

|||||||  
 論 文  
 |||||

## Al-Cu-Mg합금의 일방향응고시 로온도에 따른 응고거동변화

문 철 희

### Effects of the Furnace Temperature on the Growth Behavior of Directionally Solidified Al-Cu-Mg Alloy

Cheol-Hee Moon

#### Abstract

14 cm length Al-15Cu-1Mg alloys have been directionally solidified in 3 mm diameter alumina tubes in a furnace moved with a constant velocity  $V=12$  cm/hr under various furnace temperatures of 660, 710 and 760°C. By analysing the evolution of the temperature profiles along the alloy length during the solidification, the growth characteristics such as the position of the solid/liquid interface, the local growth velocity (R) and the temperature gradient at the solid/liquid interface (G) have been determined. The effects of the furnace temperature on the growth behavior have been investigated by the comparison of R and G values for each temperature. Under the furnace temperature of 760°C, steady state growth region was observed for the latter half of the growth period. (Received October 23, 1997)

#### 1. 서 론

일방향응고(DS: Directional Solidification)법은 일정한 온도로 유지되고 있는 로내부에 위치한 액체상태의 시편을 일정한 속도(V)로 움직이든지, 이와는 반대로 시편은 고정된 채 로를 동일한 속도(V)로 움직임으로써, 시편이 로에 부착된 냉각부(cooling zone)내로 일정한 속도(V)로 도입되도록 하는 방법이다. 이와 같은 설계를 통하여 일방향응고합금을 얻고자 하는 이유는 성장속도(R)와 고상/액상 계면에서의 온도구배(G)를 일정하게 하여 균일한 조직을 얻는데 있다. 따라서 이 방법은 터빈 블레이드, 전자재료 등 여러 용도를 위한 단결정 성장에 많이 사용되어진다. 일방향응고를 연구하는 사람들에게 있어서는 일방향응고실험을 수행하였을 때, 정상상태의 응고거동(steady state growth behavior)을 나타내는지, 응고도중에 고상/액상 계면이 어디에 위치하고 있는지, 그리고 응고계면에서의 액상과 고상의 온도구배는 어떻게 되는지 등이 가장 큰 관심사이다. 많은 연구자들은 고상의 성장속도(R)가 로(혹은 시편)의 이동속도(V)와 동일한

조건인 정상상태의 성장조건(steady state growth condition)을 가정하여 응고거동을 해석해왔으나[1, 2, 3], 이는 시편의 고상부와 액상부가 무한하게 길고 로와 냉각장치도 무한하게 길다는 조건하에서 성립되는 가정이므로, 실제로는 대부분의 경우에 있어서 정상상태와는 다른 응고거동을 나타낸다[4]. 이러한 경우 응고가 진행됨에 따라 시편전체에 걸친 온도 프로파일이 변하며 따라서 R값도 계속 변하게 된다. 또한 고상/액상계면에서 시편 길이방향으로의 온도구배(G)도 변하게 된다. 특정부위에서의 냉각속도( $^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ )는 이 R(cm/sec)과 G( $^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ )값의 곱이므로 이 경우 응고조직이 불균일해질 수 있다. 그러므로 이 R과 G값에 대한 정보는 응고후 조직의 scale과 모양을 결정하는 데 중요하다. 실험으로 R을 구하는 방법으로는 2개의 thermocouple을 시편의 각기 다른 위치에 두고 두 위치의 온도가 시편의 액상선온도에 도달하는 데 걸리는 시간차를 측정하는 방법[5,6,7]이 보고되어 있으며, 계면의 위치를 찾기 위한 방법으로는 X선을 이용하는 방법[8], 막대기를 넣어서 확인하는 방법[4] 등이 알려져 있다. 그러나 이들은 방법의 부정확하거나 복잡하

위스콘신 대학교 재료공학과 연구원 (Dept. of Mat. Sci. and Engr., University of Wisconsin-Madison)

\*삼성전관 기술본부 선임연구원 (Samsung Display Devices co.)

다는 등의 문제점을 가지고 있다. 본실험에서는 시편 내부에 장치한 thermocouple을 통하여 응고과정이 진행됨에 따라 시편 길이방향으로의 온도 프로파일이 어떻게 변화하는지를 측정하고 이를 이용하여 고상/액상 계면의 위치 및 R과 G값을 파악하였다[9].

일방향응고시 응고거동에 영향을 주는 인자들로는 시편의 직경, 시편합금의 열전도도, 튜브의 열전도도, 로온도, 냉각수의 온도, 시편의 길이 및 시편을 움직이는 속도(V) 등이 알려져 있다[10]. 본연구에서는 이들 중 로온도가 미치는 영향에 관하여 중점적으로 살펴 보도록 하겠다. 로온도가 너무 높은 경우에는 용탕중의 일부 성분이 기화하거나 용질원소의 심한 대류현상(convection) 등으로 인하여 시편전체의 혹은 국부적인 조성이 달라질 수 있고, 도가니와의 반응, 시편의 산화, 고온으로 인한 로수명의 단축 등 많은 문제점이 발생할 수 있다. 따라서 적합한 로온도를 선택하는 것이 중요한데 이를 위해서는 로온도가 합금의 응고특성에 미치는 영향을 파악하는 것이 절대적으로 필요하다. 왜냐하면 로온도를 낮게하면서도 균일한 일방향응고조직을 얻을 수 있다면 앞서 언급한 문제점들을 해결할 수 있지만, 로온도를 낮추는 것이 응고조직의 특성을 저하시키는 요인으로 작용한다면 합금의 일방향응고시 로온도로서 선택할 수 있는 적정범위가 존재할 것이기 때문이다. 그런데 이와같은 로온도가 일방향응고특성에 미치는 영향에 대해서는 로온도가 G값에 영향을 준다[11]는 정도의 제한된 연구결과 밖에 보고되어 있지 않으므로 본연구는 일방향응고시 적합한 로온도를 선택하는 중요한 기준의 하나로서 로온도가 응고거동에 미치는 영향을 제시하는 것을 목적으로 한다. 이를 위하여 가장 널리 상용화된 합금계 중의 하나인 Al-Cu-Mg 합금에 대하여 아래와 같은 방법을 이용하여 로온도의 변화에 따라 시편의 냉각곡선, 고상/액상 계면의 위치, 고상의 성장속도(R), 고상/액상 계면에서의 온도구배(G) 등이 어떻게 달라지는가를 파악함으로써, 로온도가 합금의 응고거동에 미치는 영향을 밝히도록 하겠다.

