

대형 빌렛 제조에 의한 Nb₃Sn 초전도 선재의 가공 및 특성 연구

Fabrication and properties of Nb₃Sn superconducting wire from large billet stage

하동우, 오상수, 하홍수, 이남진, 권영길, 류강식

(D. W. Ha, S. S. Oh, H. S. Ha, N. J. Lee, Y. K. Kwon, K. S. Ryu)

Abstract

A key technology for achieving commercial Nb₃Sn superconducting wires may be driven from fabrication process of big-scale billets. Sub-element billet with diameter of 200 mm was designed and fabricated. This billet was hot-extruded and drawn. Cu stabilizer tube, Nb barrier tube and 19 sub-elements inserted Sn core were composed for strand. There was no breakage in the strand that was constituted with annealed sub-element. It was need that billet had to treat HIP because of remove of voids and good contact between Cu and Nb filaments. Ta wound sheet was better than Ta tube for barrier in the strand. I_c of the Nb₃Sn wire at 12T, 4.2K was over than 120 A.

Key Words(중요용어) : Superconducting wire, Internal tin process, Nb₃Sn, large billet, KSTAR

1. 서론

Nb₃Sn 초전도 선재의 제조 방법 중 브론즈법은 Nb₃Sn 초전도 선재의 상용화를 가능하게 하였으며 현재에도 가장 널리 이용되는 방법이다. 하지만 Cu-Sn 합금에서의 Sn 용해도의 한계에 따른 J_c 향상의 한계가 있으며, 합금에 따른 가공 경화 현상이 심하여 가공 도중 연화 처리가 필요하다는 단점이 있다. 이를 극복하기 위해서 여러 가지 방법이 개발되었는데, 특히 내부확산법에 의한 Nb₃Sn 초전도 선재가 전류밀도가 높은 장점 때문에 현재 차세대 초전도 핵융합(KSTAR : Korea Superconducting Tokamak Advanced Research) 장치에 사용되기로 결정되었다.

내부확산법에 의한 Nb₃Sn 초전도제조의 특징은 순 금속 상태의 Cu 기지금속과 Nb 봉재로 구성된 sub-element를 먼저 제조하게 되는데, 이를 위하여 sub-element 빌렛을 제조하여야 한다. 이 빌렛은 Cu 와 Nb 필라멘트간의 접합성을 높이고 빌렛 원래의 형상대로 직경이 줄어들도록 열간 압출을 수행하게 된다.[1] 압출된 sub-element 봉재를 적정한 크기까지 인발한 다음 가운데에 건드릴을 하여 홀 가공을 하여 여기에 Sn을 삽입하고 다시 인발하여 완전한 sub-element를 구성하도록 한다.[2] 이후에는 이들 subelement를 다발로 하여 Nb 또는 Ta 재질의 확산 장벽을 안정화용 Cu tube에 넣어 인발을 하여 초전도 소선(strand)을 제조하게 된다.[3]

이러한 공정에 있어 초기의 sub-element를 제조하는 기술을 보유하는 것은 매우 중요한데, 이 과정에서 Nb₃Sn 초전도체를 위한 각 성분의 비율과 분포를 결정할 수 있는 빌렛 설계 능력과 빌렛의 제조

* 한국전기연구소 초전도응용연구그룹
(경남 창원시 성주동 28-1,
Fax: 0551-280-1696
E-mail : dwha@keri.re.kr)

및 압출 과정에서의 여러 가지 민감한 기술을 확보할 수 있다. 특히 상업용으로 실용화하기 위해서는 빌렛의 직경이 200~300 mm 정도가 되어야 경제성을 가질 수 있다. 본 연구에서는 Nb₃Sn 초전도 선의 실용화를 위하여 빌렛의 설계 기술과 균일하고 단선이 없는 초전도 선재를 가공할 수 있는 기술을 확보하기 위하여 초전도 선재 제조의 전 공정에 있어 가장 중요한 빌렛의 제조와 가공을 통해 재료의 특성을 평가하였고 재료의 특성과 단선 없는 균일한 선재 가공과의 상호 관계를 조사하였다. 또한 6 T~12 T의 자장 범위에서 임계전류를 측정하였다.

2. 실험

압출기의 컨테이너 직경 200 mm에 맞추어 sub-element 빌렛의 직경을 194 mm로 하여 빌렛을 설계하였다. 내부확산법에서는 Cu 기지금속의 가운데에 Sn core가 위치하며 주위로 Nb 필라멘트가 배치되어 있는 구조가 일반적이다.

