



고성능 단결정 초내열합금 CMSX-4의 액상화산접합현상

김 대 업*

* 현대모비스(주) 기술연구소

Bonding Phenomena during Transient Liquid Phase Bonding of CMSX-4, High Performance Single Crystal Superalloy

Dae-Up Kim

* Research Institute, Hyundai MOBIS Co., Yongin 449-910, Korea

Abstract

The bonding phenomena of Ni base single crystal superalloy, CMSX-4 during transient liquid phase(TLP) bonding was investigated using MBF-80 insert metal. Bonding of CMSX-4 was carried out at 1,373~1,548K for 0~19.6ks in vacuum. The (001) orientation of each test specimen was aligned perpendicular to the bonding interface. The dissolution width of base metal was increased when the bonding temperature and holding time were increased. The eutectic width diminished linearly with the square root of holding time during isothermal solidification process. Borides were formed in the bonded layer during TLP bonding operation. The solid phase grew epitaxially into the liquid phase from substrates and single crystallization could be readily achieved during the isothermal solidification.

(Received April 16, 2001)

Key Words : Transient liquid phase bonding, CMSX-4, Isothermal solidification, Dissolution, Boride, Single crystallization, Solid phase

1. 서 론

항공기용 제트엔진이나 발전용 플랜트 등에 광범위하게 사용되고 있는 가스터빈은 고온에서 회전으로 인한 원심력을 받기 때문에 고온과 고응력의 가혹한 조건에서 사용된다. 가스터빈에서는 터빈의 입구온도가 추력이나 연소효율을 직접 결정하기 때문에 성능향상을 위해서는 Ni기 단결정 초내열합금과 같이 신뢰성이 높은 내열재료를 사용함으로써 터빈 입구온도를 올리는 것이 유효하다. 이들 재료를 가스터빈과 같이 복잡한 형상을 가진 부품을 실제로 적용시키기 위해서는 용접·접합기술의 확립이 절실하다.

단결정합금은 일반적으로 용융용접법의 적용은 곤란하며, 접합에 따른 재질열화를 극소화하고 정밀접합이 가능한 확산접합과 같은 계면접합법이 유효한 것으로

알려져 있다^{1,3)}. 최근에는 다양한 형태의 단결정 합금을 광범위하게 적용하기 위하여 레이저용접을 적용하기 위한 시도가 있으나⁴⁾, 접합부의 단결정화를 달성시킬 수 있는 최적조건의 확립이 어려운 실정이다.

저자는 지금까지 CMSX-2 단결정 초내열합금을 액상 확산접합한 결과, 접합전처리과정에서 재결정이 일어나지 않고 접합부에 생성상이 없는 최적접합조건에서 접합하면, 접합부의 단결정화가 달성되고 모재와 동등한 기계적특성을 가지는 접합부를 얻을 수 있다는 것을 보고하였다⁵⁻⁷⁾.

본 연구에서는 단결정합금에 대한 고신뢰성의 접합기술을 확립하는 것을 목적으로, 고성능 단결정 초내열합금인 CMSX-4를 액상확산접합하여 접합현상 및 접합부의 단결정화 상황에 대해서 조사하여 액상확산 접합의 적용 가능성을 검토하였다.

2. 사용재료 및 실험방법

2.1 사용재료

모재는 Cannon-Muskegon사가 개발한 고성능 단결정 초내열합금인 CMSX-4를 사용하였으며, Re을 첨가한 고강도 지향합금이다. 사용한 단결정은 응고방향이 <001>방향에서 8° 이내의 것을 사용하였다. 또, 인서트금속은 두께 40μm의 MBF-80을 사용하였다. 이들의 조성을 Table 1에 나타내었다.

Table 1 Chemical composition of materials used (mass%)

Materials	Ni	B	Cr	Co	Mo	W	Ti	Al	Ta	Re	Hf
Base metal	CMSX-4	Bal.	6.5	9.0	0.6	6.0	1.0	5.6	6.5	3.0	0.1
Insert metal	MBF-80	Bal.	3.7	15.5	-	-	-	-	-	-	-

Table 2 Heat treatment condition of CMSX-4

Solution treatment	1550K×7.2ks→1564K×7.2ks→1569K×10.8ks→ 1577K×10.8ks→1586K×7.2ks→1589K×7.2ks→ 1591K×7.2ks→1594K×7.2ks→Quenching
1st again treatment	1353K×14.4ks→Quenching
2nd again treatment	1144K×72ks→Air cooling