## 2. 실험방법

Fig. 1은 본 연구에 사용된 일방향응고 장치의 개략도이다. 로의 길이는 41 cm이고 원통형 로에 4세트의 열선이 감겨져 있으며 각각에 위치하고 있는 ther-

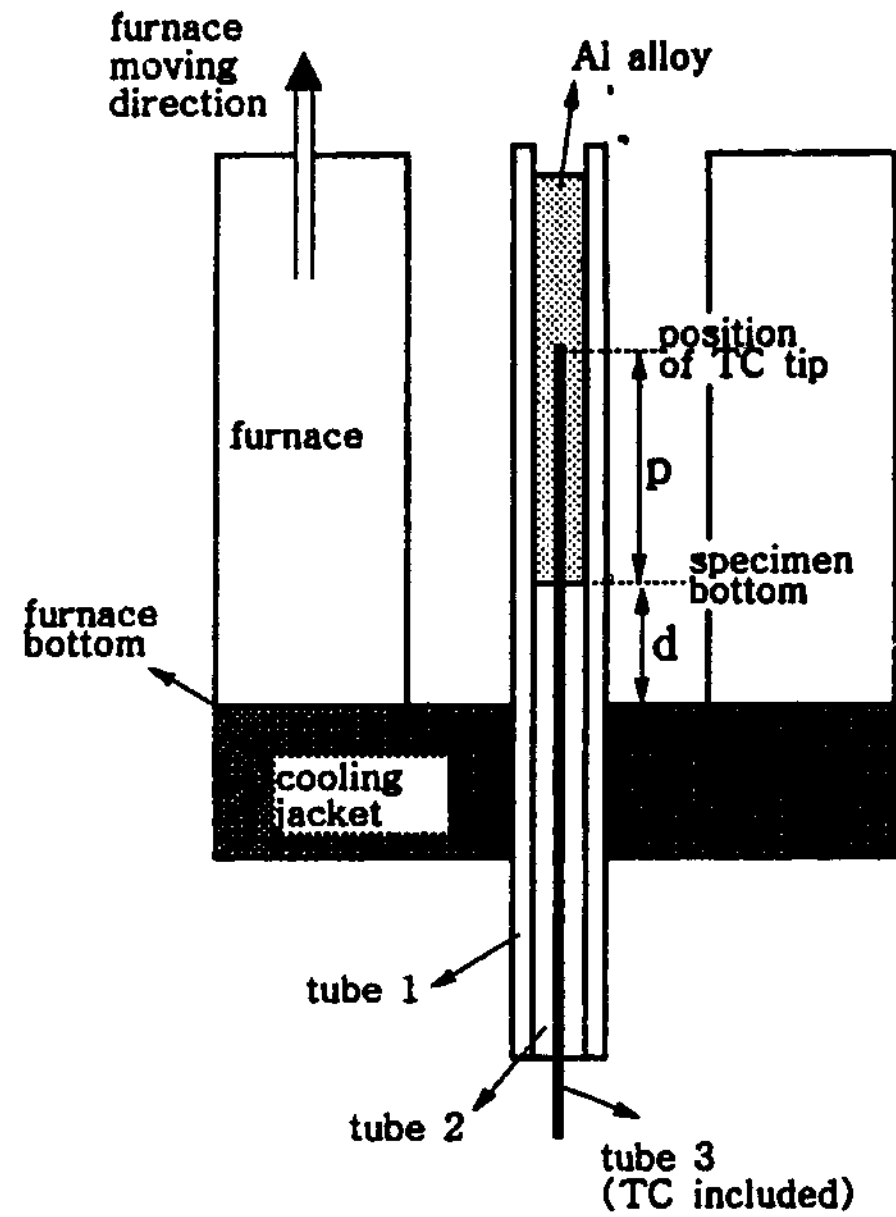


그림 1. Schematic drawings of the apparatus for directional solidification.

mocouple을 통하여 온도를 조절함으로써 로길이 방향으로 내부온도가 일정하게 유지되도록 하였다. 로하단에는 냉각수가 순환되고 있는 길이 7 cm의 냉각장치가 밀착되어 있어서, 로내부의 실제온도분포는 로하단부에서 약 5 cm위부분까지는 급격한 냉각프로파일을 가지며 그 이상에서는 가열부로서 일정한 온도로 유지되는 것으로 파악되었다. Al-15Cu-1 Mg(wt.%) 합금이 사용되었으며 조성에 맞게 제조된 모합금을 응고후의 길이가 14 cm가 되도록 중량을 재서 알루미늄 튜브에 집어 넣었다. 실험에 사용된 도가니로는 내경이 3 mm, 외경이 4.5 mm인 알루미늄 튜브(Fig. 1에서 tube 1)가 사용되었으며 이 튜브내에 장착된 합금은 로내에서 완전히 용해된 후 튜브는 고정된 채 로를 윗방향으로 일정한 속도(V)로 움직임으로써 시편이 속도 V로 냉각장치내로 도입되도록 하였다. 그림에서 d는 가열로와 시편의 상대적인 위치를 나타내기 위하여 도입한 변수로 시편의 아래끝이 냉각장치내로 얼마나 깊이 들어가 있는 상태인지를 나타낸다. 즉 d는 시편의 하단과 가열로의 하단(즉, 냉각부의 상단)과의 간격이며 -의 경우는 시편의 하단이 가열로내에 있는 경우를, +의 경우는 시편의 하단이 냉각부내로 들어온 경우를 의미한다. 로의 온도는 본 연구에서 사용한 Al-15Cu-1 Mg(wt.%)합금의 액상선의 온도가 610°C

정도임을 고려하여 과열도가 각각 50, 100, 150°C가 되도록 660, 710, 760°C로 변화하면서 이에 따르는 응고거동의 변화를 살펴보았다.

로의 움직임을 시작하기 전 모든 시편은  $d=-2$  cm, 즉 시편의 하단이 로바닥보다 2 cm위에 위치하게 하여 모든 시편을 액상으로 만든 후 로를 움직여서 시편의 하단부터 서서히 냉각장치내로 들어가면서 응고되도록 하였다. 로의 움직임은 수직방향으로 설치된 축을 따라서 속도가 균일한 모터와 기어를 사용하여 일정한 속도(V)로 제어되었으며 본 실험의 경우에는  $V=12$  cm/hr로 고정하였다. 로의 움직임에 따른 시편 내부온도의 변화를 측정하기 위하여 100  $\mu$ m 굵기의 가는 thermocouple이 사용되었으며 이는 직경 1 mm의 가는 알루미늄 보호대(Fig. 1에서 tube 3)내에 삽입하여 용해가 시작되기 전에 미리 시편내부에 위치시켰다. 이와 같은 방법으로 thermocouple을 아래쪽으로부터 삽입할 수 있게 됨으로써 위로부터 삽입하는 경우 발생할 수 있는 thermocouple 와이어를 통한 열전달 및 열손실과 같은 문제를 최소화할 수 있었다. Fig. 1에 표시된 p는 시편내부에서 thermocouple의 위치를 나타내는 변수로서 시편의 하단을 0으로 기준하여 표시한 것이다. 또한 tube 1과 tube 3사이에는 많은 공간이 있어 합금의 용해시 이 틈으로 흘러내릴 것이므로 내경이 1 mm이고 외경이 3 mm인 튜브(Fig. 1에서 tube 2)를 tube 1과 tube 3사이에 끼워넣어서 용해된 합금이 흘러내리지 않도록 하였다. 일단 thermocouple을 시편내부의 일정한 장소에 위치시키면 이 thermocouple은 시편전체가 충분히 점도가 낮은 액상인 경우를 제외하고는 움직일 수가 없게 되므로 한 번의 일방향응고실험을 통해서 얻을 수 있는 데이터는 시편내부의 한 위치에 대한 온도변화(즉 냉각곡선)뿐이다. 그러나 시편의 응고거동을 살펴보기 위해서는 시편전체에 걸친 온도측정이 필요하므로 본 실험에서는 14cm 길이의 시편에 대하여 p=1(시편의 하단에서 1 cm위)부터 p=13(시편의 상단에서 1 cm아래)까지 1 cm 간격으로 thermocouple의 위치를 변화시키며 13회의 실험을 통하여 13개의 냉각곡선을 얻었다. 본실험에서는 시편을 교환할 때 발생할 수 있는 실험편차를 없애기 위하여 동일한 시편에 대하여 thermocouple의 위치를 변화시키며 반복실험하는 방법을 사용하였다. 즉, 시편내 어떤 위치에 대한 냉각곡선이 얻어진 후 시편을 다시 완전히 용해가 되는 위

