

선단과냉을 고려한 이원합금의 주상 수지상응고 모델

유 호 선*

(1997년 11월 28일 접수)

A Model for Columnar-Dendritic Solidification of Binary Alloys Accounting for Dendrite Tip Undercooling

Hoseon Yoo

Key Words : Columnar-Dendritic Solidification(주상 수지상응고), Binary Alloy(이원합금), Tip Undercooling(선단과냉), Eutectic Fraction(공정분율)

Abstract

A simplified model for predicting microsegregation during columnar-dendritic solidification of binary alloys is developed, in which back diffusion, dendrite arm coarsening and dendrite tip undercooling are simultaneously incorporated. The inclusion of tip undercooling is accomplished by modifying the initial conditions of the existing solute diffusion model, in such forms that tip undercooling depresses the beginning of solidification below the liquidus temperature, and that the secondary arm spacing evolves in accordance with the minimum undercooling theory. Sample calculations for the well-known benchmark system show that the present predictions not only consist with the established limiting cases, but also agree favorably with the available experimental data within a reasonable tolerance. In particular, a typical decreasing trend in the eutectic fraction at high cooling rates is successfully resolved. Comparison of the individual and combined effects of characteristic parameters in reference with the limiting cases reveals the interactions among parameters. Every parameter plays the role of reducing the eutectic fraction, and the degree of influence depends primarily on the cooling rate. Coarsening enhances the effect of tip undercooling, while suppressing that of back diffusion. A vigorous back diffusion seems to restrain the appearance of the undercooling effect. Overall, each contribution of the three parameters to microsegregation is estimated to be of the same order, which suffices to justify the present study.

기 호 설 명

C : 농도
 \bar{C} : 평균농도
 D : 물질확산계수
 f : 질량분율
 G : 온도구배

g : 체적분율
 h_{fv} : 단위체적당 용해잠열
 k_p : 평형분배계수
 m : 액상선의 대표기울기
 R : 냉각속도
 r : 반경
 s : 미시적 상경계면의 위치
 T : 온도

*회원, 숭실대학교 기계공학과

- ΔT : 온도차
- t : 시간
- U : 결정성장속도
- X : 확장영역의 크기
- x : 좌표
- Γ : Gibbs-Thomson계수
- γ : 단위면적당 표면에너지
- λ_1 : 1차 수지상 가지간격
- λ_2 : 2차 수지상 가지간격
- ρ : 밀도

상첨자

- Al : 알루미늄
- Cu : 구리
- S : Scheil한계
- sl : 용질
- sv : 용매

하첨자

- 0 : 초기조건
- eut : 공정
- f : 수지상응고 종료상태
- i : 응고시작상태
- k : 고액상을 대포
- L : 액상선
- l : 액상
- s : 고상
- si : 미시적 상경계면
- t : 수지상 선단

1. 서 론

합금의 응고미세조직은 수지상정 및 공정으로 대별될 수 있다. 이중 수지상정은 광범위한 초기농도 및 냉각조건의 범위에 걸쳐 생성되는 단상 초정조직의 가장 기본적인 형태이다. 수지상응고시 결정구조 내에는 고액상의 용해도차이로 인하여 용질재분배가 일어나며, 그 결과인 편석은 합금재료의 기계적 성질과 직결된다.⁽¹⁾ 거시적인 용질의 이동이 없을 때 용질재분배에 영향을 미치는 주인자는 고상내부의 역확산, 수지상 가지의 조대화, 과냉 등으로서 냉각속도가 크지 않은 조건에 대해서는 역확산과 조대화만이 고려된 해석모델로도 미시편석을 비교적 잘 예측한다.^(2,3) 그러나 급냉조건에서

이러한 모델에 의한 예측치와 실험치사이에는 현저한 차이가 있으며 그 원인은 과냉이라는 사실이 알려져 있다.^(4,4~7)

과냉이 포함된 용질재분배 모델의 개발에 있어서 초기의 연구는 주로 해석적 방법에 의존하였다. 대표적으로 Sarreal과 Abbaschian⁽⁴⁾은 과냉과 역확산의 효과를 단순히 중첩하여 수지상응고 종료시 공정분율에 대한 해석해를 제시하였으며, Giovanola와 Kurz⁽⁵⁾는 경험적인 짜깁기(patching)를 도입하여 미시편석을 예측하였다. 그러나 물리적 근거가 결여된 상기의 해석적 연구로부터 과냉의 정량적인 효과를 규명하기는 곤란하며 정성적인 경향만을 파악할 수 있을 뿐이다. 근래에 발표된 수치적 방법에서도, 과냉과 다른 특성인자가 연계된 정교한 모델을 채용하고 있음에도 불구하고, 다음과 같은 문제점이 발견된다. Voller와 Sundarraj⁽⁶⁾의 연구는 실험치와 비교적 잘 일치하지만 실제 현상과 부합되지 않는 방법으로 접근하였음은 물론 오류가 확인된 선단과냉도를 적용하였으며, Roosz와 Exner⁽⁷⁾는 속도론적 과냉까지 포괄하는 해석모델을 개발하였으나 영향이 현저하다고 알려진 밀도변화를 무시하였고 수치해를 구하는 방법이 비효율적인 단점이 있다. 또한 이 모델들은 공통적으로 편미분방정식의 직접적인 수치해를 추구하였기 때문에 특성길이가 상이한 현상사이의 상호작용을 고려함으로써 방대한 계산량이 요구되는 미시적-거시적 해석의 미시적 요소로서는 부적합하다. 한편 Wang과 Beckermann⁽⁸⁾의 다상모델(multiphase model)은 적절한 단순화를 통하여 수치계산상의 장애를 극복하는데는 성공하였으나 조대화와 연관된 다른 불확실성을 내포하고 있다.⁽⁹⁾