2.2 실험방법

접합시료는 13.3mPa의 진공중에서 고주파 유도가열에 의해 10K/s의 가열속도로 가열하여 접합온도에서 소정의 시간 유지후 실온까지 냉각하였다. 단결정재의 접합은 접합시료의 사이에 인서트금속을 삽입하고 양 접합재의 결정방위가 동일하게 되도록 배치해서 진공접합장치¹⁾를 사용하여 접합하였다. 접합온도는 1,373K, 1,453K 및 1,523K로 하였으며, 유지시간은 0~19.6ks로 변화시키고, 가압력은 2.3MPa의 조건에서 접합을 행하였다. 또, 접합부의 액상폭을 일정하게 하기 위해 직경 50μm의 W spacer를 사용하였다. 접합부의 조직관찰 및 원소분석에는 SEM, EDX 및 EPMA를 사용하였으며, 생성상의 분석은 TEM 및 EDX를 사용하였다. 또한, 모재 및 접합부의 결정방위는 EBSP(Electron Back Scattering Pattern)를 사용하여 삼차원적으로 해석하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 모재용융거동

Fig. 1은 1,373~1,523K에서 접합한 경우, 모재용융폭의 시간에 따른 변화를 나타낸 것이다.

모든 접합온도에서 모재는 단시간에 급속히 용융한 후 일정한 용융폭에서 포화하는 경향을 나타내었다. 또, 접합온도가 높을수록 모재의 포화용융폭이 크고, 포화용융폭까지 요하는 시간은 짧아지는 것을 알 수 있다. 이러한 CMSX-4의 모재용융거동을 다른 합금의 용융거동과 비교하기 위하여 Fig. 1의 데이터를 용융파라미터(P)와 유지시간(t)과의 관계로 정리하여 Fig. 2에 나타내었다.

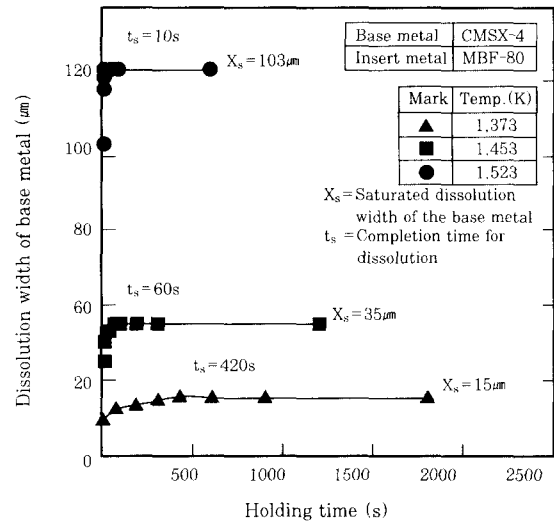


Fig. 1 Effect of the holding time on the dissolution width of base metal

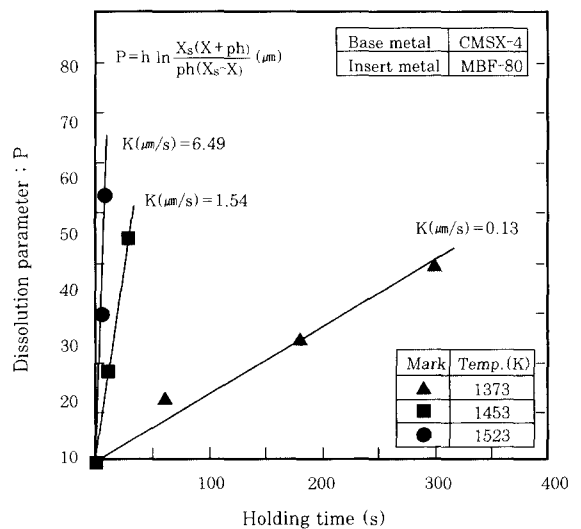


Fig. 2 Relation between the dissolution parameter and the holding time

모든 접합온도에서 P와 t사이에는 직선관계가 인정된다. 이로부터, CMSX-4를 액상확산접합한 경우에도 다른 합금의 경우⁸⁾와 마찬가지로 모재용융거동이 Nernst-Brunner의 식⁸⁾에 따른다는 것을 알았다. 또한, 직선의 기울기로부터 얻을 수 있는 용융속도정수(K)의 값이 접합온도의 상승에 따라 증가하였다. Fig. 2의 직선의 기울기로부터 얻어진 용융속도정수(K)의 온도의존성으로부터, 모재용융과정에서 활성화에너지를 도출하였다. Fig. 3에는 ln K와 유지시간의 역수 1/T의 관계를 CMSX-2의 결과^{1,7)}와 비교하여 나타내었다.