치인  $d=-2$  cm까지 이동하여 thermocouple을 다음 위치로 이동시키고 새 위치에 대한 냉각곡선을 다시 얻는 방법을 반복하였다. 이와같은 실험을 통하여 시편의 길이방향으로 각 위치에 대한 냉각곡선을 얻었으며 이를 분석하여 시편의 응고거동을 해석하였다. 실험방법에 대한 구체적인 설명은 다른 논문[9]에 상세하게 언급되어 있다.

### 3. 결과 및 토의

#### 3.1 시편내부의 여러 위치에서의 냉각곡선

Fig. 2는 로온도가 760°C인 경우로서 길이가 14 cm인 시편의 여러 위치 p=1, 2, ..., 13 cm에 대한 냉각곡선을 나타낸 것이다. 그림에서 각각의 냉각곡선이 의미하는 것은 길이가 14 cm인 시편의 일방향응고중에 시편내부의 어떤 고정된 위치에서 온도가 어떻게 변하는가 하는 것이며, 이 13개의 냉각곡선은 모두가 별개의 응고실험과정(solidification run)을 통하여 얻어진 것이다. 이 냉각곡선들을 비교해 보면 시편의 하단부에서 상단부로 갈수록, 즉 p=1 cm에서 p=13 cm로 갈수록 냉각곡선이 직선형에서 곡선형으로 바뀌고 있으며 기울기도 크게 완만해짐을 알 수 있다. 이는 전체 시편에서 고상부가 차지하는 비율이 증가함에 따른 결과로 이해할 수 있다. 그런데 여기서 주목할 점은 이들 냉각곡선에서 합금의 응고거동과 직접 관련되는 부분은 실험에 사용된 Al-15Cu-1 Mg 합금의 액상선

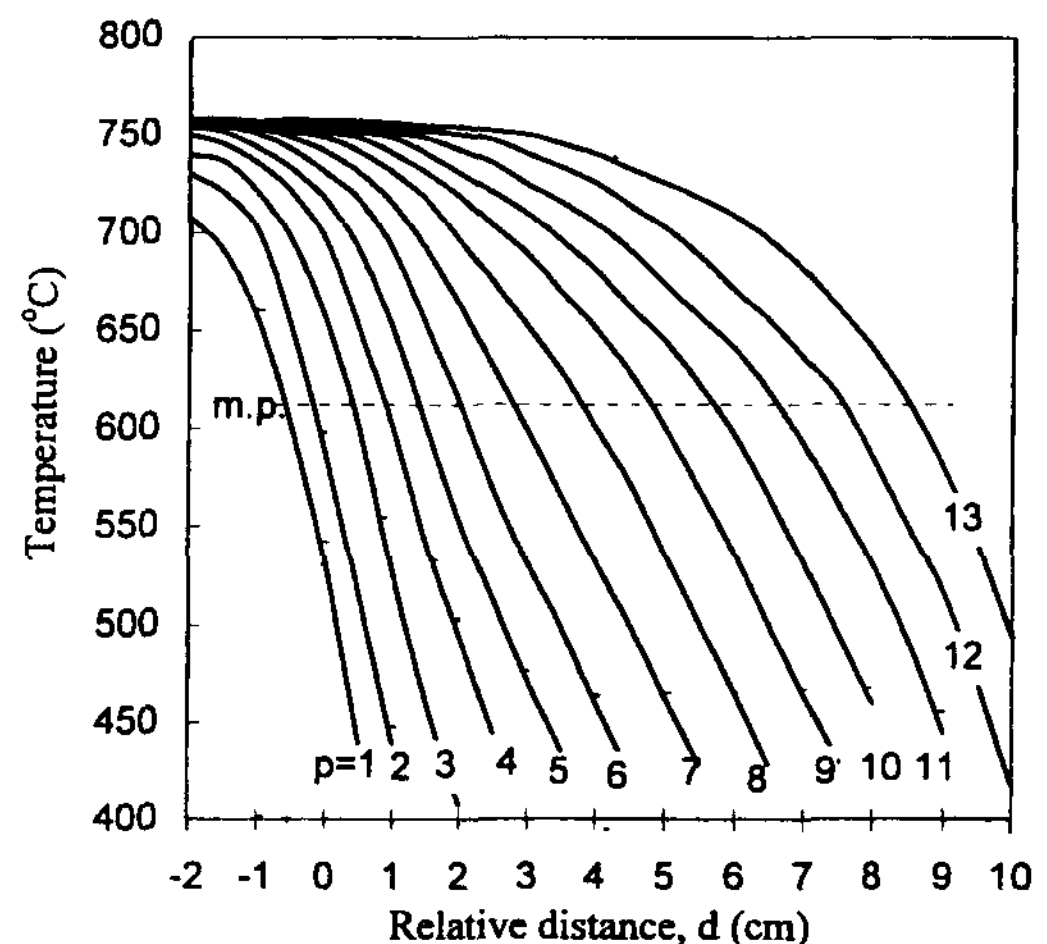


그림 2. Cooling curves under the furnace temperature of 760°C (14 cm alloy, V=12 cm/hr).

온도인 610°C와 삼원계공정온도인 508°C 사이의 부분이라는 사실이다. 따라서 이들 냉각곡선에서 508~610°C 범위만을 주목한다면 시편의 전체범위에 걸쳐서 냉각곡선의 형태는 직선에 가까우며 기울기는 시편의 윗부분으로 갈수록 완만해지지만 기울기의 감소 비율은 냉각곡선중 610°C이상의 부분과 비교하면 변화가 훨씬 작다. Fig. 3과 Fig. 4는 각각 로온도가 710°C, 660°C인 경우이다. 508~610°C 범위를 중심으로 하여 Fig. 2의 경우와 비교해보면 로온도가 낮을수록 냉각곡선의 형태가 곡선형이고 기울기도 완만해지며 냉각곡선들의 전반적인 형태가 불균일해짐을 알 수 있다. 이와같이 로온도의 변화에 따르는 냉각곡선 형태의 변화는 앞으로 언급할 시편의 응고거동들에 영향을 미친다.

