

일방향 응고한 Al-CuAl₂ 공정복합재료에 관한 연구 (1) (미세조직에 미치는 응고조건과 진동의 영향)

이현규 · 홍종휘*

조선대학교 공과대학 재료공학과
*고려대학교 공과대학 금속공학과

The Study on the Unidirectionally Solidified Al-CuAl₂ Eutectic Composites(1) (Effect of Solidification Condition and Vibration on the Microstructure)

Hyun kyu Lee, Jong Whee Hong*

Dept. of Materials Engineering, Chosun University, Kwangju 501-759

*Dept. of Metallurgical Engineering, Korea University, Seoul 136-075

초 록 일방향 응고한 Al-CuAl₂ 공정 복합재료의 미세조직에 미치는 응고조건과 진동의 영향에 대해서 조사하였다. 진동하에서 성장속도(R) 변화에 따라 일방향응고 시켰을 때 열구배(G)는 32°C/cm와 35°C/cm를 유지했다. 공정조직은 성장조건(G/R)에 따라 변화되었다. 조직미세화는 진동의 영향도 컸지만 G/R의 영향이 더 크다는 것을 알 수 있었다. 층상 간격은 $\lambda^2R = \text{상수}$ 라는 관계에 따라 성장속도와 더불어 변화 되었다.

Abstract The effect of solidification condition and vibration on structure refinement was investigated for unidirectionally solidified Al-CuAl₂ eutectic composites. Eutectic composites were unidirectionally solidified under vibration with variation of growth rates (R) and thermal gradient(G), 32°C/cm, and 35°C/cm. The lamellar structure was varied according to growth condition(G/R ratio). For the structure refinement the effect of G/R was found out to be greater rather than that of vibration. The interlamellar spacing(λ) in this materials was varied with the growth rates(R) by " $\lambda^2R = \text{Constant}$ " relationship

1. 서 론

층상 공정복합재료 중에서 Al-CuAl₂공정복합재료는 비교적 용융점이 낮으므로(T_m = 548°C) 일반적인 전기로에서 일방향응고가 가능하고, 많은 다른 층상 복합재료를 대표하는 model System으로 간주되기 때문에 일찌기 많은 연구가 시작되어 최근까지 활발하게 진행되고 있다.

그 중에서도 특히 응고성장에 대한 연구가 풍부하여 응고성장시 고-액 계면의 안전성^{1~6)}, off-eutectic 복합재료의 성장에 미치는 용탕 대류의 영향⁷⁾, 일방향응고 성장속도에 따른 층상간격의 변화⁸⁾, 일방향응고 후의 층상조직에 대한 연구^{9,10)} 등, 일방향 응고시에 일어나는 제반사항에 대하여 이론 및 실험적인 접근

을 통하여 집중적인 연구가 행하여져 왔다. 그러나 일반적으로 층상 간격이 미세하고 결함이 없는 공정조직이 가장 기계적 성질이 우수하다는 사실은 많은 연구를 통하여 잘 알려진 사실이지만 대부분 성장조건과 불순물 유무에 따른 연구에만 의존하여 층상 간격을 조절하는 연구가 진행되어 왔다. 또한 조직 미세화에 대한 연구로 Ingot(주괴)나 Casting을 응고하는 동안 조직을 조절하는 type으로 과열이나 진동 또는 교반 또는 초음파 진동 방식에 대한 방법들은 많은 조사의 주제로 되어 왔으나 Al-CuAl₂ 공정합금을 일방향응고 시켰을때 층상 간격을 위와 같은 방법 중 진동에 의하여 조직을 더욱 미세화 시키는 연구

는 거의 진행되지 않은 실정이다.

이와같은 이유는 Al-CuAl₂ 공정 복합재료에 있어서 일방향응고시 고-액 계면의 교란(Perturbation)이 문제 된다는 추측과 예언 때문이었다. Cline¹¹⁾은 층상 조직이 성장할때 고상/액상의 계면에 Sin과 형태의 교란이 생길 경우에 층상 간격에 비하여 비교적 작은 파장에 의해 형성되는 교란은 고상/액상의 평활한 계면을 파괴시킬 수 없고 비교적 큰 파장을 갖는 고상/액상 계면의 교란만이 고상/액상의 평활한 계면을 파괴시켜 수직상 조직을 형성할 수 있으며 고상/액상 계면이 교란될 경우에도 층상 간격은 변화되지 않는다고 가정하였으며, Hurle과 Jakeman¹²⁾은 작은 파장에 의한 교란에 의하여서도 평활한 고상/액상 계면이 파괴될 수 있다고 하였으나 실험적으로 이를 증명하거나 확인할 수 있는 문헌은 거의 없는 실정이다.

따라서 본 연구에서는 앞선 연구^{13,14)}를 통하여 진동하에서 일방향응고 시켰을 때 G/R (G : 온도구배, R : 성장속도)값의 변화와 진동수 변화에 따른 미세조직의 변화 양상에 대해서 검토하였다.

2. 실험 방법

2-1. 시료제작

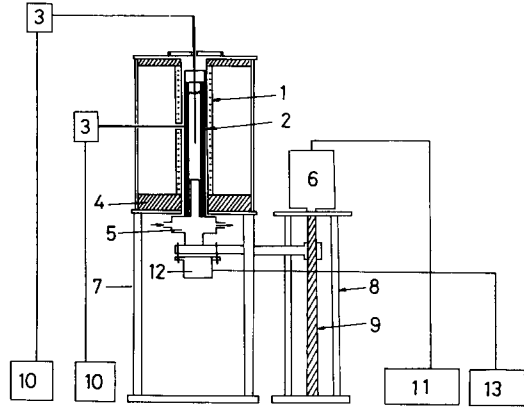
99.99% Al과 99.99% Cu를 Al-33wt.%Cu 조성이 되도록 평량하여 고주파진공 용해로에서 고순도 흑연 도가니를 사용하여 10⁻²Torr 이하의 진공에서 용해하였다. 그리고 성분 금속의 증발손실을 방지하기 위하여 Ar 개스를 1/2 기압이 될 때 까지 주입하였다. 완전히 용해한 다음 약 5분간 유지후 미리 예열된 주철 주형에 주입하여 45×45×130mm의 잉곳트를 얻었다.