본 연구의 목적은 이원합금의 응고과정에서 가장 보편적으로 나타나는 주상 수지상정을 대상으로 역확산, 조대화 및 과냉을 동시에 포함하면서 미시적-거시적 해석에 적합하도록 단순화된 용질재분배 모델을 개발하는데 있다. 수지상응고시 나타나는 과냉은 발생기구(mechanism)에 따라 열적과냉, 용질과냉, 곡률과냉, 속도론적 과냉, 공정과냉 등이 있으나⁽¹⁾ 본 연구에서는 등축정 성장에 주로 연관된 열적과냉, 국소 고액계면의 비평형을 다룬 속도론적 과냉 및 모델의 개발이 불완전한 상태인 공정과냉은 제외하고 용질과냉과 곡률과냉만을 포함하는 선단과냉에 초점을 맞추었다. 이는 강제적 성장(constrained growth)시 전술한 미시편석의 냉각

속도 의존성은 사실상 선단과냉에 기인하기 때문이다.^(1,4,8) 또한 속도론적 과냉은 냉각속도가 극히 큰 경우에 국한되며⁽⁸⁾ 공정과냉은 선단과냉과 서로 독립적이므로 필요시 해석에 고려하기가 비교적 용이하다.^(6,7) 개발된 해석모델을 물성치 및 실험자료가 잘 알려진 Al-Cu합금의 방향성응고⁽⁴⁾에 적용하여 구체적인 계산을 수행하고 결과를 비교 고찰하기로 한다.

2. 용질확산 모델

수지상응고중 고액상사이 용해도의 비(분배계수)를 변화시키는 속도론적 과냉이나 공정온도를 강하시키는 공정과냉과는 달리 선단과냉의 효과는 후술되듯이 응고시작 상태에 국한되어 나타난다. 즉 선단과냉은 고상농도 및 수지상 가지간격의 초기조건에 영향을 미칠 뿐 용질재분배 과정의 본질을 변화시키지는 않는다. 따라서 본 연구에서는 조대화 및 역확산이 엄밀하게 고려된 용질확산모델을 수정하여 선단과냉을 반영시키는 방법으로 접근한다. 조대화하는 주상 수지상구조 내에 유한한 역확산이 존재할 때 용질확산을 취급하는 해석모델의 접근방법 및 특징에 관해서는 이미 구체적으로 보고된 바 있으므로⁽⁹⁾ 여기서는 본 연구에서 사용될 2상 확장영역 모델(two-phase expanding domain model)에 관하여 간단히 기술한다. 이 모델은 용질확산에 대한 편미분방정식의 직접적인 수치해 대신 적절한 근사화를 통하여 물리적 의미가 자명하고 해를 구하기 용이한 상미분방정식을 지향하며, 합금응고의 타당한 예측을 위한 미시적-거시적 해석의 미시적 요소의 하나로서 제시되었다.

평균적인 의미에서 Fig. 1(a)와 같은 거시적 검사체적의 응고특성은 2차 수지상 가지의 성장으로 대표될 수 있으며,^(2,5,7,9,10) 이 미시적 체적요소를 확대한 Fig. 1(b)에서 고상에 대한 적분형 용질보존식은

$$\frac{d}{dt}(s\bar{C}_s) = C_{si} \frac{ds}{dt} + D_s \frac{\partial C_s(s, t)}{\partial x} \quad (1)$$

이다.^(1,10) 여기서 2상 확장영역의 크기 X 는 2차 수지상 가지간격 λ_2 의 절반이며, 미시적 상경계면에서의 국소평형에 의해 $C_{si} = k_p C_i$ 이 성립한다. 응고가 1차원 평면적으로 진행된다는 가정 하에서^(2,3,7,8) 유도된 식 (1)은 고상내의 포물선형 농도분

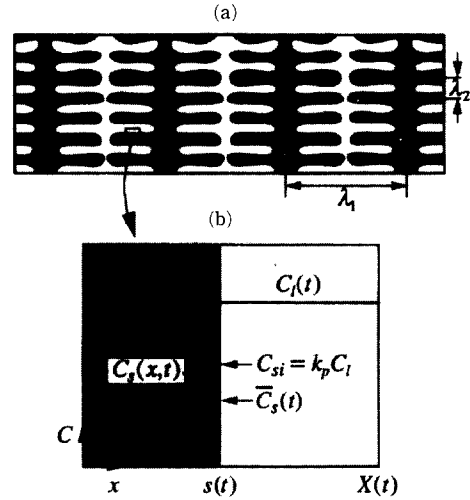


Fig. 1 Schematic of (a) the macroscopic volume element and (b) the microscopic two-phase expanding domain.