3.2 응고시 시편길이방향의 온도분포의 변화

Fig. 2~4 에서 x축의 각 좌표마다 13개씩의 온도값이 대응되어 있는데, 이들은 응고가 진행되는 과정에서 어떤 순간(즉, 특정한 d에서의) 시편전체에 걸친 온도분포를 보여준다. 이를 좀더 설명하면 다음과 같다. 본실험에서는 로를 움직이기 앞서 시편전체를 완전히 용해된 상태가 되도록 하기 위하여 d=-2 cm위치에서 10분 정도 유지하였으므로 x축의 좌표중 d=-2 cm에 해당하는 온도들은 로를 움직이기 전의 온도분포를 나타낸다. 예를들어 로온도가 760°C인 Fig. 2의 경우에 d=-2좌표에 대응하는 여러 온도값을 읽으면 이

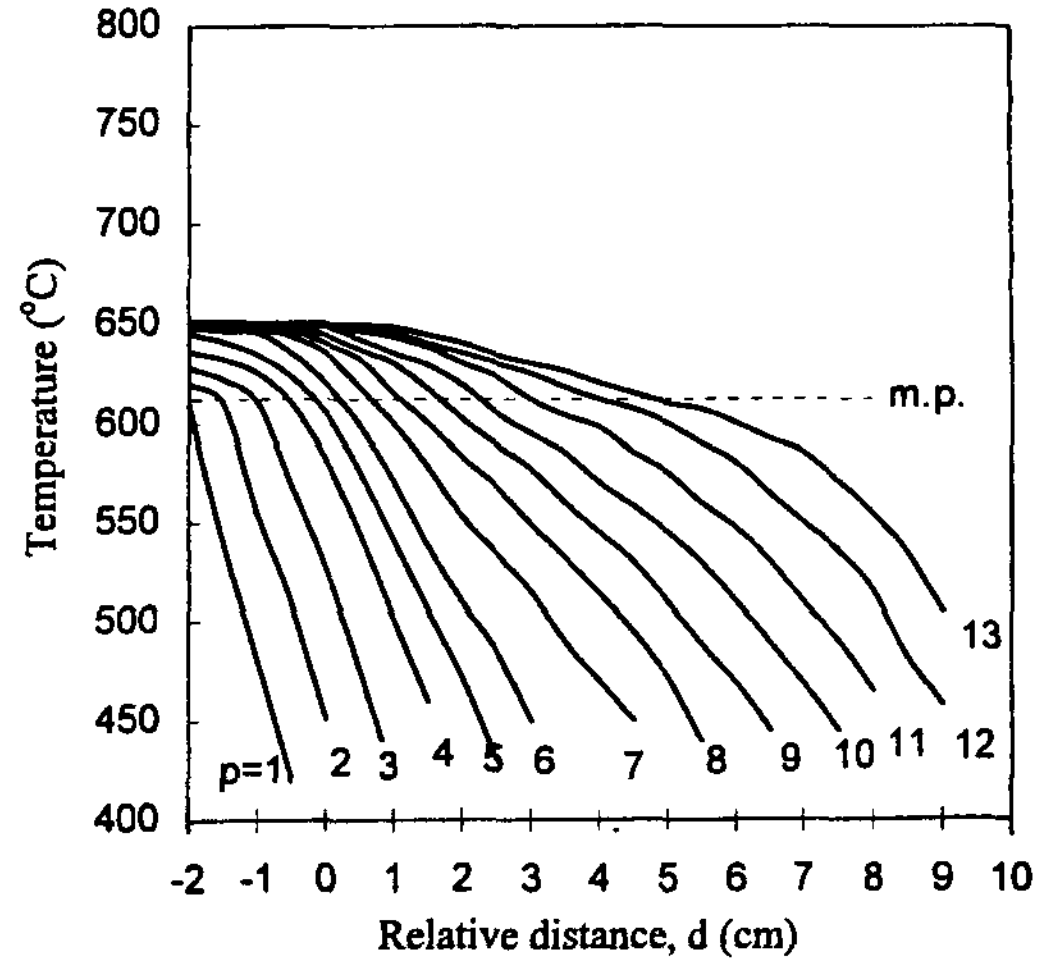


그림 4. Cooling curves under the furnace temperature of 660°C (14 cm alloy, V=12 cm/hr).

때 시편전체에 걸친 실제의 온도분포가 710°C(p=1 cm인 경우)에서 760°C (p=13 cm인 경우)에 걸쳐서 분포되어 있음을 알 수 있다. 다음으로 Fig. 2에서 d=0, 즉 시편의 하단이 로바닥에 위치하는 경우 시편전체에 걸친 온도분포를 알아보면 p=13 cm위치는 여전히 760°C 이지만 p=1 cm위치는 600°C로 시편전체적으로 온도가 더 낮아진 분포를 보이고 있다. Fig. 5~7은 각각 로온도가 760, 710, 660°C인 경우의 이러한 온도분포의 변화를 시편내의 위치 p를 x좌표로 하여 나타낸