이 잉곳트를 다시 지름이 12.5mm, 길이가 120mm인 봉으로 가공하였다.

2-2. 일방향 응고

본 실험에 사용된 진동하에서 일방향 응고 시킨 장치를 Fig. 1에 나타냈다. 이 때 사용된 로는 Kanthal 선에 의해서 가열되는 관상로였고 로내에 Pt-13%Rh 열전대를 부착하여 일방향 응고 시키는 동안 로내 온도를 850℃와 900℃로 일정하게 유지하였다.

일방향응고 시킬때 시료가 담겨진 관은 내



- | | |
|-------------------------|----------------------------|
| 1. Furnace | 8. Shaft Support |
| 2. Alumina Tube | 9. Shaft |
| 3. Thermocouple(R type) | 10. Temperature Controller |
| 4. Insulating Material | 11. RPM Controller |
| 5. Copper Chill | 12. Vibrator |
| 6. D.C. Step Motor | 13. Frequency Controller |
| 7. Furnace Support | |

Fig. 1. Experimental apparatus for unidirectional solidification.

경 13mm, 길이 150mm인 알루미늄 관을 사용하였으며 이 관속에 지름이 12.5mm, 길이가 120mm인 시료를 장입하여 로 안에서 재용해 시킨후 온도균일성을 위해 1시간 동안 유지시켰다.

그 후 D.C Step motor와 RPM Controller로 구성된 시료 강하장치에 의해 시료를 일정한 속도로 하강하는 순간 진동자를 작동시키면서 일방향응고 시켰다. 이 때 응고속도는 2cm/hr, 4cm/hr, 10cm/hr로 변화시켰다.

2-3. 진동장치

실험에 사용된 진동수 변화는 60Hz, 100Hz, 150Hz로 하였으며 진동의 증폭은 주파수 변환기에 의해서 조절하였으며, 파형(Wave Form)과 진동수 측정은 Optical Oscilloscope에 의해서 조사하였으며 진동의 파형은 Photo. 1에 나타냈다. 진동자는 주파수의 진동이 최대에너지로 고-액 계면에 연속적으로 유지하기 위하여 구리로 만들어진 냉각수 Chill 밑에 직접 접촉하여 진동시켰다.

그리고 액체보다 고체쪽에 진동에 주는 것은 고-액 계면 영역에 보다 가까운 곳에 전달

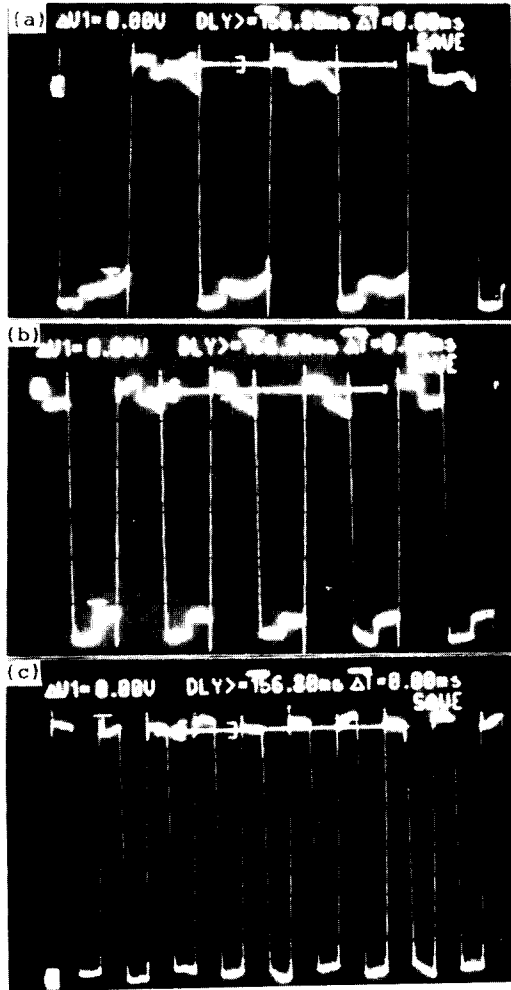


Photo 1. Wave-form of Vibration with frequency Variation

(a) 60HZ (b) 100HZ (c) 150HZ

되는 것이 훨씬 더 많은 효과를 주기 때문이다.

2-4. 조직관찰

조직관찰을 위해 시편을 응고 방향(Longitudinal Direction)과 그 수직 방향(Transverse Direction)으로 절단하여 연마한 후 20% HNO₃ 용액으로 약 20초간 부식시켜 주사전자현미경(SEM)과 광학 현미경으로 관찰하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3-1 G/R값과 진동변화에 따른 미세조직

진동하에서 행한 액상내의 온도 구배를 알

기 위하여 시편에 잠입 된 열전대가 일방향 이동된 거리와 온도와의 관계를 Fig. 2에 나타냈으며 이때 로내 온도를 850°C로 유지시

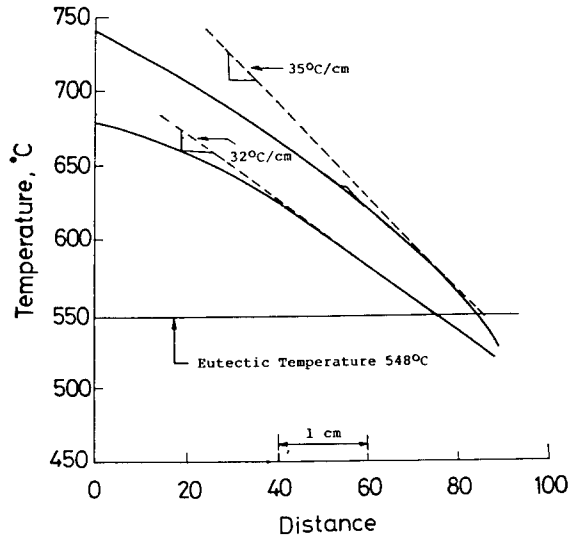


Fig. 2. Typical plot of temperature data from Experimental run.