포^(6,10)를 도입하면 다음과 같이 정리된다.

$$\frac{d}{dt}(s\bar{C}_s) = C_{si} \frac{ds}{dt} + \frac{3D_s}{s}(C_{si} - \bar{C}_s) \quad (2)$$

고상체적분율의 정의 $g_s = s/X$ 를 이용하여 식 (2)를 보다 편리한 형태로 변환하면

$$\frac{d\bar{C}_s}{dt} = \left[\frac{1}{g_s} \frac{dg_s}{dt} + \frac{3D_s}{g_s^2 X^2} + \left(\frac{1}{X} \frac{dX}{dt} \right) \right] (C_{si} - \bar{C}_s) \quad (3)$$

이다. 식 (3)은 고상평균농도의 변화에 대한 고상분율, 역확산 및 조대화의 기여를 명시적으로 표현하며, 특히 조대화(dX/dt)는 역확산(D_s)과 무관하게 용질재분배에 영향을 미친다는 것을 보여준다. 이것은 기존의 다상모델⁽⁹⁾에서 역확산이 없을 때($D_s=0$) 조대화가 무시된 공식화 과정의 문제점이 해결되었음을 의미한다.

온도 T 와 상평형관계에 의한 액상농도 C_l 및 영역의 크기 X 가 주어졌을 때 고상체적분율 g_s 및 고상평균농도 \bar{C}_s 는 식 (3)과 Fig. 1(b)의 체적요소 전체에 걸친 용질보존식

$$\frac{d}{dt}(\rho_s g_s \bar{C}_s) + \frac{d}{dt}(\rho_l g_l C_l) = 0 \quad (4)$$

으로부터 결정된다. 여기서 식 (4)는 액상농도가 균일하며 거시적인 용질이동이 없는 조건에서 성립한다. 식 (3)과 (4)에 대한 초기조건은 과냉이 없는 경우

$$g_s=0, \bar{C}_s=C_{si}; C_l=C_0 \text{ at } t=0 \quad (5)$$

이지만, 과냉이 있는 경우 과냉모델 및 이에 대응하는 조대화모델에 따라 별도로 부여되어야 한다. 밀도변화의 효과는 무시될 수 없다는 사실이 알려져 있으므로, ^(3,6) 본 연구에서는 용질재분배 해석에 널리 적용되어온 ^(2,3,9) 농도의존 밀도모델

$$\rho = \rho^{sl} \rho^{sv} / [(1-C) \rho^{sl} + C \rho^{sv}] \quad (6)$$

을 채용하였다. 밀도변화시 체적분율과 질량분율의 관계는 다음과 같다.

$$f_k = \rho_k g_k / (\rho_s g_s + \rho_l g_l) \quad (k=s, l) \quad (7)$$

3. 선단과냉 모델

수지상응고시 선단과냉은 Fig. 2의 상평형선도에 개략적으로 도시된 바와 같이 응고시작 온도를 초기농도 C_0 에 대응하는 액상선온도 T_L 보다 강하시키는 역할을 한다. 과냉된 상태 T_i 에서 응고가 시작되면 순간적으로 고상분율은 급증하며 이때 고상평균농도는 과냉되지 않고 T_L 에서 T_i 까지 응고된 경우보다 훨씬 높게 된다. ^(4,8) 이후 냉각이 계속됨에 따라 연확산 및 조대화를 수반하면서 수지상 성장이 진행되므로 과냉이 없는 경우와 비교하여 응고된 고상평균농도는 높고, 수지상응고 종료시 미응고된 액상분율 즉 공적분율은 현저하게 감소한다. 따라서 용질재분배에 있어서 과냉과 연관된 관심사는 주어진 냉각조건 또는 결정성장조건에 대한 선단과냉도 ΔT_i 를 구하고 응고시작 직후의 수지상 간격, 고상농도 및 고상분율 즉 전술한 용질확산모델의 초기조건을 결정하는 방법이다.

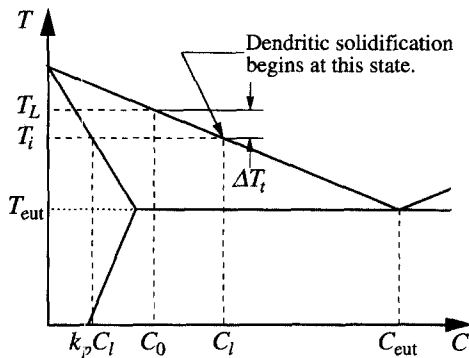


Fig. 2 The effect of dendrite tip undercooling in the phase equilibrium diagram.

응고시작온도와 직결된 선단과냉도는 성장속도 (U)-선단반경 (r_t)의 관계에서 최소과냉(또는 최대 속도) 또는 한계안정성 이론에 의하여 결정될 수 있다. 한계안정성 이론의 경우, 일부 유기혼합물의 수지상응고에 대해서는 실험치를 보다 잘 예측한다고 알려져 있으나, 본 연구와 같이 단순화된 모델에 적용이 용이하며 광범위한 응고조건에 대하여 유효한 해석해가 존재하지 않는다. ⁽¹⁾ 한편 최소과냉 이론의 경우 Burden과 Hunt⁽¹¹⁾가 응고조건에 무관한 선단과냉 모델을 정립한 이후 미시분석의 해석에 널리 적용되어 왔으며^(4,6) 특히 Al-Cu합금에 대해서는 실험과 양호하게 일치하지만 근래 이 모델의 개발과정에 내포된 오류가 발견되었다. ⁽¹²⁾ 본 연구는 과냉모델 자체의 개발에 초점을 맞춘 것은 아니기 때문에 적용의 용이성을 고려하여 최소과냉 이론에 의존하였다. 다행히 전술한 오류는 Laxmanan⁽¹³⁾에 의해 표현의 간결함을 유지한 형태로 수정되었다. 주어진 온도구배 G 및 결정성장속도 U 에 대하여 본 연구의 표기에 의한 선단과냉도는

$$\Delta T_i = \frac{D_i G}{U} + \left[\frac{8(k_p - 1)mC_0 U \Gamma}{D_i} \times \left\{ 1 - \frac{k_p D_i G}{(k_p - 1)mUC_0} \right\}^{1/2} \right] \quad (8)$$

로 표현된다. 여기서 D_i , m 및 Γ 는 각각 액상확산계수, 액상선의 대표기울기 및 Gibbs-Thomson 계수이다. 또한 온도구배, 결정성장속도 및 냉각속도사이에는 $R = GU$ 인 관계^(1,4)가 성립한다.