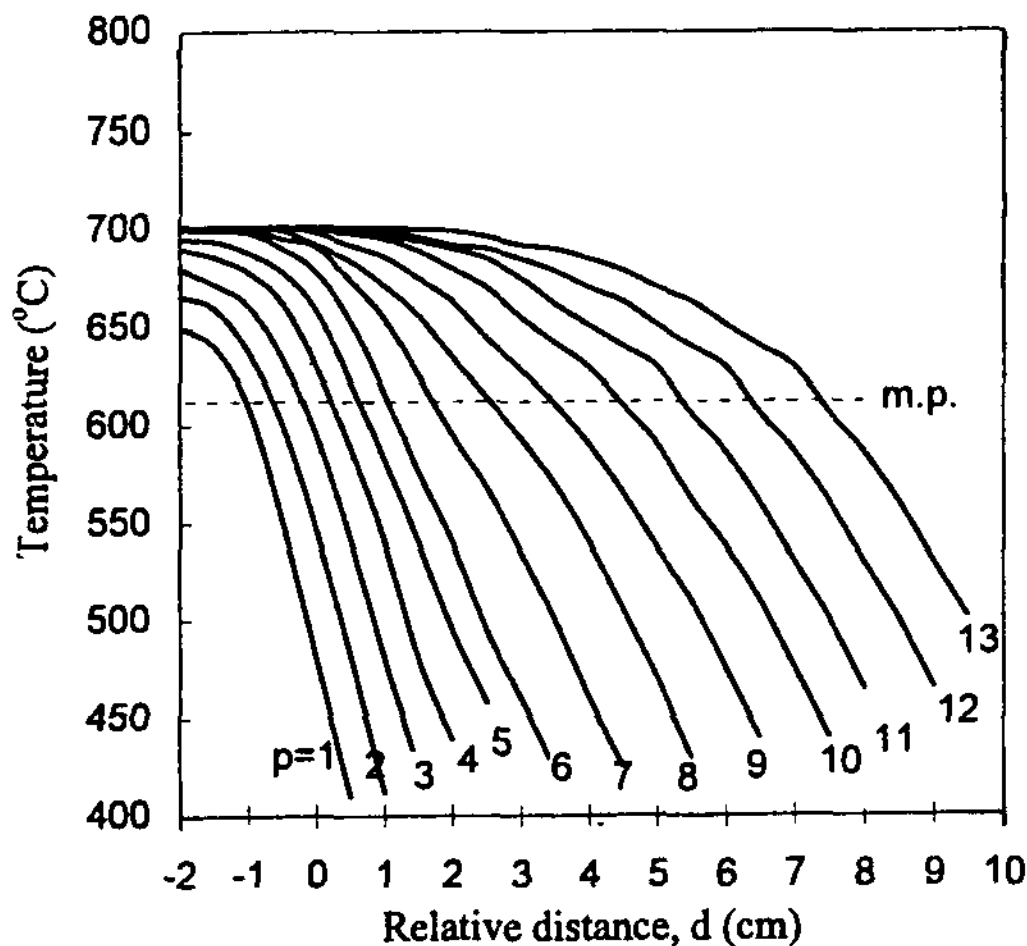


그림 3. Cooling curves under the furnace temperature of 710°C (14 cm alloy, V=12 cm/hr).

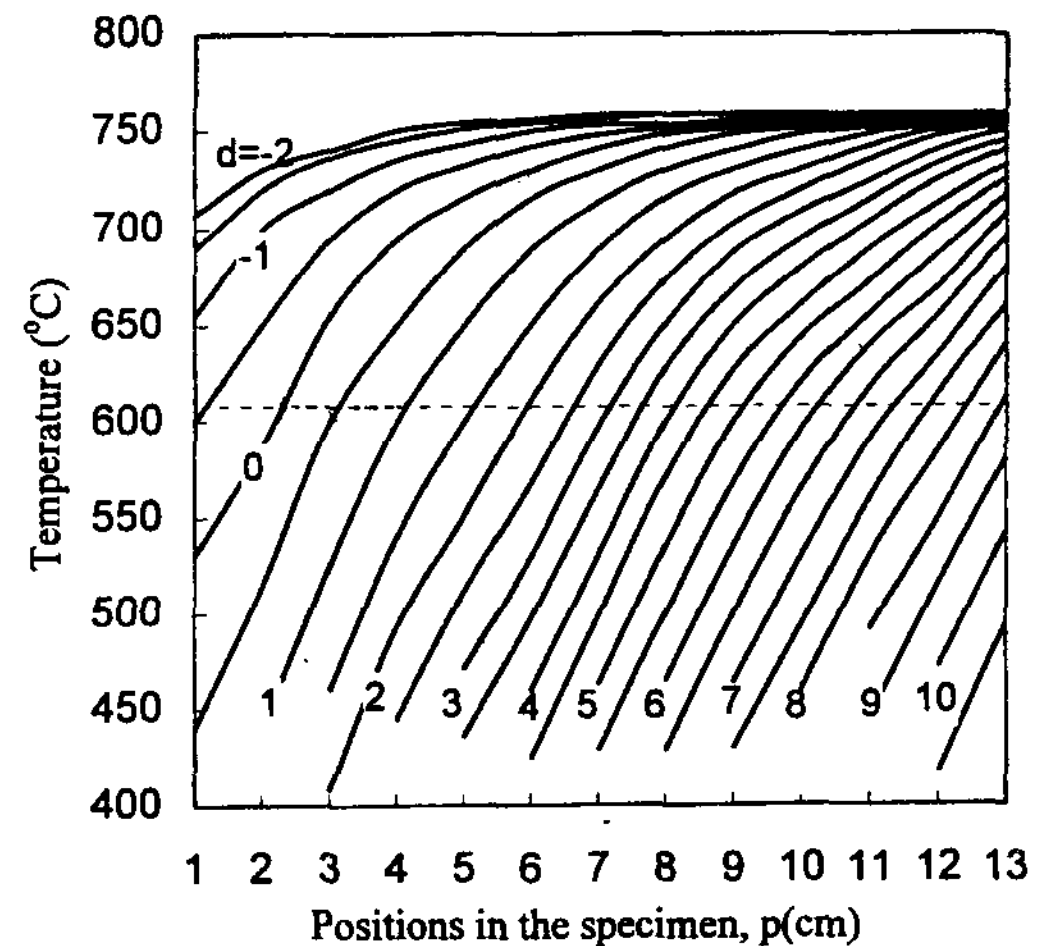


그림 5. Temperature profiles along the specimen length under the furnace temperature of 760°C (14 cm alloy, V=12 cm/hr).

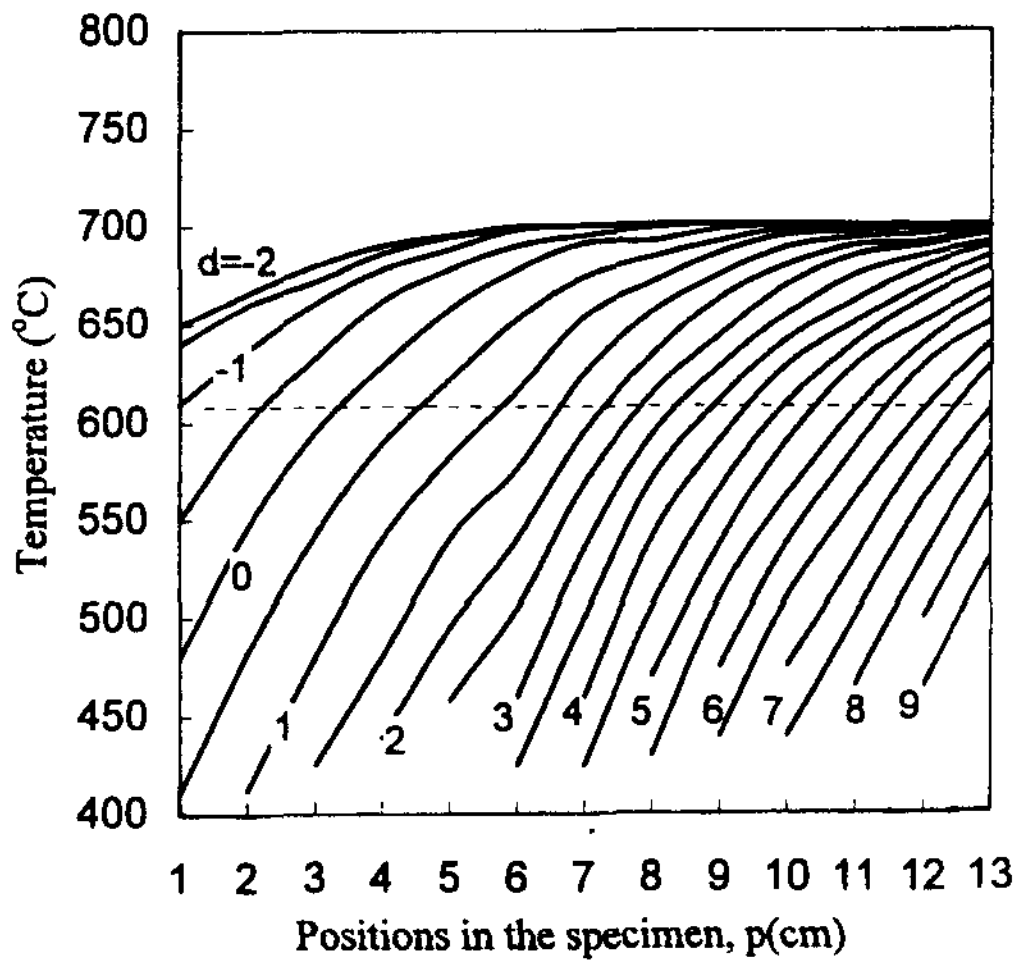


그림 6. Temperature profiles along the specimen length under the furnace temperature of 710°C (14 cm alloy, V=12 cm/hr).

