산된 복합재료가 제조되었다. 따라서 개발된 경량 TiC-SUS431 복합재료의 경우 경량/고강도 고온구조용 소재로 적용 가능성이 높다고 판단된다.

#### 후 기

본 연구는 방위사업청, 산업통상자원부가 공동으로 추진하는 민군겸용기술사업(14-CM-MP-04)의 재원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

#### REFERENCES

1. Lee, D., Cho, S., Kim, Y., Lee, S.-K., Lee, S.-B., and Jo, I., "Mechanical Properties and Wear Performance of the Al7075 Composites Reinforced with Bimodal Sized SiC Particles", *Composites Research*, Vol. 30, No. 5, 2017, pp. 1-6.
2. Cho, S., Jo, I., Lee, S.-K., and Lee, S.-B., "Microstructure and Wear Characteristics of TiC-SKD11 Composite Fabricated by Liquid Pressing Infiltration Process", *Composites Research*, Vol. 30, No. 3, 2017, pp. 209-214.
3. Oh, N.R., Lee, S.K., Hwang, K.C., and Hong, H.U., "Characterization of Microstructure and Tensile Fracture Behavior in a Novel Infiltrated TiC-steel Composite", *Scripta Materialia*, Vol. 112, 2016, pp. 123-127.
4. Cho, S., Jo, I., Kim, H., Kwon, H.-T., Lee, S.-K., and Lee, S.-B., "Effect of TiC Addition on Surface Oxidation Behavior of SKD11 Tool Steel Composites", *Applied Surface Science*, Vol. 415, 2017, pp. 155-160.
5. Qi, Q., Liu, Y., and Huang Z., "Promising Metal Matrix Composites (TiC/Ni-Cr) for Intermediate-temperature Solid Oxide Fuel Cell (SOFC) Interconnect Applications", *Scripta Materialia*, Vol. 109, 2015, pp. 56-60.
6. Oh, N.-R., Lee, S.-K., Cho S.-C., Jo, I.-G., Hwang, K.-C., Kim, D.-H., Cho, Y.-T., Sur, D.-W., and Hong, H.U., "Temperature Dependency of the Tensile Characteristics and Transition of Fracture Behaviors in a Novel Infiltrated TiC-SKD11 Composites", *Korean Journal of Metals and Materials*, Vol. 55, No. 3, 2017, pp. 156-164.
7. Xuan, C., Shibata, H., Sukenaga, S., Jönsson, P.G., and Nakajima, K., "Wettability of  $Al_2O_3$ , MgO and  $Ti_2O_3$  by Liquid Iron and Steel", *ISIJ International*, Vol. 55, No. 9, 2015, No. 9, pp. 1882-1890.
8. Parashivamurthy, K.I., Kumar, R.K., Seetharamu, S., and Chandrasekharaiah, M.N., "Review on TiC Reinforced Steel Composites", *Journal of Materials Science*, Vol. 36, 2002, pp. 4519-4530.
9. Chumanov, I.V., and Anikeev, A.N., "Effect of Atmosphere on the Wetting of Titanium Carbide with Liquid Low-carbon Steel", *Russian Metallurgy*, Vol. 2016, No. 12, 2016, pp. 1145-1147.
10. Fedrizzi, A., Pellizzari, M., Zadra, M., and Marin, E., "Microstructural Study and Densification Analysis of Hot Work Tool Steel Matrix Composites Reinforced with  $TiB_2$  Particles", *Materials Characterization*, Vol. 86, 2013, pp. 69-79.
11. Lartigue-Korinek, S., Walls, M., Haneche, N., Cha, L., Mazerolles, L., and Bonnet, F., "Interfaces and Defects in a Successfully Hot-rolled Steel-based Composite Fe-TiB<sub>2</sub>", *Acta Materialia*, Vol. 98, 2015, pp. 297-305.
12. Liu, J., Chen, W., Chen, L., Xia, Z., Xiao, H., and Fu, Z., "Microstructure and Mechanical Behavior of Spark Plasma Sintered  $TiB_2/Fe-15Cr-8Al-20Mn$  Composites", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 747, 2018, pp. 886-894.