켰을 때 액상의 온도는 680°C로 32°C/cm의 온도구배를 얻었으며 900°C로 유지시켰을 때는 740°C로 35°C/cm의 온도 구배를 얻었다.

진동을 주지 않을 때보다 진동을 줄때가 액상내의 온도분포가 보다 균일하게 고온으로 유지되면서 고-액 계면 앞에서는 온도강하가 일어남을 알 수 있다. 응고시 진동은 각기 똑같이 100Hz로 주었다. 온도 구배를 32°C/cm, 35°C/cm로 하고 진동수 변화를 60Hz, 100Hz, 150Hz로 한 각 경우에 응고 속도를 2cm/hr, 4cm/hr, 10cm/hr로 했을때 응고 조건의 변화를 Table. 1에 표시하였다. 금속의 응고에 있어서 응고속도는 그 금속의 물리적 성질 및

Table 1. Summary of Growth Conditions.

G(°C/cm)	R(cm/sec)	G/R(°C · sec/cm ²)
32°C/cm	5.56×10^{-4}	5.75×10^4
	1.11×10^{-3}	2.88×10^4
	2.78×10^{-3}	1.15×10^4
35°C/cm	5.56×10^{-4}	6.29×10^4
	1.11×10^{-3}	3.15×10^4
	2.78×10^{-3}	1.25×10^4

응고시액상과 고상의 온도구배에 의존하므로 본 실험에서 사용한 응고 속도가 정확했는지를 알아보기 위해서 고-액 계면에서의 열평형식을 활용하여 해석할 수 있다.

$$K_s G_s - K_l G_l = P_s H_f R \dots\dots\dots(1)$$

여기서,

R : 결정성장 속도(cm/hr)

H_f : 용해열(cal/g)

K_s : 고상금속의 열전도도(cal/cm C.sec)

K_l : 액상금속의 열전도도(cal/cm C.sec)

G_s : 고-액 계면에서의 고상의 온도 구배 (°C/cm)

G_l : 고-액 계면에서의 액상의 온도구배(°C/cm)

의 관계식에서 K_s, K_l, P_s, H_f는 금속에 따라 일정하게 정해지므로 응고속도 R은 K_s G_s-K_l

G_l에 비례한다. 따라서 평면 계면에 유리한 응고조건을 만들려면 G_l은 큰 양의 값을 갖는 동시에 G_s도 커져야 한다.

본 실험에서 온도구배의 증가로 G_s가 커질 뿐만 아니라 액체유동에 의한 열분배도 G_l 또한 큰 양의 값을 갖게되어 건전한 평면조직을 얻을 수 있게 될 것이다.

이 때 장치 특성상 Copper Chill과의 거리에 따라 온도구배가 달라지므로 미세조직 관찰은 Chill Zone 위 2cm와 응고된 끝 부분에서 2cm를 잘라낸 시편의 중앙부를 절단한 부분의 조직을 취하여 관찰하였다.

Photo. 1,2,3은 온도구배가 32°C/cm였을 때 진동수 변화와 응고조건에 따른 공정합금의 횡단면 조직을 주사전자 현미경에 의하여 촬영한 것이다.