그림으로서 각각의 곡선은 시편전체에 걸친 온도분포를 보여주며 d의 변화에 따라 전체적으로 서서히 냉각되어가는 과정을 볼 수 있다.

3.3 응고시 고상/액상 계면의 위치변화

Fig. 5~7의 곡선에서 시편의 응고가 시작되는 610°C에 대응되는 점은 고상이 형성되기 시작하는 순간을 의미하므로 이 점의 x좌표는 시편내부에서 고상/

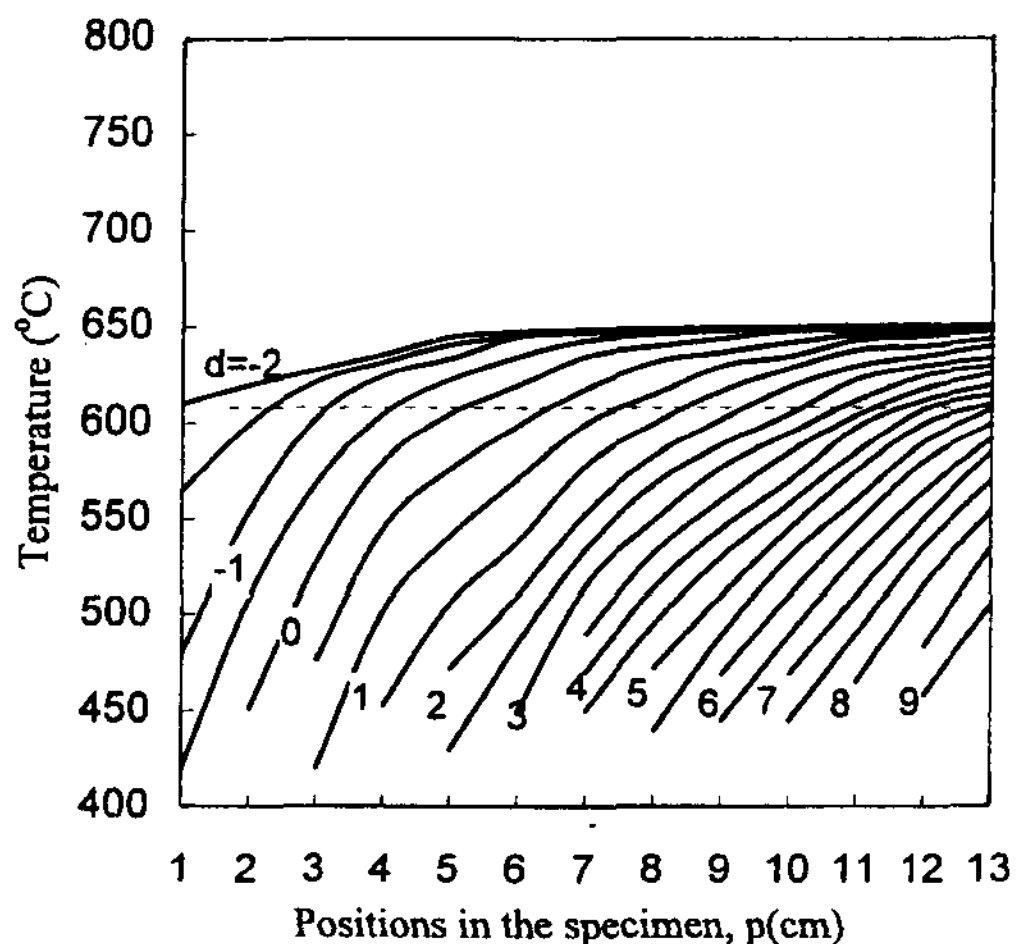


그림 7. Temperature profiles along the specimen length under the furnace temperature of 660°C (14 cm alloy, V=12 cm/hr).

액상 계면선단의 위치를 나타낸다. 예를 들어 로온도가 각각 760, 710, 660°C인 세가지 그림에서 d=0인 경우 고상/액상계면의 위치를 비교해보면 각각 p=2.4, 3.4, 5.1 cm인 위치로서 로온도가 낮을수록 고상의 성장이 많이 진행되어 있음을 알 수 있다. Fig. 8은 세가지 로온도에 대하여 이와같은 방법으로 d의 변화에 따른 고상/액상계면의 위치변화를 비교한 그림으로서 전반적으로 로온도가 낮을수록 시편의 응고가 먼저 진행됨을 알 수 있다.

3.4 시편전체에 걸친 R값의 변화

Fig. 8에서 각온도에서 계면의 위치를 서로 연결한 그래프의 기울기는 그 위치에서의 R/V값을 의미하므로 이들을 측정해보면 시편전체에 걸친 성장속도 R의 분포를 비교할 수 있다. 예를 들어 760°C의 경우 d=2 cm와 d=3 cm에서 계면의 위치는 각각 6.2 cm와 7.4 cm인데, 이는 로가 1 cm 움직이는 동안 고상이 1.2 cm 성장하였음을 의미하므로 응고된 시편에서 p=6.2~7.4 cm인 부분에 해당하는 고상의 성장속도 R값은 로의 이동속도인 V의 1.2배임을 알 수 있다. 여기서 V값은 실험할 때마다 미리 정해주는 값이므로 이와같은 R/V 값만 알면 R값은 쉽게 구할 수 있다. Fig. 9는 이와같은 방법으로 세가지 로온도에 대하여 시편전체에 대한 R/V값의 분포, 즉 고상/액상계면 선단이 시편 하단으로부터 상단까지 성장해나갈 때 각 위치에서의 R/V값을 측정한 것이다. 로온도가 760°C인 경우, 초

