

유도초음파를 이용하여 금속의 방향성 고체화과정에서 고체-액체 경계면의 위치와 속도결정

Determination of the Position and Velocity of the Solid-Liquid Interface During Directional Solidification of Metals based on Guided Ultrasonic Waves

김 태 진*, 슈마크텔 미샤엘*, 그릴 볼프강*, 쉬벤부쉬 안드레**, 짐머만 게르하르트**
(Tae Jin Kim*, Michael Schmachtl*, Wolfgang Grill*,
Andre Schievenbusch**, Gerhard Zimmermann**)

※ 본 연구는 European Space Agency ESA/ ESTEC [Contract No.9127/90/NL/PB(SC)]에 의한 연구비 지원으로 수행되었음.

요 약

높은 온도에서 금속물질이 용고되는 동안에 물질의 구조는 결정성장속도비율에 따라 크게 좌우된다. 유도초음파를 기초로 한 펄스-에코 초음파실험기술과 함께 고체-액체 경계면의 위치와 속도를 실시간으로 측정할 수 있어 고체화되는 동안의 용광로 파라미터들을 조절하는데 사용될 수 있다. 실험은 Bridgman 형의 용광로에서 CuMn-막대시료에 대하여 서로 다른 냉각비율로 수행되었다. 열적평형상태에서 경계면의 위치에 대한 측정분해능은 약 10 μ m이다.

ABSTRACT

During directional solidification of metallic materials at high temperatures the structure of the material depends significantly on the growth rate. With an ultrasonic pulse-echo technique based on guided ultrasonic waves the position and the velocity of the solid-liquid interface can be determined in real time and can be used to control the furnace parameters during solidification. Experiments have been performed with a CuMn-rod in a Bridgman-type furnace using different cooling rates. The achieved resolution with respect to the position of the interface in thermal equilibrium is about 10 μ m.

I. 서 론

금속의 방향성 고체화(directional solidification)과정 [1]에서 고체-액체 경계면(solid-liquid interface)의 위치와 속도는 경계면에서 형성되는 미소결정구조를 결정하는데 중요한 파라미터이다. 이와같은 경계면에 대하여 펄스-에코 초음파실험(pulse-echo ultrasonic experiment)을 통한 관찰은 여러 저자들에 의하여 시도되었다[2-6]. Suzuki et al.과 Elbaum은 quartz-트랜스듀서를 직접 용광로 속에 들어있는 Sn 또는 Sn-Pb 시료의 녹은 액체부분에 넣고 시료의 고체-액체 경계면을 좋은 분해능으로 측정하였다. 그러나 quartz-트랜스듀서는 Curie-온도가 575 $^{\circ}$ C로

서 그 이하의 녹은 온도의 물질에서만 측정가능하다. Parker et al.은 측정시료로서 Fe, Sn 등 순수한 금속시료막대 또는 합금속으로는 스테인레스강(stainless steel)으로 만들어진 금속시료막대의 온도가 낮은 고체부분의 끝에 트랜스듀서를 부착하여 초음파를 시료에 전파시켜 높은 온도에서도 측정할 수 있었다. 그러나 어떤 시료에 있어서는 고체-액체 경계면에서의 음향저항(acoustic impedance)의 차가 작거나 시료막대의 길이가 길고 시료의 초음파감쇠가 큰 물질인 경우에는 측정하기에 충분한 에코신호를 얻기가 어려웠다. 한편 물질의 비균질성이나 경계면의 변화가 초음파의 파장 λ 에 비교되는 경우에는 초음파의 분산과 간섭이 일어나서 측정하고자 하는 경계면에서의 반사신호가 왜곡된다.