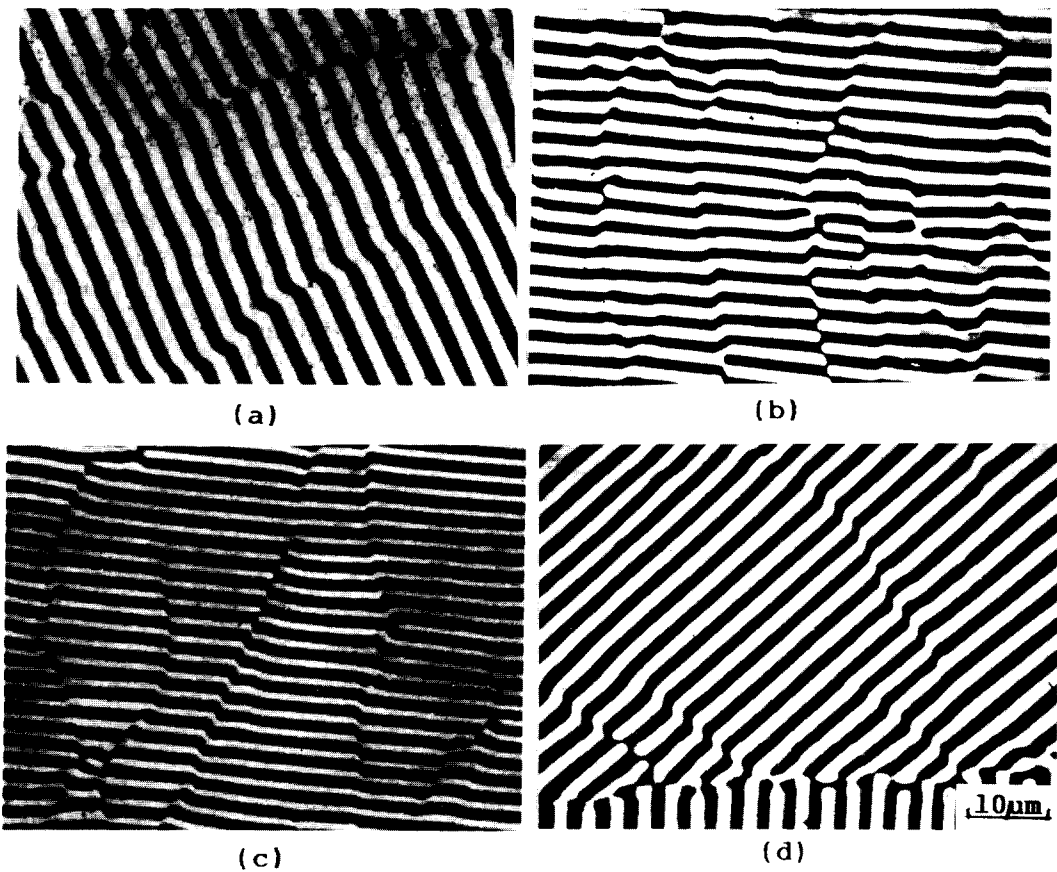


Photo 2. Microstructures of unidirectionally Solidified with Vibration Variation.(G=32°C/cm, R=2cm/hr, Transverse) ×750

(a) as-grown (b) 60HZ (c) 100HZ (d) 150HZ

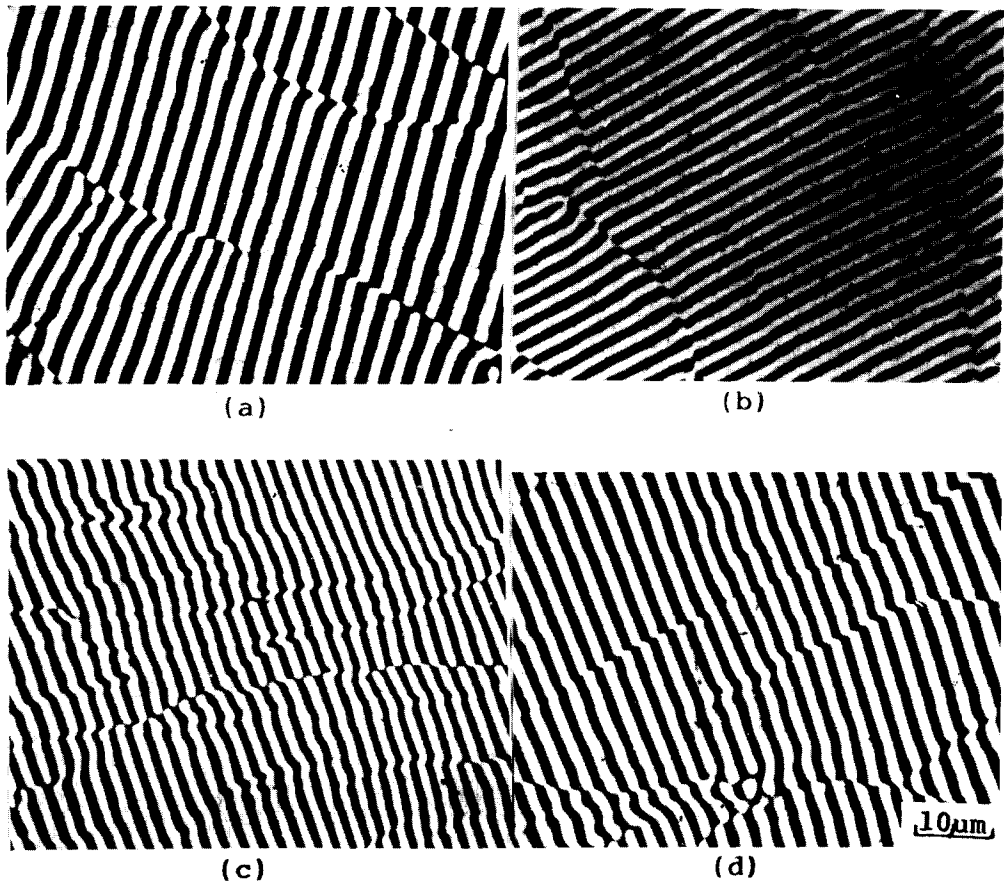


Photo 3. Microstructures of unidirectionally Solidified with Vibration Variation. ($G=32^{\circ}\text{C}/\text{cm}$, $R=4\text{cm}/\text{hr}$, Transverse) $\times 750$

(a) as-grown (b) 60HZ (c) 100HZ (d) 150HZ

사진에서 본 바와 같이 As-grown 상태에서 보다 진동수 증가와 응고속도증가에 따라 Interlamellar Spacing이 점점 미세해졌음을 볼 수 있다. 또한 잘 정렬된 층상 조직이 성장하였으며, Photo. 4는 $G/R=11.5 \times 10^{\circ}\text{C}/\text{cm}/\text{sec}$ 의 진동증가에 따른 응고조직을 나타낸 것으로 모두 Colony 조직으로 형성되었음을 보여주고 있다. 이와같이 Colony 조직으로 형성된 것을 Chadwick⁽⁵⁾은 불순물에 의해 형성된다고 하였으나 Hunt와 Chilton⁽⁶⁾은 불순물은 오직 간접적인 영향을 줄 뿐 고-액 계면에서 성장방향의 차에 의하여 형성된다고 하였다. 또한 R.W.Kraft와 D.L.Albright⁽⁷⁾는 진동으로 인하여 시편의 성장에 따라 불순물이 액상을 따라 상부에 모이게 되어 조성적 과냉에 의한 평면계면 대신 세포상계면(Cellular Interface)을 형성하는 까닭이라고 하였다. 따라서 본