본 연구에서도 이와 같은 구조를 가진 빌렛을 제조하고자 하였는데, 표 1에 빌렛을 구성하는 Cu, Nb 및 Sn의 부피분율과 크기를 나타내었다. 그리고 그림 1에는 직경 194mm, 길이 300 mm의 빌렛의 단면을 나타내었다. Sn core는 빌렛의 가운데 부분에 위치할 것이나, Sn의 용융점이 232℃이기 때문에 열간 압출 후에 건드릴 가공을 한 다음 Sn 봉재를 넣기 때문에 실제로 이 부분은 Cu solid 상태였다. 직경 7.0 mm, 총 162 개의 Nb-Ta 필라멘트 봉재를 Sn core의 바깥으로 4 열로 배치시켰다.

Nb₃Sn 초전도 층을 생성시키기 위해서는 우선 Sn과 Cu가 반응하여 bronze를 형성시켜야 하고 bronze 내의 과잉의 Sn이 Nb 필라멘트로 확산하여 Nb₃Sn 층을 형성하는 2 가지 열처리로 구분시킬 수 있다. 이 과정에서 기지금속이 되는 α-phase 내에 Sn이 13at%가 고용되어 있어야 하고 나머지 Sn이 Nb와 반응할 것을 고려하여 표 1에서 나타낸 것과 같은 부피 분율을 결정하였다.

이와 같이 제조한 sub-element 빌렛을 세척 한 다음 전자빔 용접에 의해 진공 상태에서 빌렛 몸체

Table 1. Specification of billet elements

분류	빌렛 설계		IGC
	부피분율	직경	
Cu	57.5 %	194 mm	53 %
Nb-Ta	21.9 %	7.0 mm	26 %
Sn	20.5 %	21 %	21 %

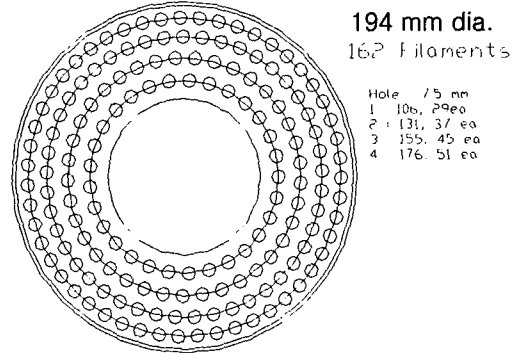


Fig. 1. Design of sub-element billet

와 두경을 접합시켰다. 이렇게 완전히 제조된 빌렛을 열간 압출 하여 봉재로 가공한 다음 여기에 건드릴에 의해 홀 가공을 하였으며 준비한 Sn 봉을 홀에 넣어 완전한 sub-element를 만든 다음 인발 가공을 하였다.

Nb 또는 Ta barrier와 동비가 1.5인 동 안정화 튜브로 구성되는 strand에 19 개의 sub-element와 6 개의 spacer를 다발로 하여 이를 Ta 또는 Nb 확산 장벽용 tube 내에 넣고 이를 다시 안전화용 동 튜브에 넣어 strand를 조립하였다. 표 2에서는 Ta 또는 Nb tube를 확산 장벽으로 사용했을 때의 사양을 나타내었다. 이와 같이 조립한 strand를 인발 및 선선 하여 최종 선재 직경인 0.804 mm까지 가공하였다. 선재의 열처리는 460℃와 570℃에서 브론즈 형성 반응을 거쳐 660℃에서 240 시간 Nb₃Sn 형성을 위한 열처리를 행하였다. 이러한 제조 공정 중에 균일한 가공 및 단선 없는 가공 조건을 찾기 위해 경도 및 미세조직을 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

Sub-element 빌렛을 790℃, 15분간 예열하여 40 mm ∅로 압출하였다. 압출할 봉재를 분석한 결과, Nb 필라멘트 층 중 내부 열부터 먼저 압출되어 나오다가 후에 바깥 층이 압출되어 4 열 모두 균일하게 나온 부분은 약 200 mm 정도가 되었다. 이는 계산에 의하면 어느 정도의 가공 불균일한 부분을 제외하더라도 최소 약 400 mm 정도에서는 균일한 가공 부분이 나타나야 하였다. 이러한 원인으로서는 빌렛을 압출하기 전에 HIP(hot isostatic press) 공정에 의해 Cu 기지 금속과 Nb 봉 사이의 틈을 제거 시켜

Table 2. Specification of strands with two types of barriers.