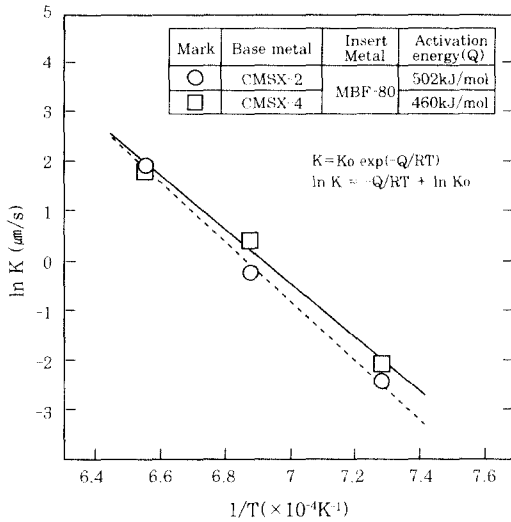


Fig. 3 Arrhenius plot of dissolution rate

그림에서 알 수 있듯이 양호한 직선관계가 성립하고 있고, 이 직선의 기울기로부터 구해진 모재용융의 활성화에너지(Q)는 460kJ/mol로 CMSX-2에 비해 약간 낮은 값을 나타내었다.

용융된 인서트금속에 의한 모재용융과정은 상경계에서 고상에서 액상으로 용질원자가 비산하는 계면반응과정과 상경계로부터 용액내부로 용질이 이동하는 확산과정으로 이루어진다고 생각된다. 지금까지 CMSX-2 단결정³⁾이나 Cu합금¹¹⁾의 모재용융은 확산과정에 의해 윤택되는 것으로 보고되고 있다. 본 연구의 결과만으로 모재용융기구를 고찰하는 것은 곤란하나, 모재용융현상이 지금까지 보고된 CMSX-2 단결정과 유사하고, 활성화에너지도 거의 차이가 없기 때문에 확산율속의 가능성이 크다고 생각된다.

3.2 등온응고거동

Fig. 4는 1,373~1,523K에서 접합한 경우, 유지시간에 따른 접합부내 공정폭의 변화를 나타낸 것이다.

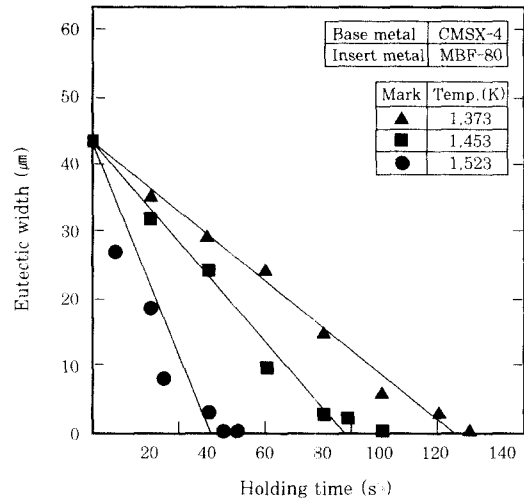


Fig. 4 Relation between the holding time and the eutectic width

그림에서 유지시간 0s는 등온응고과정에서 액상의 소멸개시시간을 나타내고 있다. 모든 접합온도에서 공정폭은 유지시간의 평방근에 비례해서 직선적으로 감소하고 있고, 접합온도가 상승함에 따라 등온응고속도는 빨라지는 것을 알 수 있다. Fig. 4의 직선의 기울기를 등온응고속도(m)라고 하였을 때, 등온응고속도(m)와 접합온도의 역수(1/T)와의 관계를 정리하면 활성화에너지를 구할 수 있다. Fig. 5에 나타난 바와 같이, ln m과 1/T사이의 직선의 기울기로부터 구한 등온응고과정에서 활성화에너지는 253kJ/mol이고, CMSX-2^{1,7)}의 활성화에너지(266kJ/mol)에 비해 약간 낮았다.