실험에서도 응고되는 과정에서 진동에 의해 고상/액상의 분배계수에 따라 불순물이 액상으로 배출되기 때문에 고-액계면에 접한 액상에서 용질의 농도가 증가함에 따라 평활한 계면이 불안정하게 되어 세포상계면이 형성되고 이로 인해 Colony 조직으로 형성된 것으로 사려된다. 또한 냉각부의 진동으로 인해 보다 많은 핵이 생성되고 이로 인해 입자들도 많아져 고-액 계면에서의 성장방향도 큰 차이를 보여 Colony 생성의 한 원인이 될 것이다. 또한 이 Colony 조직의 형성에 관하여 Davis는 응고속도가 클 때 즉, G/R 값이 작아지면 미세한 세포를 형성하는 Colony 조직으로 된다고 보고 하였다. 이것은 다시 말하면 응고속도가 빠를때에는 용질원자의 확산속도가 정출상의 성장속도에 비해 느려서 충분히 확산되지 못하고 새로운 핵으로 되기 때문에 Colony

조직으로 된다고 생각된다.

따라서 Colony 중앙부의 미세한 용질분포는 Colony 입계의 영향을 받지 않으므로 Col-

ony 조직 내부에서 형성되는 층상조직에 대해서도 Jackson과 Hunt가 구한 평활한 고-액 계면에 대한 확산식을 그대로 적용할 수가 있

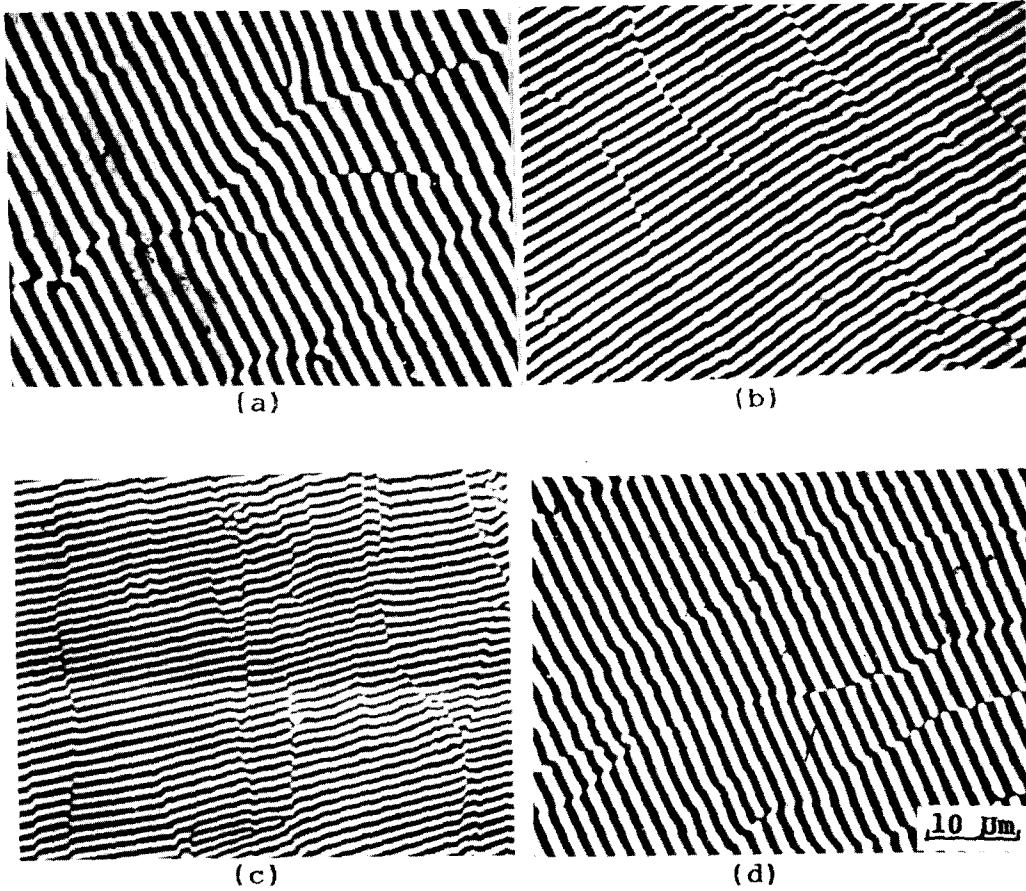


Photo. 4. Microstructures of unidirectionally Solidified with Vibration Variation. ($G=32^{\circ}\text{C}/\text{cm}$, $R=10\text{cm}/\text{hr}$, Transverse) $\times 750$ (a) as-grwon (b) 60HZ (c) 100HZ (d) 150HZ