	Nb tube	Ta tube
strand 외경	35 mm	25 mm
strand 내경	22 mm	17mm
Barrier 외경	21 mm	16 mm
Barrier 내경	20 mm	15 mm
sub-element 직경	3.15 mm	2.4 mm
sub-element 수	19	19
spacer 수	6	6

야 한다는 것과 압출을 위한 예열 시간을 2 시간 열처리함으로써 Nb의 가공 경화를 방지하는 것이 중요하다는 것을 알았다.

압출한 sub-element를 어느 정도 인발한 다음 건드릴 가공을 하여 Sn 붕을 삽입하여야 하는데, 이 과정에서 가공 경화를 제거하여야 하는 것이 중요함을 알았다. 즉 연화시키지 않은 상태에서 Sn을 넣고 신선 가공하여 strand를 제조한 선재에서는 단선 현상이 발생하였다. 반면에 Sn을 넣기 전에 sub-element를 연화처리하여 같은 공정으로 선재를 만든 경우에는 단선이 발생하지 않았다. 이러한 차이는 그림 2의 건드릴 후 열처리 유무에 따른 이어지는 공정에서의 경도 변화를 보면 알 수 있다. 직경 26.2 mm에서 열처리를 하게 되면 Nb와 Cu의 경도가 줄어들게 되고 가장 강도가 낮은 Sn과의 후 공정에서 결합 상태가 좋은 복합체로 가공이 되었다. 따라서 strand를 조립할 때 sub-element의 가공 경화 정도가 이후의 strand 가공에서 매우 중요한 영향을 미침을 알 수 있었다.

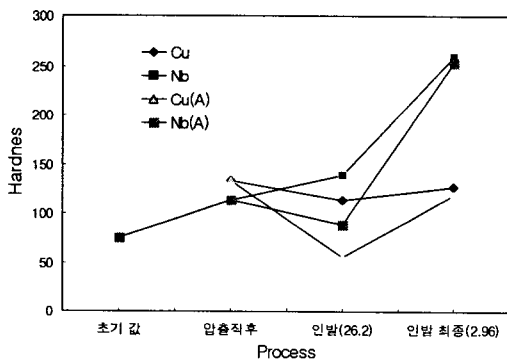


Fig. 2. The variation of hardness of sub-elements that worked differently.

그리고 strand를 제조하는데 있어 확산 장벽으로 사용하는 Ta의 경우 그 형상에 따라 가공성이 매우 중요함을 알았다. Nb에 비해 Ta는 가공성이 매우 나쁘다고 알려져 있다. 그래서 Ta를 확산 장벽으로 사용하기 위해서는 열처리가 되어 있어야 하며 또한 tube 형태보다는 sheet를 말아서 사용하는 것이 중요함을 알았다. Ta tube를 사용한 strand에서는 가공 초기에 단선이 발생하였다. tube의 경우는 초기부터 단면적이 감소하는 변형이 수반되어야 하나, Ta sheet를 감은 경우에는 초기 가공 동안에는 Ta sheet가 더욱 감기면서 sub-element 사이의 공극을 매울 수 있는 여유가 있고 이후부터 다음 단면적이 감소되는 가공이 진행되면 되기 때문에 Ta의 변형에 어느 정도 여유가 있고 sub-elements와 Ta barrier 간의 접합력을 향상시킬 수 있을 것이라고 생각된다. 이러한 과정을 그림 3에 나타내었다.

또한 strand를 조립하여 인발 공정을 거칠 때 strand 양단을 통해 인발유와 같은 오일의 침투가 막는 것이 매우 중요하였다. 즉 오일의 침투에 의해 sub-element와 확산 장벽 사이에, 그리고 확산 장벽과 동 안정화 튜브 사이에 오일이 존재하여 금속간의 접합이 되지 않고 서로 간에 미끄러짐 현상이 발생하게 되어 인발 가공 동안 각 금속의 소성 변형이 진행되는 것이 아니라 일종의 인장력이 작용하여 결국 단선이 발생하게 되었다.

그림 4는 0.804 mm ϕ 까지 가공한 다음 660 $^{\circ}$ C에서의 최종 열처리 후의 선재 단면을 보여주고 있다. 그림에서처럼 Nb 필라멘트가 균일하지 않은 이유로는 sub-element 빌렛에서의 홀과 Nb 붕재와의 틈을 HIP에 의해 없애지 않았기 때문이라고 생각된다. Nb 붕재와 Cu 홀 사이의 틈이 있으면 압출이 진행

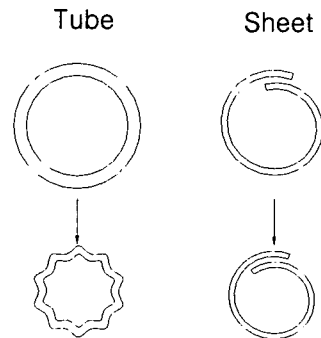


Fig. 3. Schematic diagram of Ta deformation during drawing process.