Ni 단결정 및 다결정 초내열합금을 액상 확산접합한 경우, 등온응고과정은 인서트금속중의 응점저하원소에 의해 윤택되는 것으로 보고되고 있다^{10,11)}. 본 연구

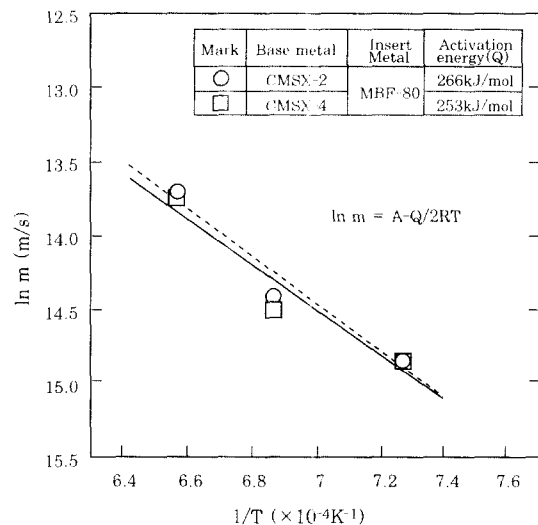


Fig. 5 Arrhenius plot of isothermal solidification rate

에서 CMSX-4의 등온응고과정에서도 확산의 활성화 에너지가 다른 합금과 큰 차이가 없고, Fig. 4와 같이 공정폭이 유지시간에 비례해서 직선적으로 감소하고 있는 것으로 부터, 등온응고과정은 인서트금속층의 용점저하원소인 보론(B)의 확산유출에 의해 율속되고 있는 것으로 판단된다.

3.3 합금원소의 균일화거동

접합부의 기계적특성을 조사하기 위하여 접합후에는 Table 2에 나타낸 모재의 지정열처리 조건¹²⁾으로 용체화처리→1차시효처리→2차시효처리의 순으로 접합 후열처리를 실시하였다. Fig. 6은 1,523K×2.4ks의 조건으로 접합한 시험편에 대해 접합상태, 용체화처리 후 및 2차시효처리후의 접합부의 주요구성원소의 선 분석 결과를 나타낸 것이다.

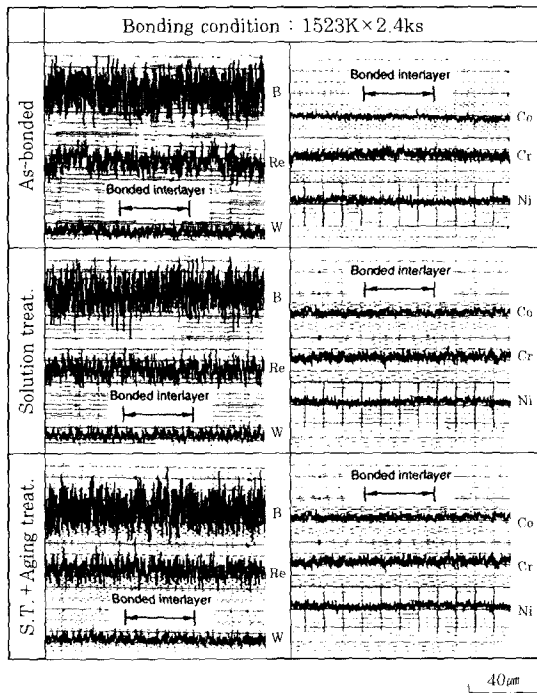


Fig. 6 Line profiles of elements analysed by EPMA

접합상태에서 주요원소의 균일화가 상당히 진행되어 있으며, 확산속도가 느린 Re도 약간 불균일한 부분도 있으나 거의 균일화되어 있는 것으로 생각된다. 또한, 용체화처리후 및 2차시효처리후에는 접합부가 모재와 거의 동일한 원소분포를 하고 있다. 한편, 접합부 근방의 경도분포에 대해서 보면, Fig. 7에 나타낸 바와 같이, 접합상태에서는 접합부의 경도가 모재에 비해 약간 낮으나, 용체화처리후 및 2차시효처리후에는 접합부의 경도분포가 모재와 거의 동일하다.