이와같은 문제들은 시료막대의 온도가 낮은 고체부분 쪽에 트랜스듀서를 부착하여 유도초음파(guided ultrasonic wave)기를 발생시키고 검출할 수 있는 펄스-에코 초음파

*Institut für Experimentelle Physik II der Universität Leipzig
Linnéstr. 5, D-04103 Leipzig, Germany

**ACCESS e. V., Intzestr. 5, D-52072 Aachen, Germany

접수일자: 1997년 12월 30일

실험기술을 사용하므로써 개선될 수 있다[6]. 유도초음파는 원리적으로 시료막대에서 초음파의 종파와 횡파(longitudinal and transversal wave)의 조합에 의하여 형성된 파인데 액체에서는 횡파의 전파가 어렵기 때문에 유도초음파의 대부분이 고체-액체 경계면에서 반사된다. 실험에서는 전형적으로 시료막대의 지름 ϕ 보다도 약 4배가 더 큰 파장의 초음파를 사용하므로써 시료내부의 불균일성이나 경계면의 변화에 의한 초음파의 분산과 간섭이 적고 감쇠가 작다. 다음 단원에서는 유도초음파를 사용한 펄스-에코 초음파실험방법에 대하여 논하겠다.

II. 실험장치 및 측정방법

1. Bridgman 형의 용광로

Fig. 1은 금속시료를 고온에서 측정할 수 있도록 설계한 용광로 내부장치를 보여주고 있다. 그것은 크게 가열영역과 냉각영역으로 단열벽(baffle)을 사이로 분리되어 있다. Bridgman에 따른 방향성 고체화 기술에 의하여 금속시료막대는 고정되어 있고 가열 및 냉각장치로 만들어진 용광로가 시료막대에 대하여 상대적으로 움직인다[1]. 시료막대에서 트랜스듀서가 부착되어 있는 영역의 온도는 약 25°C를 유지하도록 되어 있고, 실험에 사용되는 CuMn-시료막대의 고체-액체 경계면의 온도기울기(temperature gradient)는 약 25 K/mm이다. 시료는 높은 온도에

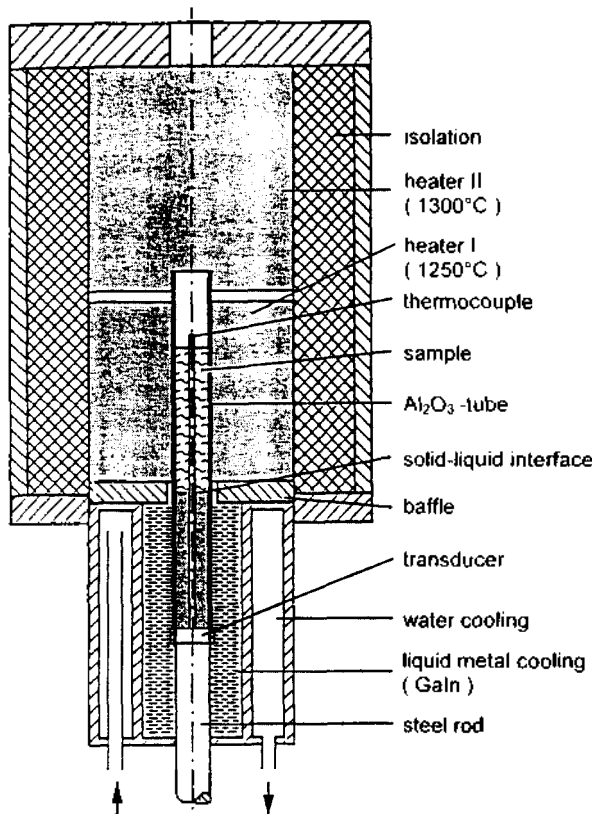


Fig. 1 Set-up of the sample in the Bridgman-type furnace

건디는 알루미나 튜브(Al_2O_3 -tube)에 넣었기 때문에 시료가 녹는 경우에도 튜브에 머물러 있도록 하였다. 그리고 용광로의 속도는 가변될 수 있어서 시료의 고체-액체 경계면의 온도변화를 임의로 할 수 있다.

2. 펄스-에코 초음파 실험장치

유도초음파의 발생과 검출장치는 Fig. 2에 보여준다.