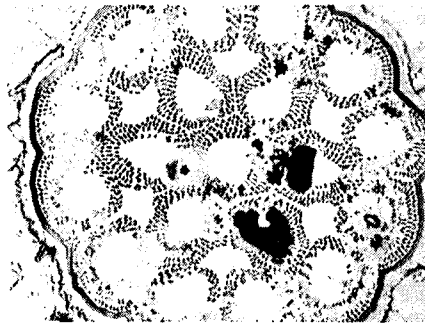


Fig. 4. Cross section of Nb₃Sn wire after heat treated at 660 °C for 240h.

되는 동안 먼저 Cu 홀이 타원 형태로 변형되고 다음으로 Nb가 직경이 균일하게 줄어드는 소성 변형을 하지 않고 이 홀의 틈 사이로 변형되어 타원 형태로 변한 다음 단면적이 줄어드는 소형 변형이 진행되는 것으로 생각된다. 이러한 원리를 그림 5에 나타내었다.

그림 6은 열처리한 선재를 4.2K에서 6 T에서 12 T의 범위에서 임계전류를 측정한 결과를 나타내고 있다. 12 T에서 120 A 이상의 I_c 값을 얻을 수 있었다. 이러한 결과는 상용의 선재에서 170 A의 값을 가지는 것에 비교할 때, 약 30% 정도 낮았으나 HIP, 압출, strand 조립 등의 공정을 보완하게 되면 충분히 상용의 선재와 동등한 결과를 얻을 수 있으리라 고려된다.

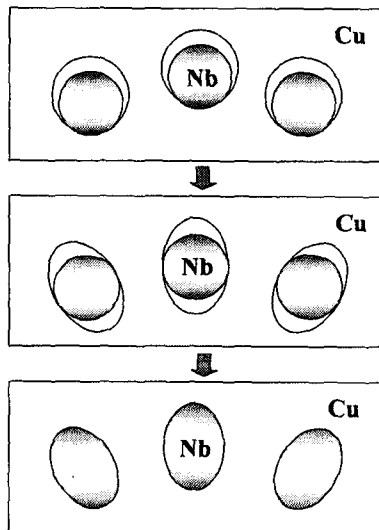


Fig. 5. Schematic diagram of Nb and Cu matrix formation.

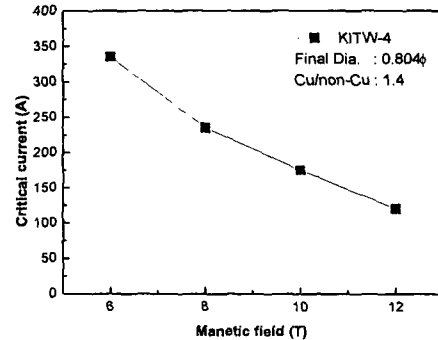


Fig. 6. Critical current of Nb₃Sn wire after heat treated at 660 °C for 240h as a function of magnetic field.

4. 결 론

빌렛 압출 시 예열 과정이 중요한데, 800 °C에서 2 시간 이상의 예열이 필요함을 알았으며, 빌렛의 균일한 압출을 위해 HIP 공정을 거쳐야 하는데, 이는 Cu 기지금속과 Nb 필라멘트간의 접합력을 향상시키기 위함이다.

확산 장벽으로 Ta를 사용할 경우 sheet를 감아서 사용하여야 단선이 발생하지 않았으며, 가공경화된 sub-element를 어닐링 하여 연화처리를 시켜야 추후의 가공에서 선재의 단선을 방지할 수 있었다.

4.2K, 12 T에서 120 A 이상의 임계전류를 갖는 Nb₃Sn 선재를 제조할 수 있었다.

참 고 문 헌

- [1] E. Gregory, E. Gulko, T. Pyon, and L. F. Goodrich, "Improvements in the properties of internal-tin Nb₃Sn strands," Proceedings of ICEC-16, part 3, pp. 1715-1718, 1996.
- [2] B. A. Glowacki, "Changes of T_c, J_c and Stoichiometry of Nb₃Sn phase formed during internal tin diffusion process," IEEE Trans. Magn. vol. 32, no. 4, pp. 2768-2771, 1996.
- [3] E. Gregory and T. Pyon, "Some recent developments in low temperature superconductors for fusion, high energy physics and other applications," Proceedings of ICEC-17, pp. 399-402, 1998.