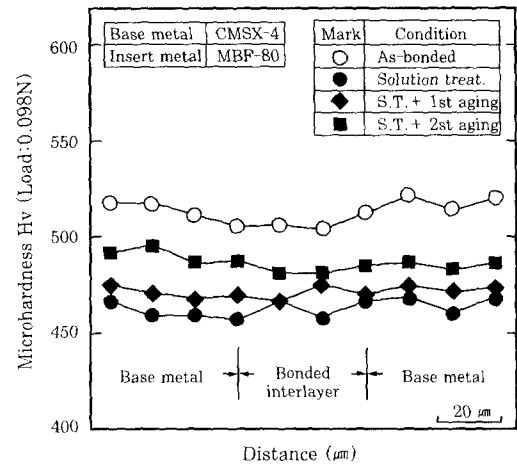


Fig. 7 Microhardness distribution near the bonded interlayer

이로부터, 접합상태에서 접합부의 균일화가 꽤 달성되어 있으며, 접합부에서 약간의 원소불균일이나 경도저하는 접합후 용체화처리 단계에서 균일화가 달성되는 것으로 판단된다. 따라서, 지금까지 액상확산접합법을 실용부품에 적용하기 위해서는 장시간의 균일화처리가 필요하였으나, 본 연구의 범위내에서는 접합후 균일화과정을 생략하고 용체화처리만으로 접합부의 균일화는 충분히 달성될 수 있다고 판단된다.

3.4 접합부 생성상의 분석

CMSX-4 액상확산접합부의 조직을 관찰한 결과, 접합온도 및 접합시간에 따라 접합부 근방에는 생성상의 존재가 확인되었다. Fig.8은 1,453K×6.6ks의 조건으로 접합한 접합부의 조직을 나타낸 것이다.

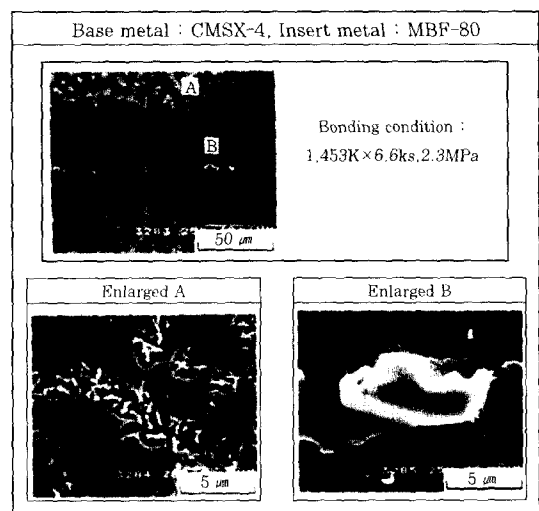


Fig. 8 Microstructures of bonded interlayer and microconstituents

접합부에서는 2종류의 생성상이 확인되었다. 즉, 접합부에 인접한 모재에 생성하는 점상생성상 및 접합부내에 생성하는 과상생성상이다. 1,453K×6.6ks의 조건에서 접합한 접합부의 점상 및 과상생성상에 대한 EDX 및 EPMA분석결과를 Fig. 9 및 Fig. 10에 나타내었다. EDX 점분석결과에서는 모든 생성상에서 Cr, W, Co가 함유되어 있으며, EPMA 선분석결과를 보면 Cr, W, Re 및 B의 존재가 인정된다.