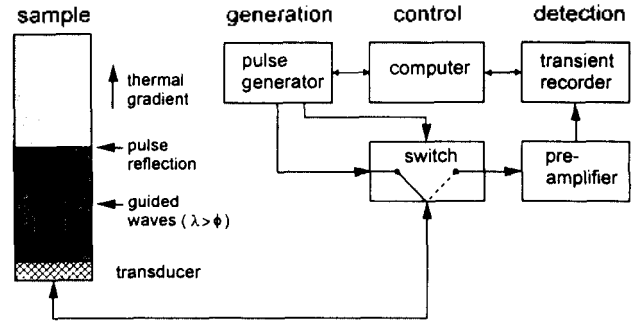


Fig. 2 Schematic diagram of the ultrasonic pulse-echo experiment

PC-컴퓨터는 시료의 한쪽끝에 부착되어 있는 트랜스듀서에 여기펄스(excitation pulse)를 발생시키도록 하는 펄스제너레이터를 트리거(trigger)한다. 결과적으로 중심주파수가 약 100 kHz가 되는 여기펄스가 시료의 고체영역으로 전파된다. 유도초음파는 액체영역으로 전파될 수 없기 때문에 고체-액체 경계면에서 대부분 반사된다. 반사된 에코신호는 같은 트랜스듀서로 검출된다. 신호는 다시 증폭되고 필터를 거친 후에 신호를 저장하여 컴퓨터에 의한 분석을 한다. 트랜스듀서에 가하는 펄스의 형태와 그에 일치하는 에코신호의 전형적인 구조가 Fig. 3에서 보여준다.

고온에서 실험하기 전에 일차적으로 경계면과 유도초음파의 영향을 관찰하기 위하여 Fig. 2와 같이 금속시료막대를 한쪽 끝에는 트랜스듀서를 부착하고, 다른쪽 끝

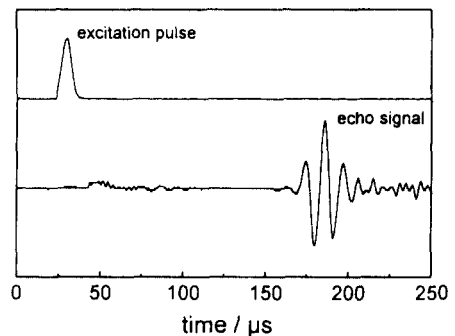


Fig. 3 Typical structure of the excitation pulse and detected echo signal

은 시료의 직경과 비슷한 오목 또는 볼록곡면, 평면 등 여러가지 형태의 단면을 만들었다. 그리고 경계면에 공기와 다른 액체들을 번갈아 접합한 상태에서 실온에서 에코신호를 관찰하였다. 단면의 형태에 따른 평균적인 전파거리의 미소한 차이는 매우 민감하게 측정되었지만 단면의 모양 또는 접합시킨 액체에 따라서 에코신호들의 위상 또는 형태의 변화나 감쇠는 거의 나타나지 않았다. 다음 단원에서 설명하게될 Bridgman 형의 용광로에 위치한 고온상태의 실험 전과정에서도 에코신호는 감쇠됨이 없이 거의 일정한 신호의 크기와 형태를 유지하였다.