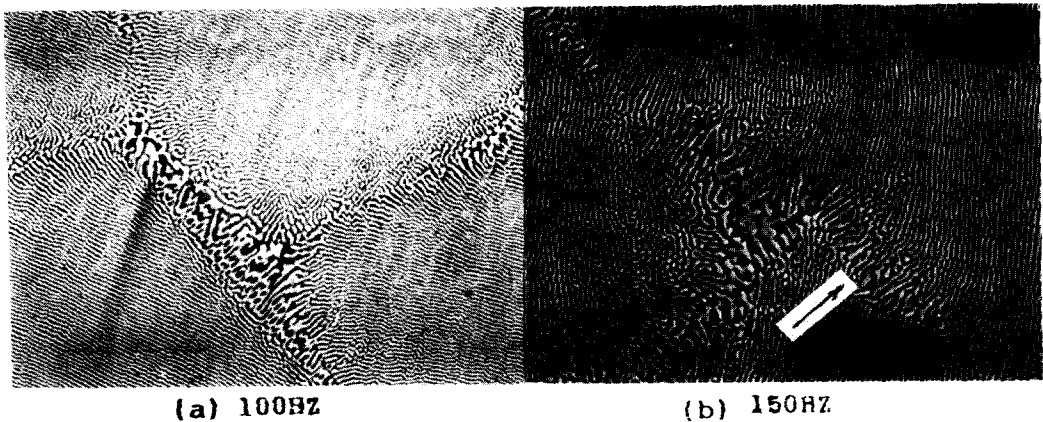
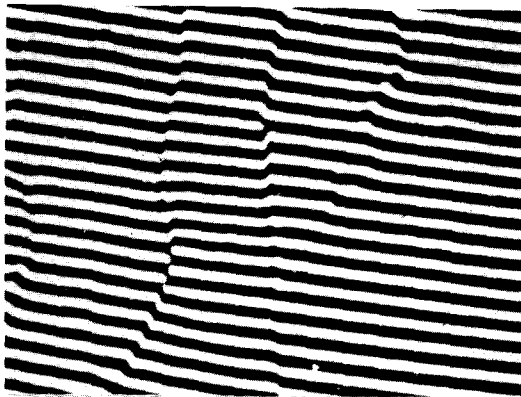
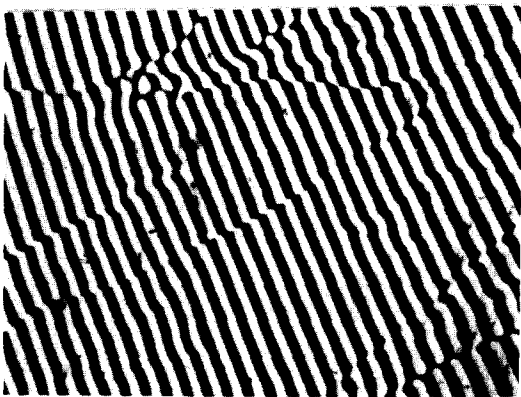


Photo. 5. Microstructures of unidirectionally Solidified with Vibration Variation. ($G=32^{\circ}\text{C}/\text{cm}$, $R=10\text{cm}/\text{hr}$, Transverse) $\times 350$

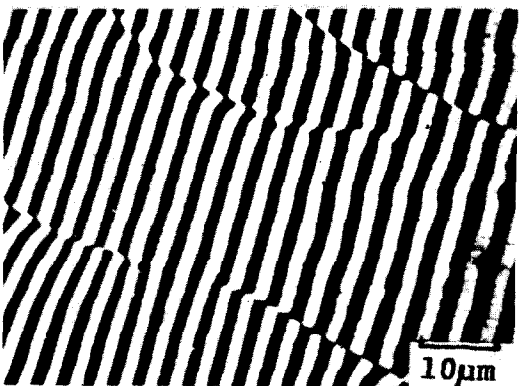
고 이에 따라 그들이 구한 $\lambda^2R = \text{constant}$ 가 Colony조직 중앙부의 공정조직에도 적용됨을 알 수 있었다. 그러므로 초미세한 규칙적인 조직을 얻으려면 세포상(Celluar)조직을 얻는



(a) 60HZ

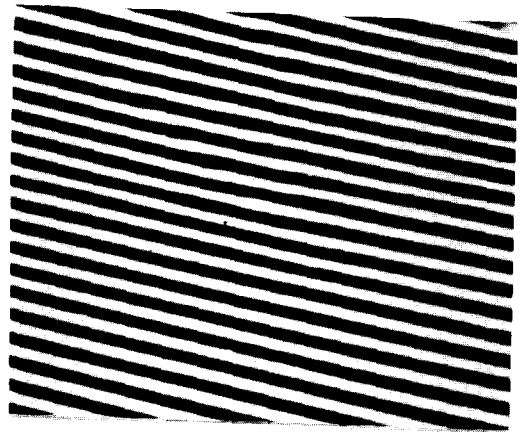


(b) 100HZ

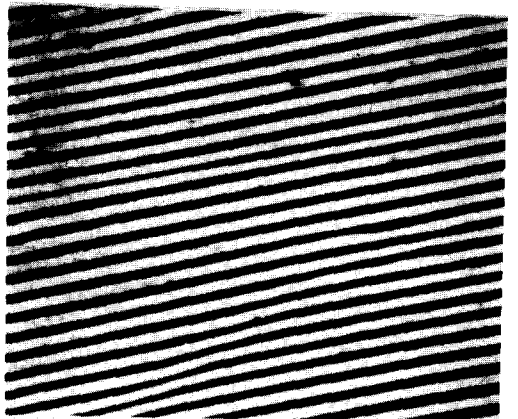


(c) 150HZ

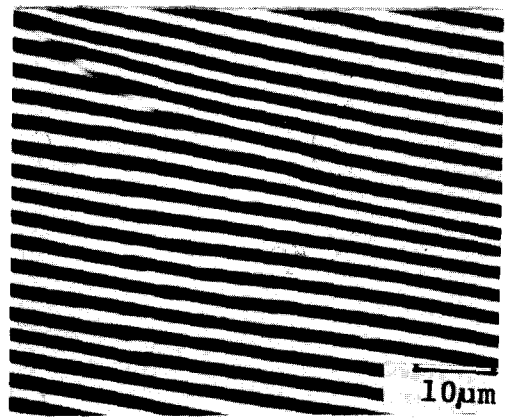
Photo. 6. Microstructures of unidirectionally Solidified with Vibration Variation. ($G=35^\circ\text{C}/\text{cm}$, $R=2\text{cm}/\text{hr}$, Transverse) $\times 750$