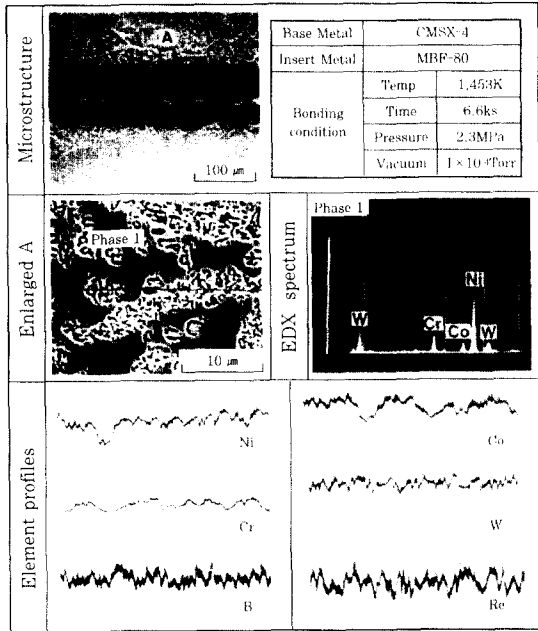


Fig. 9 EDX spectrum and elements profiles analyzed by EPMA

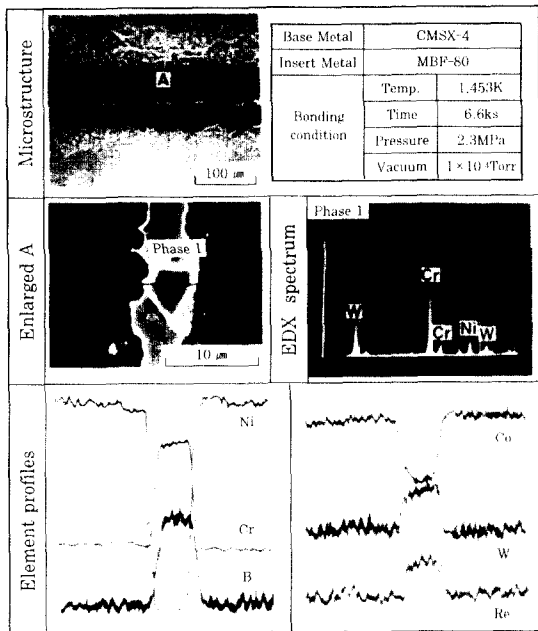


Fig. 10 EDX spectrum and elements profiles analyzed by EPMA

이로부터, 이들 생성상은 Cr, W 및 Re을 주요구성원소로 하는 붕화물(Boride)이라고 생각된다.

한편, 단결정합금을 액상화산접합하여 접합조건에 따른 생성상의 거동을 조사한 결과, 접합온도 및 유지시간의 증가에 따라 접합초기에 접합부에 생성된 생성상은 합체·성장단계를 거쳐 분해·소멸한다고 보고되고 있다¹³⁾. 본 연구에서도 접합부의 기계적특성에 악영향을 미치는 생성상이 소멸되는 접합조건을 조사하기 위하여 접합조건에 따라 조직관찰을 행하였다. 접합온도 1,523K에서 등온응고 완료후(2.4ks)에는 접합부에서 생성상은 관찰되지 않았다. 따라서, CMSX-4에 MBF-80을 사용하여 액상화산 접합한 경우, 1,523K이상의 접합온도에서 접합을 행하면, 등온응고완료시에 생성상이 없는 양호한 접합부를 얻을 수 있다는 것을 알았다.

3.5 접합부의 단결정화 상황

접합부의 단결정화 상황을 조사하기 위하여 1,523K×2.4ks의 조건으로 접합한 시험편의 모재 및 접합부의 결정방위를 EBSD를 사용해서 삼차원적으로 해석하였다. Fig. 11에는 각 분석위치에서 접합부에 수직한 면(LD), 접합부에 평행한 면(TD) 및 시료표면(ND)에 대한 스테레오 투영도 및 (200)극도형을 얻어 분석한 결과를 나타낸 것이다.

모든 분석위치에서의 결정방위는 거의 동일 위치에 투영되어 있다. 이로부터, CMSX-4 단결정에서도 등온응고과정에서 모재로부터 적층성장(epitaxial

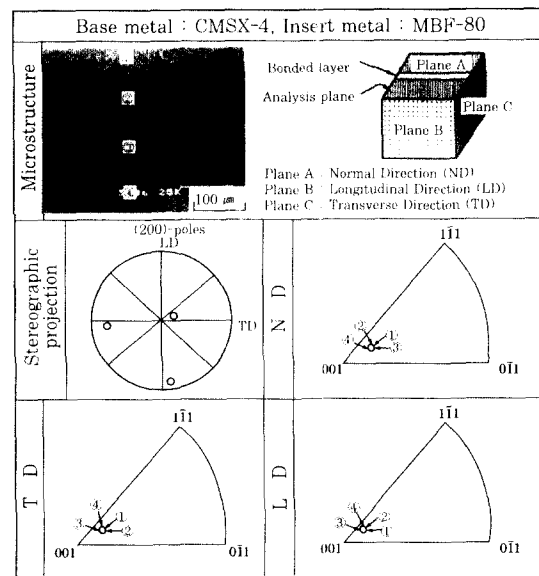


Fig. 11 Crystallographic orientation analyzed using the EBSD

growth)이 행해졌기 때문에 접합부는 모재와 동일한 결정방위를 가지는 단결정화가 달성되어 있는 것으로 판단된다. 이렇게 등온응고시의 고상의 적층성장 거동이나 등온응고의 율속과정은 단결정재의 액상확산접합 현상의 큰 특징이라 할 수 있다.