III. 실험결과

실험에 사용된 금속시료막대 CuMn의 성분비율은 Cu-29.4wt.%Mn이다. 이때 시료의 녹는 온도는 약 870℃이다. CuMn-시료는 길이가 150mm, 직경이 7.5mm이다. 고체-액체 경계면의 위치를 측정하기 위하여 용광로를 움직여서 시료막대를 가열영역에 넣고 고체-액체 경계면을 시료길이의 중간에 위치시켜 녹인 후에 경계면에서 반사되는 에코신호의 시간과 위치를 각각 τ_1 과 s_1 이라고 하자. 그 후에 용광로를 약간 움직여서 시료를 냉각시키면 일부가 고체화되어 그때 경계면에서 반사되는 에코신호의 시간과 위치를 각각 τ_2 과 s_2 라고 하면 변화한 거리 $\Delta s = 0.5 \cdot c_0 \cdot \Delta \tau$ 가 된다. 이때 $\Delta \tau = \tau_2 - \tau_1$ 이고 c_0 는 실온에서 시료의 유도초음파속도로서 $2640\text{m/s} \pm 0.5\%$ 이다. 시간 τ_1 과 τ_2 는 고온에 의하여 변화된 시간이 포함되어 있으나 시료길이에 따른 온도기울기와 유도초음파속도가 일정한 경우로서로 상쇄된다. 따라서 에코신호의 시간변화 $\Delta \tau$ 는 위치변화 Δs 와 비례하기 때문에 경계면의 이동위치를 즉각적으로 알 수 있다. 그리고 경계면의 속도 v 는 경계면의 위치변화 Δs 와 실측정시간으로부터 계산된다.

실험에서 시료막대는 70mm 정도를 용광로의 가열영역에서 녹인 후에 녹은 부분의 약 40mm를 서로 다른 용광로 속도로 움직여서 냉각을 시킨다. 이때 고체-액체 경계면의 위치변화에 따라 반사되는 초음파 에코신호를 관

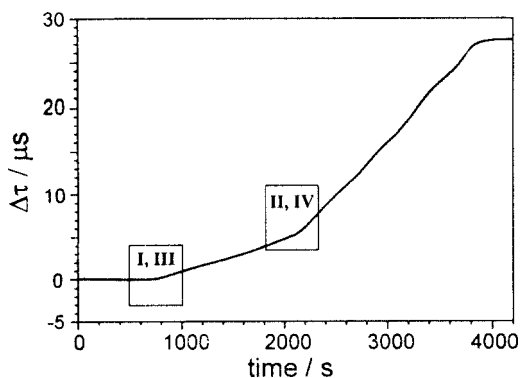


Fig. 4 Variation in the time-of-flight of the solid-liquid interface during directional solidification of a CuMn-sample

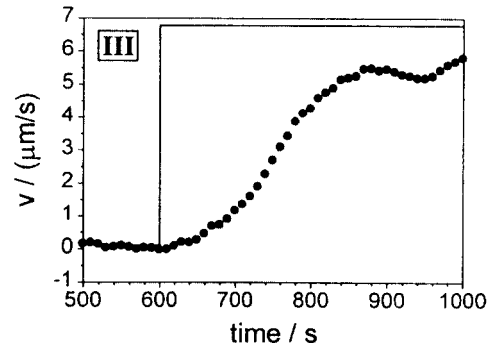
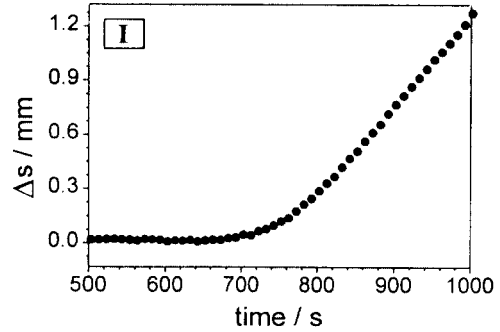


Fig. 5 Recalculated details of the region (I, III) in Fig. 4. (I) and (III) show variations in the position and the velocity of the solid-liquid interface. The solid line in (III) represents the furnace velocity.