선단과냉도가 결정된 상태에서 수지상 성장과정에 접근하는 기존의 방법중 대표적인 것이 Voller와 Sundarraj의 모델⁽⁶⁾이다. 이들은 마치 과냉이 없는 것처럼 초기농도에 대응하는 액상선온도 T_L 에서 응고와 조대화가 시작된다고 가정하고, 실제 응고시작 온도 $T_i (= T_L - \Delta T_i)$ 까지는 높은 고상확산계수 ($D_s = D_i$)를, 이후는 유한한 D_s 를 적용하는 방법으로 과냉에 의한 고상평균농도의 증가를 반영하였다. 예측치가 실험치와 비교적 양호하게 일치함에도 불구하고, 서론에서 언급하였듯이, 이 모델은 준안정적인(meta stable) 과냉상태로부터 불연속적으로 응고하는 현상을 연속적으로 취급하였으며 물성치를 인위적으로 조정하는 등 상당한 문제를 내포하고 있다. 본 연구에서는 실제 현상에 보다 가깝도록 T_L 에서 T_i 까지는 응고가 일어나지 않

고 T_i 에 도달하면 순간적으로 응고가 시작되는 것으로 간주하였다. 이때 생성되는 고상은 T_i 에 대응하는 균일한 농도를 갖기 때문에 (Fig. 2 참조) 고상분율은 lever rule에 의해 쉽게 결정될 수 있다. 즉 과냉이 있을 때 식 (3)과 (4)의 초기조건은 다음과 같이 수정되어야 한다.

$$g_s = \left(\frac{\rho_0}{\rho_s} \right) \left(\frac{1 - C_0/C_i}{1 - k_p} \right),$$

$$\bar{C}_s = k_p C_i; C_i = C_i(T_i) \text{ at } t=0 \quad (9)$$

또한 수지상 가지간격의 불연속성은 Roosz 등⁽¹⁴⁾의 조대화모델

$$\lambda_s^2 = \lambda_{s,0}^2 + 105 \int_0^t \frac{\gamma D_i T}{m(1-k_p) h_{fv} C_i} dt \quad (10)$$

을 통하여 고려될 수 있다. 여기서 초기치 $\lambda_{s,0}$ 는 온도 T_i 에서 응고시작 직후 수지상 선단반경 r_i 의 2배이며,⁽⁷⁾ 식 (8)의 최소과냉에 대응하는 선단반경은 다음과 같다.⁽¹³⁾

$$r_i = \left[\frac{2\Gamma}{(k_p - 1) m \bar{C}_0 U / D_i - k_p G} \right]^{1/2} \quad (11)$$

결과적으로 선단과냉이 고려된 본 연구의 주상 수지상응고에 대한 해석과정은 다음과 같이 요약된다. 부여된 응고조건 및 식 (8)과 (11)에서 각각 ΔT_i 와 r_i 를 계산한다. 초기농도에 대응하는 T_i 로

부터 T_i 를 구하고 식 (9)로 표현된 응고시작 직후의 상태를 결정한다. 이를 초기조건으로 한 식 (3)과 (4)의 수치해를 얻는다. 여기서 확장영역의 크기는 식 (10)으로 쉽게 결정되나, 밀도는 식 (6)을 이용한 반복계산이 필요하다. 수지상응고는 초기농도에 따라 공정온도 또는 고상선온도에서 종료되며 이때까지 미응고된 액상분율이 공정분율이다.

4. 결과 및 고찰

개발된 해석모델의 타당성을 검증하고 용질재분배에 대한 특성인자의 영향을 고찰하기 위하여 실험결과가 잘 알려진 Al-4.9 mass % Cu합금의 방향성응고⁽⁴⁾에 대하여 계산을 수행하였다. 계산에 사용된 Al-Cu합금의 물성치는 이미 잘 확립되어 있으며^(2-4,6-8,14) 구체적인 값을 Table 1에 정리하였다. 또한 계산대상 실험조건 및 비교를 위하여 환산된⁽⁶⁾ 공정체적분율 g_{eut} 는 Table 2에 요약하였다. 여기서 공정체적분율은 용질재분배의 전과정에 걸친 특성인자의 누적된 영향을 반영하기 때문에 합금응고시 미시편석의 척도로서 널리 사용되어온 의미 있는 물리량이다.^(1-4,6-9,14)

각 특성인자의 효과를 구별하기 위하여 역확산, 조대화 및 선단과냉(각각을 B, C 및 U로 표기)의

Table 1 Thermophysical properties of Al-Cu alloys.