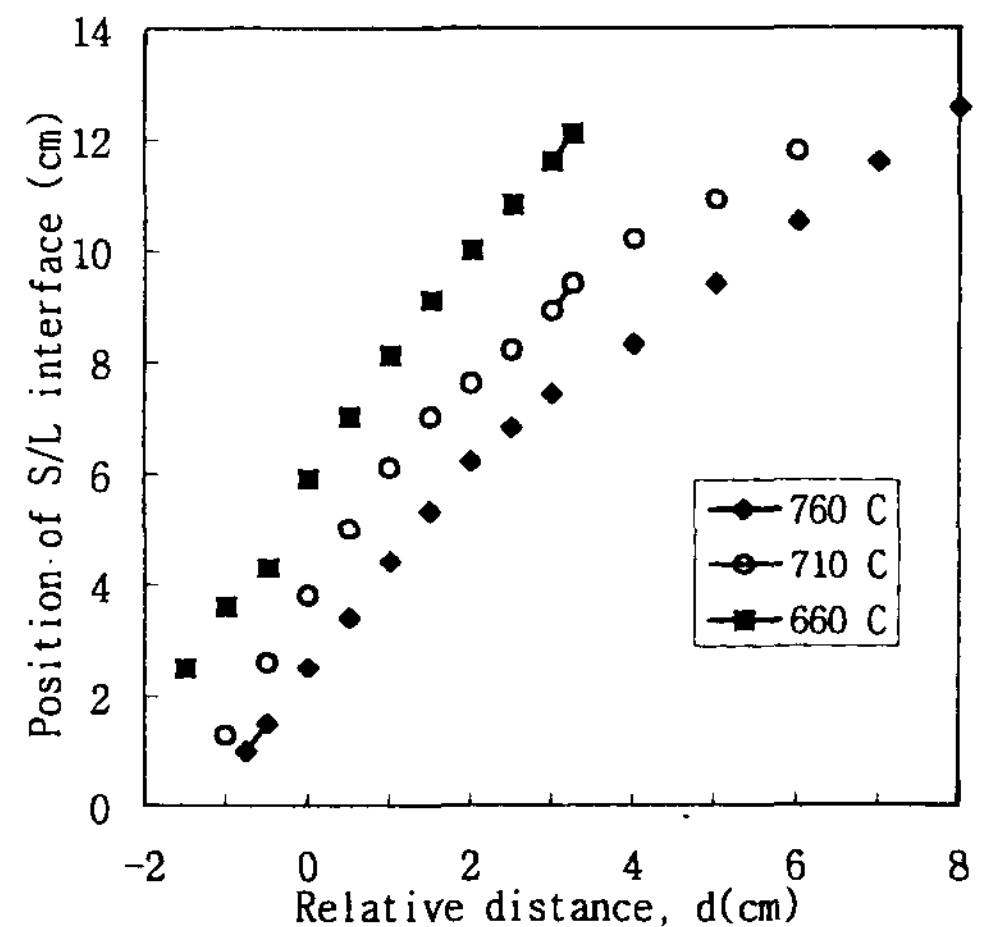


그림 8. Movement of the S/L interface with the change of d at different furnace temperatures.



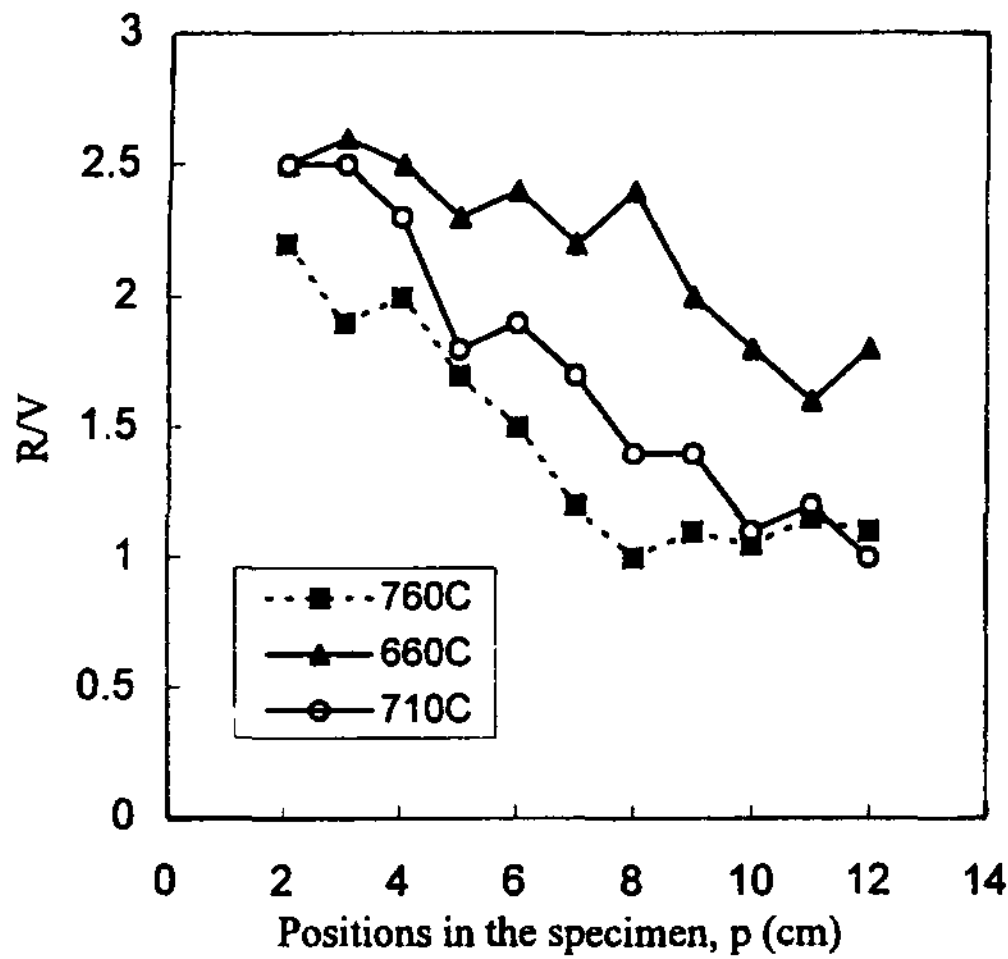


그림 9. R/V values along the specimen length at different furnace temperatures.

기에 응고하는  $p=1$  cm에서는 R값이 V의 약 2배 정도 이나  $p=7$  cm까지는 시간에 따라 R이 계속 감소하는 천이거동(transient behavior)을 보이며  $p=7$  cm 이후의 부분에 대해서는 R/V값이 1인 정상상태 응고조건 (steady state growth condition)에 가까운 특성을 보인다. 로온도가 710°C인 경우에는 이와 비교하여 전반적으로 R/V값이 높으며 R/V=1인 정상상태의 응고조건을 만족하는 부분이  $p=10$  cm 이후에 짧게 존재하지만 명확하지 않다. 또한 로온도가 660°C인 경우에는 R/V 값이 가장 높으며 R/V=1인 부분은 전혀 관찰되지 않는다. 이와같은 결과로부터 로온도가 660~