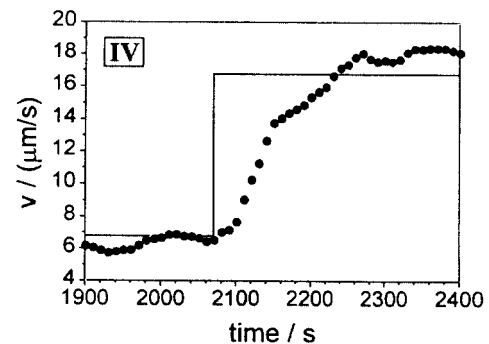
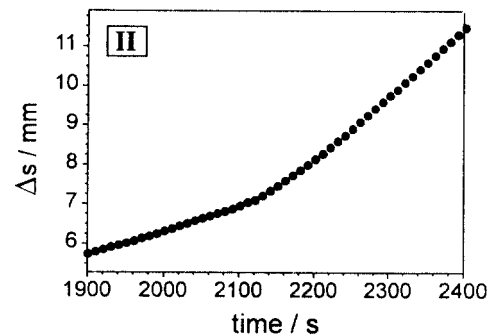


Fig. 6 Recalculated details of the region (II, IV) in Fig. 4. (II) and (IV) show variations in the position and the velocity of the solid-liquid interface. The solid line in (IV) represents the furnace velocity.

찰하였다. Fig. 4는 고체-액체 경계면으로부터 실측정시간에 대하여 초음파 에코신호의 상대적인 증가시간 Δt 와 의 관계를 보여준다. Fig. 5의 I과 III은 각각 Fig. 4의 부분 I, III으로부터 상대적 위치 Δs 와 속도 v 를 나타낸 것이다. Fig. 5의 III에서 선(solid line)은 처음 정지상태에서 측정시간 600초에서 용광로를 속도 $6.7\mu\text{m/s}$ 로 출발한 것을 의미한다. 용광로가 움직이기 시작하여 경계면의 반응이 일어날 때까지 약간의 시간이 걸리는 것을 그림을 통하여 볼 수 있다. Fig. 6의 II과 IV은 각각 Fig. 4의 부분 II, IV에 대한 상대적 위치 Δs 와 속도 v 를 나타낸 것이다. Fig. 6의 IV에서 선은 측정시간 2070초에서 용광로를 속도 $16.7\mu\text{m/s}$ 로 더 빠르게 출발한 것을 의미한다. 열적평형상태에서 경계면의 변화는 $\pm 10\mu\text{m}$ 이내의 측정 정확도를 갖는다.

Fig. 7은 시료의 두가지 다른 속도에서 얻어진 시료의 길이방향의 단면을 보여주고 있는데 Fig. 5에서 CuMn-막대시료의 느린 냉각속도는 경계면이 고체화되는데 물리적으로 충분한 열전달을 주기 때문에 결정화가 사료전반에 걸쳐 균일하게 형성되는 planar 구조(Fig. 7의 아랫부분)를 갖는다. Fig. 6과 같이 막대시료를 어떤 냉각속도 이상으로 증가시키면 경계면이 균일하게 결정화되는데 충분한 시간을 갖지 않게된다. 따라서 경계면의 각 위치에 따라 결정화에 따른 Cu와 Mn의 성분비율이 달라지게 되면서 Fig. 7의 윗부분에서 보여주는 바와같이 시료의 움직이는 방향으로 형성되는 방향성 cellular 구조가 형성된다.

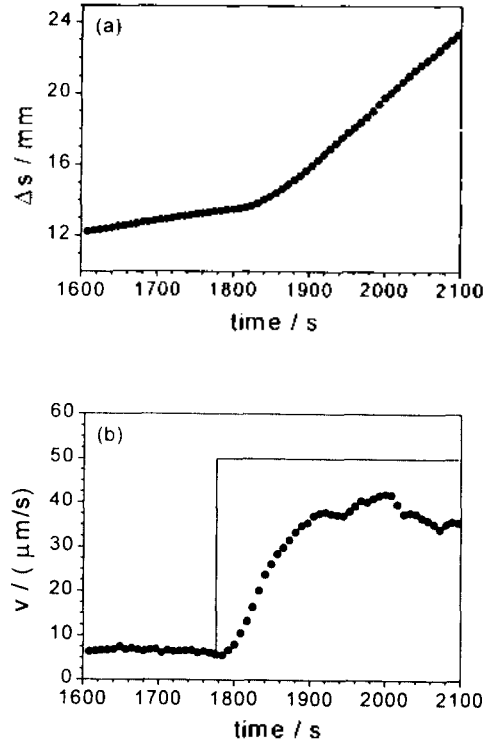


Fig. 8 (a) shows variations in the position and (b) the velocity of the solid-liquid interface. The solid line in (b) represents the furnace velocity.