(a) 60HZ



(b) 100HZ



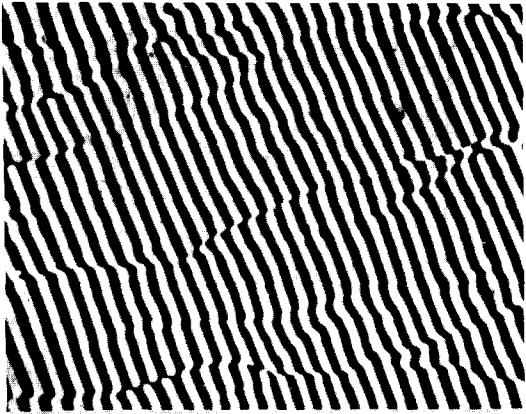
(c) 150HZ

Photo 7. Microstructures of unidirectionally Solidified with Vibration Variation. ($G=35^\circ\text{C}/\text{cm}$, $R=2\text{cm}/\text{hr}$, longitudinal) $\times 750$

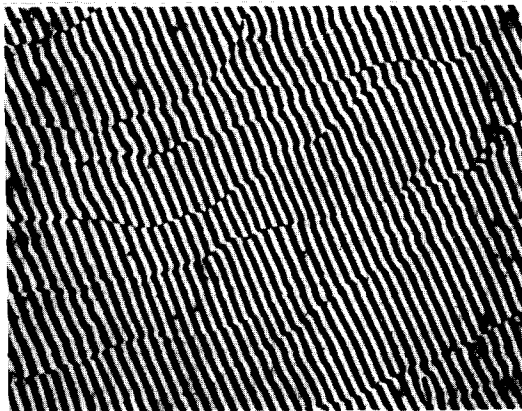
것이 바람직하다고 생각된다.

또한 Photo. 5에 화살표로 표시한 것은 성

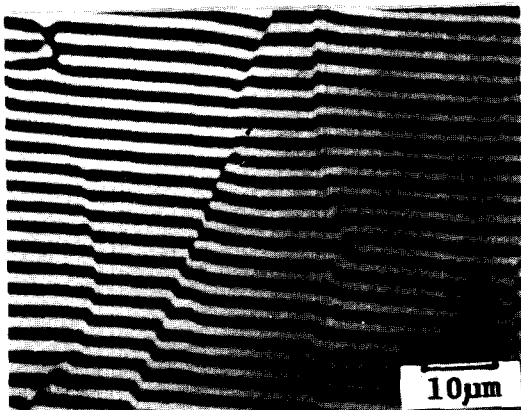
장유도경계(Growth Induced Boundary)를 나타내는 것으로 입계와 쉽게 구별되지 않지만 여기에서 층상의 붕괴가 시작한 모양을 나타



(a) 60HZ

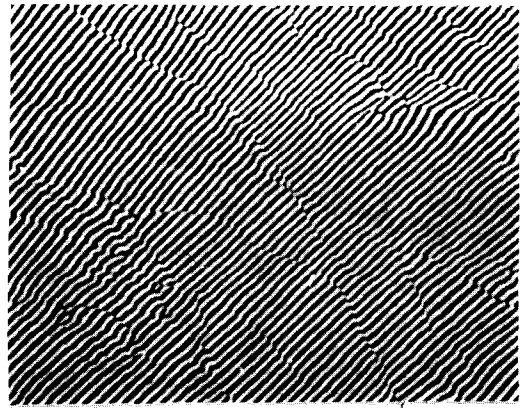


(b) 100HZ

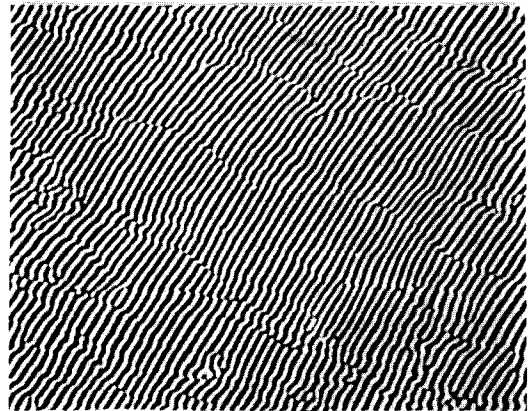


(c) 150HZ

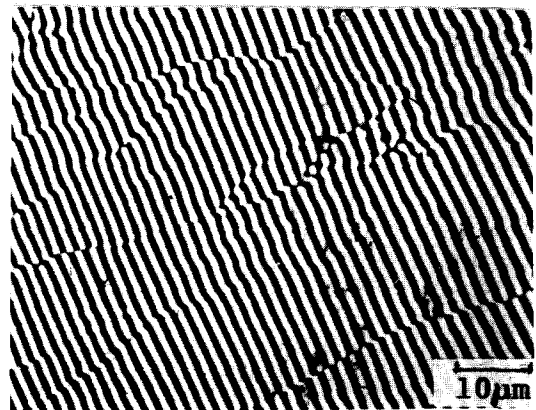
Photo. 8. Microstructures of unidirectionally Solidified with Vibration Variation. ($G=35^{\circ}\text{C}/\text{cm}$, $R=4\text{cm}/\text{hr}$, Transverse) $\times 750$



(a) 60HZ



(b) 100HZ



(c) 150HZ

Photo. 9. Microstructures of unidirectionally Solidified with Vibration Variation. ($G=35^{\circ}\text{C}/\text{cm}$, $R=4\text{cm}/\text{hr}$, Transverse) $\times 750$

내고 있으며 다른 부분에서는 평행한 층상이 그대로 존재하고 있으나 3개의 경계가 교차하는 교점(Node)부에서 붕괴가 시작되어 경

계를 따라 층상의 붕괴가 시작되어 경계를 따라 층상의 붕괴가 일어나고 있다는 것을 알 수 있다. 이들 붕괴가 일어나는 원인에 대해서 연구가 진행됐지만 Gruzleski와 Winegard¹⁶⁾는 성장유도경계는 많은 소형 결함선들이 층상면에 평행으로 이동하여 비교적 안정된 큰 결함선을 이루어 형성된 것이라 하였다. 진동하에서 응고시킨 본 실험하에서도 그들의 제안과 같이 입자내의 도처에 많은 결함선들이 하부조직과 같은 형태를 이루고 있는 사실로 보아 그들이 제안한 이론과 유사하였다.