Property	Notation	Unit	Value
Density of aluminum	ρ^{Al}	kgm^{-3}	2558
Density of copper	ρ^{Cu}	kgm^{-3}	7670
Liquid mass diffusivity	D_l	m^2s^{-1}	5.0×10^{-9}
Solid mass diffusivity	D_s	m^2s^{-1}	$0.29 \times 10^{-4} \exp(-15610/T)$
Liquidus line	$C_l(T)$	mass %	$4619.213 - 15.82468 T$ $+ 0.018453 T^2 - 7.2865 \times 10^{-6} T^3$
Solidus line	$C_s(T)$	mass %	$47.1311 - 0.0505141 T$
Representative liquidus slope	m	K mass \%^{-1}	-3.373
Eutectic concentration	C_{eut}	mass %	33.2
Eutectic temperature	T_{eut}	K	821.2
Enthalpy of fusion	h_{fv}	Jm^{-3}	1.07×10^9
Surface energy per unit area	γ	Jm^{-2}	0.093
Gibbs-Thomson coefficient	Γ	mK	1.04×10^{-7}

Table 2 Experimental conditions and results used in the present study.

Exp. No.	Cooling rate, R [K/s]	Growth rate, U [m/s]	Temp. grad., $G \times 10^{-4}$ [K/m]	Eutectic fraction, g_{eut} [vol. %]	Final arm spacing, $\lambda_{2,r}$ [μ m]
1	0.1	0.00001	1.00	5.54	91.0
2	1.05	0.0001	1.05	6.52	46.0
3	11.25	0.0015	0.75	6.84	23.0
4	65	0.005	1.30	7.16	14.0
5	187	0.01	1.87	7.50	10.0
6	1700	0.1	1.70	6.19	5.4

Table 3 Predicted results by the present model.

Exp. No.	ΔT_i [K]	$\lambda_{2,r}$ [μ m]	g_{eut} [vol. %]							
			B+C+U	B+C	B+U	C+U	U	B	C	Scheil limit
1	5.15	91.3	5.23	5.57	6.36	7.29	8.69	6.37	7.61	8.79
2	1.01	43.4	6.42	6.48	7.70	7.55	8.79	7.70	7.61	8.79
3	1.91	19.5	6.92	7.04	8.34	7.50	8.78	8.35	7.61	8.79
4	3.45	10.7	7.06	7.27	8.54	7.40	8.75	8.58	7.61	8.79
5	4.87	7.4	7.07	7.37	8.56	7.31	8.70	8.64	7.61	8.79
6	15.38	3.3	6.42	7.49	8.10	6.53	8.14	8.71	7.61	8.79

가능한 모든 조합에 대하여 공정체적분율을 계산하였으며, 예측된 선단과냉도 및 응고종료시 2차 수지상 가지간격과 함께 Table 3에 수록하였다. 여기서 조대화가 없는 경우의 수지상 가지간격은 실험자료의 응고종료시 2차 수지상 가지간격 $\lambda_{2,r}$ (Table 2의 마지막열)로 취하였다.⁽²⁾

모델의 타당성 검증을 위한 방법의 하나로서 또한 특성인자의 효과 고찰을 위한 기준으로서 잘 알려진 극한을 먼저 고려하였다. 역확산, 조대화 및 선단과냉이 없고 평형분배계수 k_p 가 일정한 (Al-Cu 합금의 경우 0.14) Scheil한계에서는 공정분율이 최대이며 그 값은 응고조건과 무관하게 일정하다.^(1,2,4) 본 연구의 결과는 8.79 % (Table 3의 마지막열)로서 밀도변화가 포함된 Scheil식

$$g_{eut}^S = \left(\frac{\rho_0}{\rho_l} \right) \left(\frac{C_{eut}}{C_0} \right)^{1/(k_p-1)} \quad (12)$$

의 8.70 %를 약간 과대예측하지만 편미분방정식을 정교하게 수치해석한 결과⁽²⁾가 8.66 %임을 감안할 때 비교적 양호하게 일치하는 것으로 판단된다. 또한 조대화만이 있는 확산제한계(diffusion

controlled limit)에서도 응고조건과 무관하게 g_{eut} 는 일정하며 Scheil식보다는 현저하게 작다는 사실이 보고된 바 있다.^(2,15) 이에 대한 예측치인 7.61 % (Table 3의 C열)는 이점을 분명히 반영하고 있으며, Scheil한계와 비교하여 전술한 수치해⁽²⁾ 7.49 %와 차이에 있어서도 일관성을 유지한다. 이러한 고찰로부터 적어도 과냉 및 역확산을 제외했을 때 용질재분배 모델은 타당함을 알 수 있다.

선단과냉이 고려된 경우에 대한 모델의 타당성을 검토하기 위하여 실험치 (Table 2의 제5열),⁽⁴⁾ 기존의 연구중 직접적인 비교한 가능한 Voller와 Sundarraj의 수치해⁽⁶⁾ 및 과냉의 유무에 따른 본 연구의 예측치 2종류 (Table 3의 B+C+U열과 B+C열)를 Fig. 3에 도시하였다. 과냉이 없을 때 예측된 공정분율은 냉각속도의 증가에 따라 단조증가하며 급냉시 g_{eut} 가 감소하는 실험치와는 정성적인 경향조차 판이함을 재확인할 수 있다. 이에 비하여 선단과냉이 고려된 경우 g_{eut} 가 냉각속도의 증가에 따라 증가 후 감소하는 특징적인 거동을 성공적으로 해상하며, 단순화된 모델에 의한 예측임을 감안할 때 실험치와 정량적으로도 합리적인 오차범위