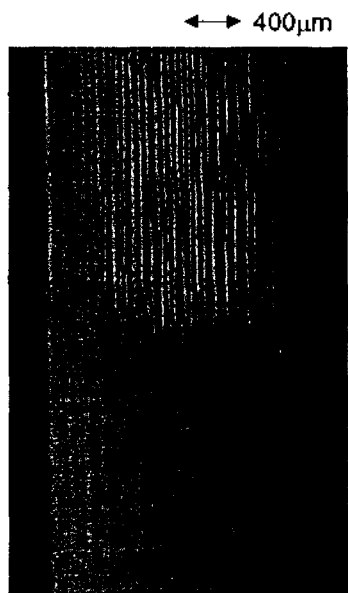


Fig. 7 Structure at the surface of a planar cut along the axis of the solidified CuMn-sample. The upper region shows a cellular, the lower a planar morphology.

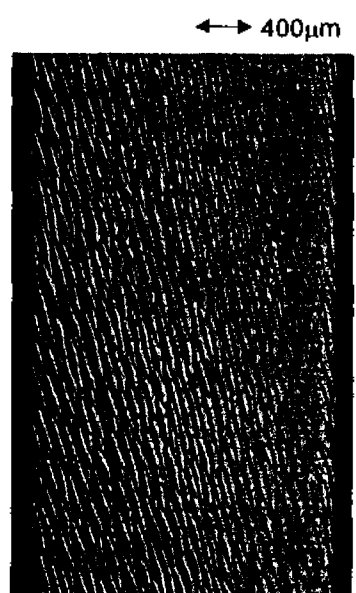


Fig. 9 Structure at the surface of a planar cut along the axis of the solidified CuMn-sample. The figure shows a dendritic morphology

Fig. 8은 위 실험과 독립적으로 다른 CuMn-시료막대를 가지고 용광로 속도를 6.7 $\mu\text{m/s}$ 로 진행하다가 1780초에서 50 $\mu\text{m/s}$ 로 속도 변화를 시켰을 때 초음파의 상대적 위치 Δs (Fig. 8(a))와 경계면의 속도 v (Fig. 8(b))를 보여주고 있다. Fig. 9는 50 $\mu\text{m/s}$ 의 속도에서 만들어진 시료의 길이방향의 단면을 나타낸다. 방향성 dendritic 구조를 선명하게 볼 수 있다.

모든 CuMn-시료를 가지고 실험을 하는 동안 초음파의 신호들은 planar, cellular 또는 dendritic 구조로 고체화되도록 용광로의 속도변화에도 에코신호들의 형태와 진폭이 거의 변화없이 선명하게 검출되었다.

IV. 결 론

시료의 방향성 고체화의 과정은 용광로의 온도기울기와 경계면의 속도에 따라 다르다. 지금까지 Bridgman 형의 용광로 속에서 유도초음파를 이용하여 고체-액체 경계면의 위치 및 속도를 측정하는 방법을 논하였다. 유도초음파를 기초로 한 펄스-에코 초음파실험은 고체화과정에서 검출되는 초음파신호의 진폭이 경계면의 위치변화에도 거의 감쇠하지 않고 경계면의 위치와 속도가 실시간으로 측정될 수 있다. 그리고 시료내부의 불균일성이나 경계면의 변화에 의한 초음파의 분산과 간섭에 관계없이 높은 온도에서 측정될 수 있다. 실험의 예로서 CuMn-시료의 고체화과정에서 경계면의 여러가지 다른 냉각속도에 의한 planar, cellular 또는 dendritic 구조들이 관찰되었다.