이상의 결과를 종합하면, 금후 실용화가 기대되는 고성능 단결정 초내열합금인 PWA1484, TMS64 및 TUT92등을 접합할 경우에도 액상확산접합법을 적용하면 접합부의 단결정화가 달성된 양호한 접합이음부를 얻을 수 있다고 판단된다.

4. 결 론

고성능 단결정 초내열합금인 CMSX-4의 액상확산접합의 적용성을 조사하기 위하여 액상확산접합현상 및 접합부의 단결정화 거동에 대해서 검토한 결과, 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 용융 인서트금속에 의한 모재의 용융반응은 단시간에 급속히 진행하고, 접합온도가 높을수록 용융량은 증가하고 포화용융량에 도달하는 시간은 감소하였다. 또, 모재용융의 활성화에너지는 460kJ/mol이었다.

2) 등온응고과정에서 공정폭은 유지시간의 평방근에 비례해서 감소하고, 접합온도가 높을수록 등온응고속도는 증가하였다. 또, 등온응고의 활성화에너지는 253kJ/mol이었다.

3) 1,523K이상에서 접합한 이음부는 균질화처리를 하지 않고 접합후 용체화처리만으로 접합부는 모재와 동일한 조직, 경도, 원소분포를 나타내었다.

4) 1,523K이하의 접합온도에서는 접합부에 점상 및 괴상생성상이 형성되며, 이는 Cr, W, Re을 주성분으로 하는 붕화물이었다.

5) 1,523K×2.4ks에서 접합한 이음부의 결정방위

를 해석한 결과, 접합부는 모재와 동일한 결정방위를 가지고, 등온응고완료시에는 접합부의 단결정화가 달성되었다.

참 고 문 헌

1. K.Nishimoto, K.Saida, D.Kim, S.Asai and Y.Hurukawa: Bonding mechanisms of Ni base single crystal superalloy during transient liquid phase bonding, ASM International, Vol.1 (1998), p72
2. 平岡: 高融點金屬單結晶の接合・加工, 高温學會誌, 20-1(1994), p4
3. 김대업: 터어빈 블레이드용 단결정 초내열합금의 용접·접합현상, 대한용접학회지, 18-5(2000), p18
4. 中村, 井本, 廣瀬, 小林, 牧野, 木村: Ni基精密鑄造合金單結晶材料のレーザー溶接, 溶接學會講演概要, 67 (2000), p42
5. 김대업: Ni기 초내열합금의 액상확산접합부 생성상의 금속조직학적 검토, 대한용접학회지, 19-1 (2001), p75
6. 김대업: 액상확산접합한 Ni기 단결정 초내열 합금의 크리프 파단 및 피로특성, 대한용접학회지, 19-1 (2001), p82
7. K.Nishimoto, K.Saida, D.Kim, S.Asai, Y.Furukawa, Y.Nakao: Bonding phenomena and joint properties of transient liquid phase bonding of Ni-base single crystal superalloys, Welding in the World, 41-2(1998), p121
8. D.Kim, C.Kang, W.Lee: The Effect of Grain Boundary on the Dissolution of Base Metal into Insert Metal during TLP Bonding of Ni-Base Superalloys, Metals and Materials, 5-5 (1999), p477
9. 西田: 鐵-銅のろう付現象, 溶接學會誌, 39-4(1970), p259
10. 中尾, 西本, 篠崎, 姜: 液相インサート金屬擴散接合における等温凝固過程の解析, 溶接學會論文集, 7-2 (1989), p213
11. 김대업: 액상확산접합한 Ni기 초내열합금의 등온응고거동에 미치는 모재결정입계의 영향, 대한용접학회지, 19-3(2001), p74
12. 太田, 中川, 大浜: 最新ニッケル基超合金の單結晶化とその高温強度特性, 鐵と鋼, 76-6 (1990), p940
13. 西本, 金, 才田, 淺井, 古川, 中尾: Ni基單結晶超合金CMSX-2의液相擴散接合部の組織學的檢討, 溶接學會論文集, 14-4 (1996), p731