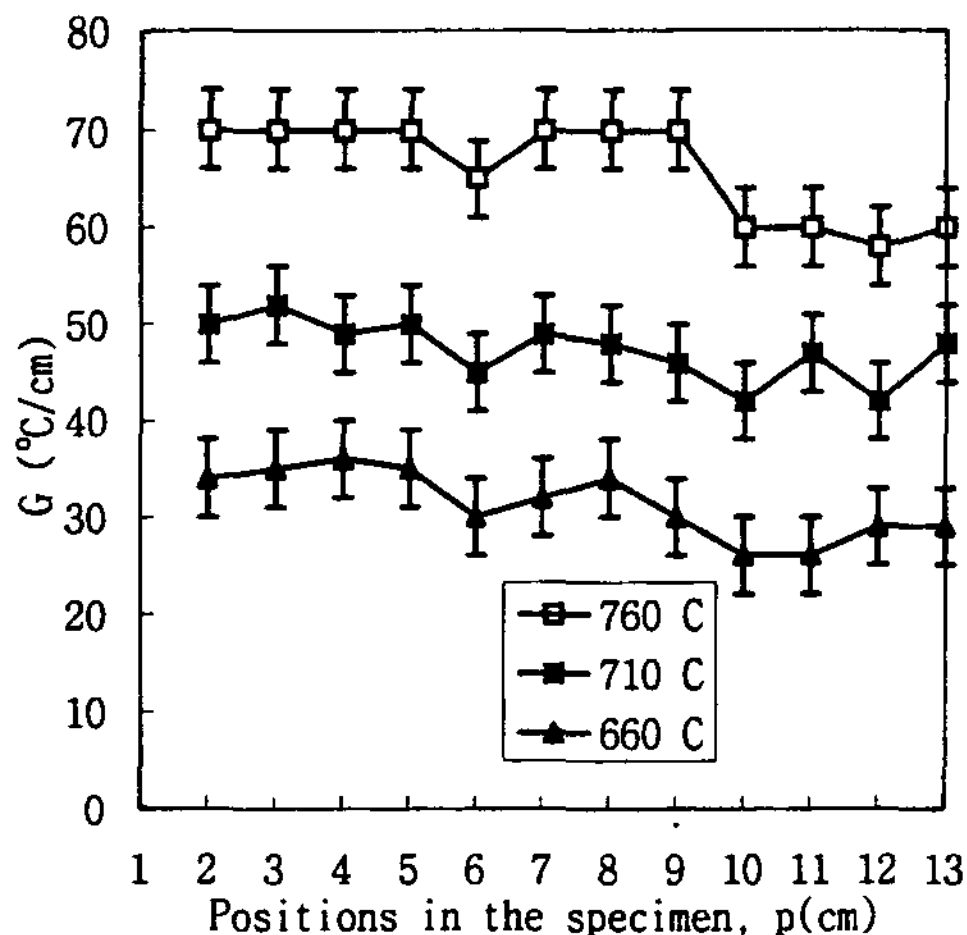


그림 10. G values along the specimen length at different furnace temperatures.

760°C 인 범위에서는 로온도가 높을수록 전체적인 R/V값도 낮아지고 R/V=1인 정상상태의 응고조건을 만족하는 부분도 증가함을 알 수 있다.

### 3.5 시편전체에 걸친 G값의 변화

앞에서 살펴보았듯이 Fig. 5~7의 곡선에서 610°C에 대응되는 점은 고상이 형성되기 시작하는 순간을 의미하므로 이 점에서의 기울기는 실제 고상/액상계면부(정확히 말하면 고상선단부)에 분포되어 있는 온도구배  $G(^{\circ}\text{C}/\text{cm})$ 를 나타낸다. Fig. 10은 Fig. 5~7의 여러 곡선에 대하여 측정된 G값을 이용하여 시편전체에 대한 G값의 분포를 비교한 것으로서, G값은 시편의 전체에 걸쳐서 비교적 일정한 값을 보여주고 있으며, 로온도가 760, 710, 660°C인 경우의 G값은 각각  $65 \pm 10^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ ,  $45 \pm 10^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ ,  $30 \pm 7^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 로서 로온도가 높을수록 G값이 높음을 알 수 있다.

### 3.6 냉각속도의 비교

응고된 시편의 냉각속도( $^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ )는 G값( $^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ )과 R값( $\text{cm}/\text{sec}$ )을 곱함으로써 얻을 수 있으므로 Fig. 9에서 구한 R값과 Fig. 10에서 구한 G값을 적용하면 세가지 로온도 아래에서의 냉각속도를 비교할 수 있다. 예를 들어 로온도가 760, 710, 660°C인 경우  $p=10$  cm에서의 냉각속도를 비교해 보면, Fig. 9에서 R/V값은 각각 1.1, 1.2, 1.7이므로 본실험에서 사용된 로이동속도는  $V=12 \text{ cm}/\text{hr}$ 임을 고려하면 R값은 각각 13, 14, 20  $\text{cm}/\text{hr}$ 이고, 따라서 냉각속도는 각각 0.23, 0.18, 0.16  $^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 임을 알 수 있다. 이와같이 로온도가 높을수록 시편의 응고시 냉각속도가 커짐을 알 수 있다.

## 4. 결 론

길이가 14 cm인 시편에 대하여  $V=12 \text{ cm}/\text{hr}$ 의 조건 하에서 로온도를 760, 710, 660°C로 달리하며 시편전체에 걸친 응고거동을 비교한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 로를 움직이기 전에 시편의 하단부를 로내부 2 cm에 위치하여 10분 동안 유지한 결과 세가지 경우 모두 시편전체가 액상화하였으나, 로의 움직임에 따른 응고거동은 로온도에 따라 차이를 나타내었다.

2) 동일한 d값에 대하여 비교한 결과 로온도가 낮을수록 고상량이 증가하는 것으로 보아 로온도가 낮을

수륙 응고가 먼저 진행됨을 알 수 있었다.

3) 고상의 성장속도를 측정한 결과 로온도가 높을수록 전체적인 R/V값도 낮아지고 R/V=1인 정상상태의 응고조건을 만족하는 부분도 증가함을 알 수 있었다.

4) G값과 냉각속도는 로온도가 높을수록 증가하는 것으로 파악되었다.

5) 따라서 본 실험에서 택한 660~760°C 범위의 로온도에서는 로온도가 높을수록 성장속도가 일정하고 냉각속도가 큰 조직을 얻을 수 있는 것으로 사료된다.

### 참 고 문 헌

- [1] R. M. Sharp and A. Hellawell, J. Crystal Growth, 5(1969) 155.
- [2] T. Okamoto and K. Kishitake, J. Crystal Growth, 29(1975) 137.
- [3] T. Edvardsson, H. Fredericksson and I. Svensson, Metal Sci., 10(1976) 298.
- [4] T. W. Clyne and J. Crystal Growth, 50(1980) 684.
- [5] M. H. Burden and J. D. Hunt, J. Crystal Growth, 22(1974) 99.
- [6] L. R. Morris and W. C. Winegard, J. Crystal Growth, 6(1970) 61.
- [7] D. Walton, W. A. Tiller and W. C. Winegard, Trans. AIME, 203(1955) 1023.
- [8] K. Kakimoto and T. Hibiya, J. Crystal Growth, 91(1988) 509.
- [9] 문철희, 대한금속학회지, 게재예정.
- [10] N. A. Mahallawy and M. Farag, J. Crystal Growth, 44(1978) 251.
- [11] R. M. Sharp and A. Hellawell, J. Crystal Growth, 6(1970) 253.