참 고 문 헌

1. H. Müller-Krumbhaar, W. Kurz, "Solidification," Materials Science and Technology, Vol.5, edited by R.W.Cahn, P. Haasen, E.J.Kramer, Weinheim, pp.553-632, 1991
2. K. Suzuki, A. Hikata, C. Elbaum, "Study of solid-liquid interface during solidification, using ultrasonic waves," Rev.Lett., Vol.59, pp.2686-2689, 1987
3. C. Elbaum, Proc. VIIth Europ., "Ultrasonic studies of solidification," Symp. on Materials and Fluid Sciences in Microgravity, ESA SP-295, pp.549-552, Oxford, UK, 1990
4. R.L. Parker, J.R.Manning, "Application of pulse-echo ultrasonics to locate the solid/liquid interface during solidification and melting," J. Crystal Growth, Vol.79, pp.341-353, 1986
5. J.N. Carter, A. Lam, D.M. Schleich, "Ultrasonic time-of-flight monitoring of the position of the liquid/solid interface during the Bridgman growth of germanium," Rev. Sci. Instrum., Vol.63, pp.3472-3476, 1992
6. G. Zimmermann, A. Schievenbusch, W. Grill, M. Schmachtl, A. Lundström, M. Braun, "Ultrasonic detection of solid-liquid interface in high temperature solidification experiments," Experimental Methods for Microgravity Material

Science eds. R.A. Schiffman, J.B. Andrews, pp.27-31, The Minerals and Material Society, 1994

7. R.N. Thurston, "Elastic waves in rods and clad rods," J. Acoust. Soc. Am., Vol.64, pp.1-37, 1978

▲김 태 진(Tae Jin Kim) 1953년 5월 22일생
1978년 3월: 경희대학교 물리학과(이학사)
1980년 3월: 경희대학교 물리학과 대학원(이학석사)
1993년 7월: 독일 J.W.Goethe 대학교 물리학과(이학박사)
1987년~1994년: 독일 J.W.Goethe 대학교 Physikalisches Institut 연구원
1996년~현재: 독일 Leipzig대학교 Institut für Experimentelle Physik II 연구원

▲슈마크텔 미샤엘(Michael Schmachtl) 1964년 12월 29일생
1992년: 독일 J.W.Goethe 대학교 물리학과 (Diplom-Physiker)
1992년~현재: 박사과정
1992년~1995년: 독일 J.W.Goethe 대학교 Physikalisches Institut 연구원
1995년~현재: 독일 Leipzig대학교 Institut für Experimentelle Physik II 연구원

▲그릴 볼프강(Wolfgang Grill) 1946년 10월 6일생
1971년: 독일 Heidelberg대학교 물리학과 (Diplom-Physiker)
1975년: 독일 Heidelberg대학교 물리학과(이학박사)
1972년~1975년: Heidelberg대학교 물리학과 연구원
1975년~1978년: 미국 Indiana, California 대학교 연구원
1978년~1981년: 독일 Darmstadt대학교 연구원
1982년~1994년: 독일 J.W.Goethe 대학교 물리학과 교수
1995년~현재: 독일 Leipzig대학교 물리학과 교수
연구소 소장 (Institut für Experimentelle Physik II)

▲쉬벤부쉬 안드레(Andre Schievenbusch) 1963년 5월 11일생
1992년: 독일 Aachen대학교 Metallurgy and Material Science(Diplom-Ingenieur)
1992년~현재: 독일 Aachen, ACCESS e.V. 연구원

▲쾨머만 게르하르트(Gerhard Zimmermann) 1958년 6월 7일생
1984년: 독일 Bayreuth 대학교 물리학과 (Diplom-Physiker)
1989년: 독일 Karlsruhe 대학교(공학박사)
1985년~1989년: 독일 Karlsruhe, Institut für Angewandte Thermo-und Fluidodynamik 연구원
1990년~현재: 독일 Aachen, ACCESS e.V. "Directional Solidification" 부장