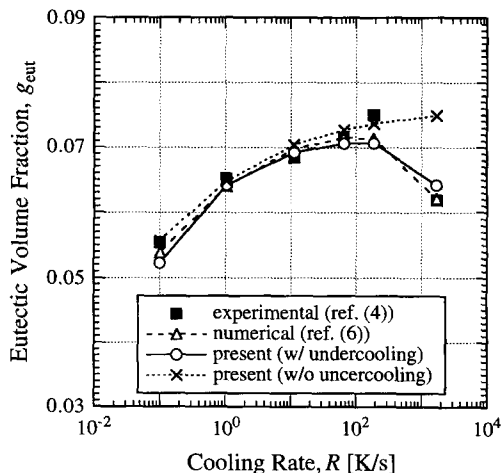


Fig. 3 Comparison of the eutectic fraction between the experimental results, numerical data and present predictions as a function of the cooling rate.

안에서 일치한다. 한편 본 연구의 예측치와 기존의 수치해석을 비교할 때 양자는 거의 유사하지만 수치해가 예측치보다는 실험치에 상대적으로 근접한다. 사실 수치해석에는 선단과냉뿐만 아니라 공정과냉까지 고려되었으며 밀도모델도 실험에 근거한 경험식이 적용되었기 때문에 이러한 결과는 일견 당연하며 수치해가 본 예측치보다 우수한 것처럼 보인다. 그러나 전술하였듯이 수치해는 실제 현상과 유리된 방법으로 접근하였을 뿐만 아니라 오류가 확인된 선단과냉도와 경험적인 상수를 포함하는 공정과냉 모델에 의한 결과이기 때문에 신뢰성에 상당한 문제가 있다. 일례로서 양자의 선단과냉도를 비교한 Fig. 4에서 수치해석의 ΔT_t 는 본 연구의 경우(Table 3의 제2열)보다 상당히 크다. 순수한 선단과냉의 공정분율에 대한 효과(Table 3의 U열)에서 쉽게 알 수 있듯이 g_{eut} 는 ΔT_t 의 증가에 따라 감소하기 때문에, ΔT_t 의 차이가 상대적으로 큰 $R = 0.1$ 및 1700 K/s인 조건에 대응하는 Fig. 3의 g_{eut} 에 나타난 차이는 선단과냉도의 오류에 기인하였을 가능성이 크다. 이런 관점에서 해석이 용이한 단순화된 형태라는 장점을 제외하고 실험치와 일치하는 정도만으로도 본 모델은 역확산 및 조대화는 물론 과냉까지 포함한 용질재분배 해석에 충분히 적용될 수 있을 것으로 판단된다.

또한 식 (10)에 의해 계산된 수치상 가지간격(Table 3의 제3열)과 실험치(Table 2의 마지막열)

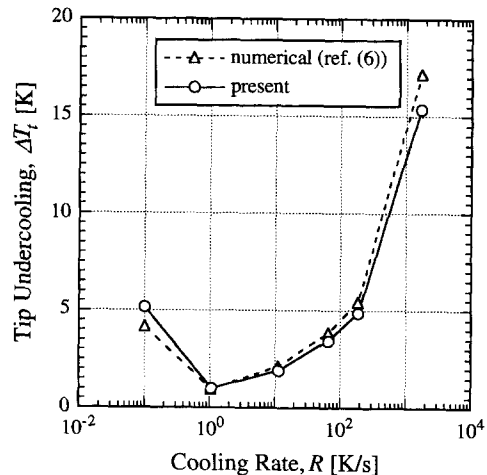


Fig. 4 Difference in the degree of tip undercooling between the previous and present studies as a function of the cooling rate.

의 비교에서, 냉각속도의 증가에 따라 양자 사이에 다소의 차이는 나타나지만, 본 연구에 적용된 조대화모델은 실제 현상을 비교적 잘 반영하고 있음이 확인된다.

본 연구에서 취급된 응고조건 범위 안에서 용질재분배에 대한 특성인자의 영향을 고찰하기 위하여 Table 3의 결과 중 미시편석의 지표인 공정분율만을 Fig. 5에 종합적으로 도시하였다. 먼저 냉각속도의 전 범위에 대하여 공정분율의 최대 및 최소치는 Scheil한계 및 모든 인자가 고려된 경우(B+C+U)에서 나타난다. 이는 고려된 특성인자는 어떤 형태로든 공정분율을 감소시키는 방향으로 작용함을 보여준다. 특성인자의 독자적인 효과는 굵은 선을 표시된 B, C 및 U 각각을 Scheil과 비교함으로써 파악될 수 있다. 역확산은 냉각속도의 증가 즉 수치상응고 시간의 단축에 따라 감소하므로 공정분율은 증가하면서 Scheil로 점진적으로 접근한다. 따라서 역확산의 효과는 서냉시에는 냉각속도에 민감하지만 급냉시에는 매우 둔감하다. 선단과냉도는 전술하였듯이 냉각속도에 따라 감소 후 증가하기 때문에(Fig. 4참조) 대응하는 공정분율은 증가 후 감소하는 거동을 보인다. 역확산과는 반대로 선단과냉의 효과는 서냉시에는 미약하지만 급냉시에는 급격히 증대된다. 이들과는 달리 조대화의 효과는 냉각속도에 무관하며 공정분율을 현저히 감소시키는 역할을 한다. 특성인자의 영향이 유사한 크기차수(order of magnitude)이며 상반된 형태로