Photo. 6,7,8,9는 온도구배가 35°C/cm였을 때 진동수 변화와 응고조건에 따른 공정합금의 조직 차이를 보여주는 것이다. 성장된 층상조직이 잘 정렬되었으며 온도구배가 32°C/cm였을 때 보다 층상간격이 더욱 미세해 졌음을 알 수 있다.

Photo. 2~4와 Photo. 6~9에서 본 바와 같이 공히 150Hz에서는 As-grown 상태 보다는 미세하나 60Hz, 100Hz보다는 조대화 되었음을 알 수 있었다. 이것은 진동이 증가함에 따라 액체유동도 비례하여 증가하지만 진폭이 증가하지 않는 상태에서 어느 일정한 주파수 값 이상의 진동의 증가는 액체의 점성과 액체와 도가니벽의 마찰, 또 고-액 계면에서의 유동저항등의 증대에 의해 반드시 액체유동의 증가를 기대하지는 못할 것으로 사료된다.

따라서 본 실험에서도 100Hz까지의 주파수 증가는 작은 파장 형성으로 진동의 효과가 거의 없어 액상유동을 증가시키나, 그 이상 즉 150Hz로의 주파수 증가는 작은 파장의 형성으로 진동의 효과가 거의 없어 오히려 액상유동을 감소시켜 조직의 미세화에는 기여하지 못한 것으로 사료된다.

4. 결 론

Al-CuAl₂ 공정복합재료의 미세조직에 미치는 응고조건과 진동의 영향에 대해서 조사하였다. 진동변화와 성장속도(R) 변화에 따라 일방향응고 시켰을 때 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 진동하에서 일방향응고 시켰을 때 온도구배는 32°C/cm와 35°C/cm를 얻었으며, G=32°C/cm인 경우에 진동수 증가와 더불어 응고속도가 빠른 경우에는 Colony조직이 형성

됐으나 G=35°C/cm인 경우는 완전 층상조직이 형성되었다.

2. 층상간격은 응고속도가 증가하고 진동수가 증가하므로써, As-grown 상태보다 감소하여 더욱 미세한 조직을 얻었으며, 층상간격(λ)은 " $\lambda^2 \cdot R = 상수$ "라는 관계식에 비교적 잘 일치하였다.

3. 조직미세화는 진동의 영향도 컸지만 G/R의 영향이 더 크다는 것을 알 수 있었다.

4. 진동의 영향으로 층상간격이 더욱 미세화 되었으나, 진동수가 어떤 일정량을 초과하면 그 효과가 줄어 조직은 다시 조대화의 경향을 보였다.

5. 응고시 외부에서의 기계적 진동은 핵생성에 유리하게 작용할 뿐만 아니라 액상에 자연대류 이외의 강제유동을 부과 고-액 계면에서 큰 온도구배를 얻을 수 있었으며, 용질의 분배도 촉진시켜 계면 앞에 쌓이는 용질양을 감소시켜 주었다.

후 기

본 연구는 1991년도 조선대학교 학술연구비의 지원에 의하여 이루어 졌으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. W.W. Mullins and R.F. Sekerka : J. Apple. Phys., 35(1964), 444.
2. H.E. Cline and J.D. Livingston : Trans. AIME, 245(1969), 1987.
3. H.E. Cline : Trans. AIME, 242(1968), 1613.
4. H.E. Cline : J. Apple. Phys., 50(1979), 4780.
5. S.M.D. Borland and R. Elliot : Met. Trans., 9A(1978), 1063.
6. D.D. Double : Mater. Sci. Eng., 11(1973), 325.
7. Jin Junje, K.F. Kobayashi and P.H. Shingu : Met. Trans., 15A(1984), 307.
8. J.D. Livingston, H.E. Cline, E.F. Koch and R.R. Russel : Acta Metall., 18(1970), 399.
9. M.J. Salkind, F.D. George, F.D. Lemkey, B.J. Bayles and J.A. Ford : Chem. Eng. Prog., 62(1966), 52.

10. P.K. Rohatgi and C.M. Adams, Jr : Trans. AIME, 245(1969), 1609.
11. H.E. Cline : J. Appl. Phys., 50(1979), 4780.
12. D.T.J. Hurle and E. Jakeman : J. Cryst. Growth, 3, 4(1968), 574.
13. 이현규, 김영주, 홍영환, 홍종휘 : Al-CuAl₂ 공정복합재료의 고온거동에 관한 연구 : 대한 금속 학회지, Vol.26, No.7, 1988, 670-679.
14. 이현규, 이주홍, 홍종휘 : Al-CuAl₂ 공정 복합재료의 기계적 성질에 미치는 응고조건과 열처리의 영향 : 한국 주조 공학회지, Vol.10, No.4, 1990, 332-341.
15. G.A. Chadwick : J. Inst. Metals 91(1962~63), 298.
16. J.D Hunt and J.P. Chilton : J. Inst. Metals, 191(1962~63)
17. H.W. Weart and D.J. Mack : Trans. TMS-AIME, (1958), 664.
18. J.E. Gruzleski and W.C. Wineghard : Trans. Met. Soc. AIME, 242(1968), 1785.