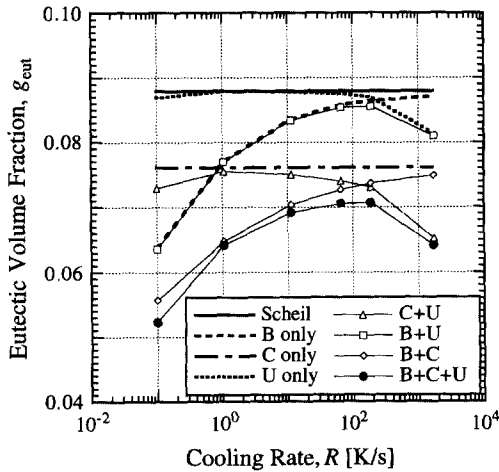


Fig. 5 The individual and combined effects of characteristic parameters on the eutectic fraction in reference to the Scheil limit as a function of the cooling rate.

나타난다는 사실은 광범위한 냉각속도에 걸친 합금의 수지상응고 과정동안 미시편석을 타당하게 예측하기 위해서는 역확산, 조대화 및 선단과냉은 동시에 고려되어야 함을 의미한다.

특성인자사이의 상호작용을 Fig. 5의 결과만으로써 체계적으로 고찰하기에는 무리가 따르는 것이 사실이다. 그럼에도 불구하고 개략적으로 유용한 수준의 논의는 충분히 가능하다. 먼저, C와 C+U 사이의 차이가 Scheil과 U사이의 차이보다 큰 점으로부터 조대화는 과냉에 의한 공정분율의 감소를 촉진시키는데 기여함을 유추할 수 있다. 이 가설은 역확산이 존재하는 B+C와 B+C+U사이의 차이가 C와 C+U사이의 차이와 냉각속도에 무관하게 거의 같은 크기라는 사실이 뒷받침한다. 다음으로, B와 B+U의 차이는 Scheil과 U사이의 차이와 비교할 때 대략 유사한 정도이나 서냉시에는 오히려 작다. 이는 역확산이 작은 급냉시에는 과냉의 독자적인 효과가 그대로 유지되지만, 역확산이 매우 큰 서냉시 과냉효과는 상대적으로 약화됨을 의미한다. 그러나 전술한 B+C와 B+C+U사이의 차이에서 알 수 있듯이 조대화가 포함되면 과냉의 효과는 회복된다. 마지막으로, Scheil과 B사이의 차이와 C와 B+C사이의 차이로부터 조대화는 역확산의 효과를 억제하는 역할을 하는 것으로 보인다. 즉 B를 하향 평행이동시킬 때 역확산이 심화되는 서냉 조건에서는 B+C와 상당한 차이를 보이기 때문이

다. 이러한 상관관계는 조대화만이 수반될 때 역확산의 기여 즉 C와 B+C사이의 차이가 과냉까지 포함된 경우의 기여 즉 C+U와 B+C+U사이의 차이와 거의 일치하는 점과도 부합된다. 비록 제한된 범위에 대한 정성적 고찰이지만 이상에서 발견된 상호작용은 각 특성인자의 독자적인 효과를 단순히 중첩하여 용질재분배를 해석하는 접근방법의 한계를 보이기에 충분하다.

과냉효과와는 간접적으로 연관되지만 본 연구의 의미 있는 부산물은 Yoo와 Viskanta⁽¹⁵⁾에 의해 제기된 용질재분배의 극한에 관한 이론의 재확인이다. 이들은 지금까지 용질재분배의 기준으로서 거의 독점적으로 사용되어온^(1,2,4,6,7,8,14) Scheil식의 문제점 즉 수지상응고에서 역확산 또는 과냉이 없는 경우라도 조대화는 반드시 수반되는 사실에 착안하여 조대화만이 고려된 해석해가 미시편석의 상한임을 주장하였다. 실제로 Fig. 5는 다음의 이유로 상기 이론을 뒷받침한다. 조대화가 포함된 모든 조합에 대한 결과(C, B+C, C+U 및 B+C+U) 각각은 조대화가 배제된 상태에 대응하는 결과(순서대로 Scheil, B, U 및 B+U)를, 전술한 인자사이의 상호작용의 영향으로 정도의 차이는 있지만, 대략적으로 하향 평행이동한 형태이며 공정분율은 냉각속도에 무관하게 C의 경우를 결코 상회하지 않는다. 수지상 가지의 조대화는 이미 확인된 현상임을 감안하면, 용질재분배의 합리적인 극한은 실현될 수 없는 Scheil한계가 아니라 본 연구의 C에 대응하는 해석해임이 분명하다. 그럼에도 불구하고 Scheil식은 이미 고찰한 바 있듯이 특성인자의 독자적인 효과를 해상하는데 대단히 유용함을 간과해서는 곤란하다.

5. 결론

본 연구에서는 합금응고의 미시적-거시적 해석에 필요한 완결된 형태의 미시적 요소를 확립하기 위하여 선단에서의 과냉이 있을 때 주상 수지상 성장에 수반되는 용질재분배를 예측하는 단순화된 모델을 개발하였다. 최소과냉이론에 의한 선단과냉도만큼의 액상선온도 강하와 응고초기 유한한 선단반경이 반영된 수지상 가지간격의 불연속적 성장을 도입하여 역확산 및 조대화가 고려된 용질확산모델의 초기조건을 수정하는 방법으로 접근하였다. 제시된 해석모델을 실험자료가 가용한 Al-Cu합금의 방향

성응고에 적용하고 결과를 비교 고찰함으로써 아래
의 결론에 도달하였다.

잘 알려진 Scheil한계 및 확산제어한계에 대한
결과로부터 과냉 및 역확산이 없는 경우에 대해서
용질확산모델이 타당함을 확인하였다. 본 연구에서
취급된 응고조건의 범위 안에서 과냉도는 냉각속도
의 증가에 따라 감소 후 증가하며, 과냉은 수지상
응고 종료시 공정체적분율을 감소시키는 역할을 한
다. 역확산, 조대화 및 과냉이 동시에 고려된 해석
결과는 실험자료와 정성적 및 정량적으로 비교적
양호하게 일치하며, 특히 급냉시 공정체적분율의
감소추이를 성공적으로 예측하였다. 또한 기존의
수치해석에 적용된 선단과냉도의 오류도 구체적으
로 확인되었다.

특성인자의 가능한 모든 조합에 대한 예측치의
비교를 통하여 역확산, 조대화 및 과냉의 독자적인
효과와 이들 사이의 상호작용을 규명하였다. 조대
화는 과냉에 의한 공정분율의 감소를 촉진하고 역
확산의 효과를 억제하는 방향으로 작용하며, 과냉
효과는 역확산이 지배적인 서냉조건에서 약화된다.
미시편석에 비슷한 크기차수의 기여를 하는 특성인
자가 상호 연계되어 있다는 사실로부터 타당한 용
질재분배 해석을 위해서는 적어도 역확산, 조대화
및 선단과냉이 동시에 고려된 모델이 사용되어야
함을 알 수 있었다. 아울러 미시편석의 실질적인
상한은 Scheil식이 아니라 조대화만이 고려된 해석
해로부터 결정되어야 함도 재확인되었다.

후 기

이 논문은 1996년도 교육부 학술연구조성비(기계
공학 ME96-A-09)의 지원에 따른 연구결과로서 연
구비 지원에 대하여 사의를 표합니다.

참고문헌

- (1) Kurz, W. and Fisher, D. J., 1989, *Fundamentals of Solidification*, Trans Tech Publ., Aedermannsdorf, Switzerland.
- (2) Sundarraj, S. and Voller, V. R., 1993, "The Binary Alloy Problem in an Expanding Domain: the Microsegregation Problem," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 36, pp. 713~723.
- (3) 유호선, 1996, "수지상가지의 조대화를 고려한

이원합금의 응고과정동안 용질재분배 해석," 대
한기계학회 논문집(B), 제20권, 제4호, pp. 1437~
1448.

- (4) Sarreal, J. A. and Abbaschian, G. J., 1985, "The Effect of Solidification Rate on Microsegregation," *Metall. Trans. A*, Vol. 17A, pp. 2063~2073.
- (5) Giovanola, B. and Kurz, W., 1990, "Modeling of Microsegregation Under Rapid Solidification Conditions," *Metall. Trans. A*, Vol. 21A, pp. 260~263.
- (6) Voller, V. R. and Sundarraj, S., 1993, "Modeling of Microsegregation," *Mater. Sci. Tech.*, Vol. 9, pp. 474~481.
- (7) Roosz, A. and Exner, H. E., 1993, "A Complete Model for Microsegregation During Columnar Dendrite Growth," in Piwonka, T. S., Voller, V. R. and Katgerman, L. Eds, *Modeling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes VI*, TMS, Warrendale, PA, pp. 243~250.
- (8) Wang, C. Y. and Beckermann, C., 1993, "A Unified Solute Diffusion Model for Columnar and Equiaxed Dendritic Alloy Solidification," *Mater. Sci. Eng.*, Vol. A171, pp. 199~211.
- (9) Yoo, H. and Kim, C. -J., 1997, "A Solute Diffusion Model for Micro-Macroscopic Analysis of Columnar Dendritic Alloy Solidification," *KSME Int. J.*, Vol. 11, pp. 319~330.
- (10) Ohnaka, I., 1986, "Mathematical Analysis of Solute Redistribution During Solidification with Diffusion in the Solid Phase," *Trans. ISIJ*, Vol. 26, pp. 1045~1051.
- (11) Burden, M. H. and Hunt, J. D., 1974, "Cellular and Dendritic Growth," *J. Cryst. Growth*, Vol. 22, pp. 109~116.
- (12) Laxmanan, V., 1985, "Dendritic Solidification - I. Analysis of Current Theories and Models," *Acta Metall.*, Vol. 33, pp. 1023~1035.
- (13) Laxmanan, V., 1985, "Dendritic Solidification - II. A Model for Dendritic Growth Under an Imposed Thermal Gradient," *Acta Metall.*, Vol. 33, pp. 1037~1049.
- (14) Roosz, A., Halder, E. and Exner, H. E., 1986, "Numerical Calculation of Microsegregation in Coarsened Dendritic Microstructures," *Mater.*

- Sci. Tech.*, Vol. 2, pp. 1149~1155.
- (15) Yoo, H. and Viskanta, R., 1997, "Solute Redistribution Limit in Coarsening Dendrite Arms During Binary Alloy Solidification," *Int. J. Heat Mass Transfer*, Vol. 40, pp. 3875~3882.